

Софийски университет “Св. Климент Охридски”
Физически факултет

АВТОРЕФЕРАТ

на дисертация за придобиване на
образователната и научна степен доктор

Научна специалност: 01.03.04 Ядрена физика

Страхил Бойчев Георгиев

**Ядренофизични методи за изследване на
миграцията на радиоактивни благородни газове**

Научен ръководител: доц. д-р Добромир Пресиянов

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

София

2012

Дисертационната работа съдържа 137 страници (без библиографията), 45 фигури и 13 таблици, разпределени в 5 глави и 2 приложения. Библиографията обхваща 130 заглавия.

Страхил Георгиев е редовен докторант в катедра "Атомна физика" на Физически Факултет на Софийски университет "Св. Климент Охридски". Изследванията, представени в дисертационния труд, са извършени в "Лаборатория дозиметрия и лъчезащита" във Физически Факултет на Софийски университет "Св. Климент Охридски".

Съдържание

I Цели и структура на дисертацията	1
II Увод	4
III Развитие на метода на дифузионните камери за кумулативни измервания на ^{222}Rn	7
III.1 Разработване и валидиране на метод за автоматично броене на следи в SSNTD	8
III.2 Калибриране на дифузионни камери и изследване зависимостта на калибровъчния коефициент от конструктивните особености на камерите	10
IV Поликарбонатен метод за измерване на бета-радиоактивни благородни газове	13
IV.1 Прилагане на поликарбонатния метод за измерване на ^{85}Kr във вода	14
IV.2 Разработване, валидиране и приложение на теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати	16
IV.3 Разработване и валидиране на числен подход за определяне на ефективността при измерване на бета-радиоактивни благородни газове	28
V Заключение	31
Библиография	39

Списък на по-често използваните съкращения:

MDAC	от англ. Minimum Detectable Activity Concentration – Минимална детектируема концентрация
SSNTD	от англ. Solid State Nuclear Track Detector – Твърдотелен детектор на следи
КПР	Краткоживеещи продукти на разпадане на ^{222}Rn
РБГ	Радиоактивен благороден газ

Списък на по-често използваните означения:

A	Активност
A_V	Обемна активност
D	Коефициент на дифузия
K	Коефициент на разпределение
L	Дебелина (на пластинка)
L_D	Дължина на дифузия, $L_D = \sqrt{D/\lambda}$
n	Атомна концентрация
t_d	Време на десорбция (времето изтекло след края на облъчването)
t_m	Продължителност на измерването
t_s	Време на сорбция (облъчване)
x	Координатна променлива (по направление на дебелината L на пластиката)
ε	Ефективност при измерване
λ	Константа на разпадане

I. Цели и структура на дисертацията

Дисертацията се състои от пет глави и две приложения. В глава I. Увод на дисертацията са представени благородните газове Криптон, Ксенон и Радон. Представени са радиоактивните им изотопи, чиито измервания представляват най-голям интерес (^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn) и научните области, за които представляват интерес измерванията на тези радиоактивните благородни газове (РБГ). Аргументирана е необходимостта от методи за измерване именно на тези РБГ. Посочени са два метода, подходящи за измервания в дадените научни области: Поликарбонатният метод – подходящ за измервания и на трите РБГ и методът на дифузионните камери – подходящ за кумулативни измервания на ^{222}Rn . Формулирани са целите и задачите на дисертацията, свързани с развитието на двата метода:

Цел 1. Развитие на метода на дифузионните камери за кумулативни измервания на ^{222}Rn . Това включва следните задачи:

- Разработване на нов алгоритъм за автоматично броене на следите;
- Сравняването му с утвърдения метод за визуално броене;
- Разработване и сравнение между различни видове камери;
- Разработване на процедура за калибриране на дифузионните камери при автоматично броене на следите с новоразработения алгоритъм.

Цел 2. Разработване на поликарбонатния метод за измерване на бета-радиоактивни благородни газове (бета-РБГ). Това включва следните задачи:

- Изследване на приложимостта на метода и за други РБГ (освен радон), разтворени във вода;
- Разработване и валидиране на модел, описващ процесите на транспорт на РБГ в поликарбонати;
- Изследване на възможностите на модела – определяне на величини от практически интерес, оптимизиране на експерименти по облъчване и т.н.;

- Разработване и валидиране на числен подход за определяне на ефективността при измерване на бета-радиоактивни благородни газове.

В глава II. **Обзор на методи за измерване на РБГ** са представени научните области, в които измерванията на РБГ представляват интерес и специфичните изисквания към методите за всяка от областите. Разгледани са и са сравнени най-използваните методи и методите обект на дисертацията, като са представени предимствата и недостатъците. Сравнението показва, че методът на дифузионните камери е най-подходящ за проспективни кумулативни измервания на ^{222}Rn в затворени помещения и в почвен газ, важни за целите на лъчезащитата. Поликарбонатният метод се оказва подходящ за измервания и на трите РБГ в повечето от разгледаните научни области като допълващ или алтернативен на утвърдените методи. Прилагането му би било особено полезно, тъй като в някои от областите, използваните досега методи изискват сложна и скъпа апаратура. Освен това, в някои случаи, досега използваните методи са безалтернативни, а в други – се оказват неподходящи в извънредни ситуации. От направения анализ са изведени насоките за развитие на двата метода, обект на дисертацията. В тази глава е показана и приложимостта на поликарбонатния метод за кумулативни измервания на радон. Това приложение не е обект на настоящата дисертация.

Глава III. Развитие на метода на дифузионните камери за кумулативни измервания на ^{222}Rn (виж част III на автореферата) е посветена на първата цел на дисертацията и на изпълнението на свързаните с нея задачи. Накратко е описан методът на дифузионните камери и е изведена връзката между средната обемна активност на ^{222}Rn и плътността на следите в SSNTD. Описан е новопредложеният метод за автоматично броене на химически ецвани следи в Kodak-Pathe LR-115/II, чрез сканиране с компютърен скенер и специално разработен от нас компютърен алгоритъм за броене на следите в скенерното изображение. Методът е валидиран чрез сравнение с визуално броене. Показано е, че методът е приложим за броене на химически ецвани следи и в Makrofol-SSNTD. Разработена е процедура и са калибрирани два типа дифузионни камери – пластмасови и метални. Изследвано е и е показано, че конструктивните особености на металните камери не оказват влияние върху калибровъчния им коефициент извън рамките на неопределеностите.

Глава IV. Поликарбонатен метод за измерване на бета-радиоактивни благородни газове (виж част IV на автореферата) е посветена на втората цел на дисертацията и на изпълнението на свързаните с нея задачи. Представен е методът за измерване на РБГ чрез абсорбция в поликарбонати и направеното до момента във връзка с развитието му. Показано е, че методът е приложим за измервания на ^{85}Kr във води, оценено е MDAC за тези измервания и са посочени някои от възможните им приложения. Предста-

вен е и е валидиран теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати. Предложен е метод (на базата на теоретичния модел) за определяне на коефициента на разпределение и дължината на дифузия на РБГ за поликарбонати. Методът е валидиран в международно сравнение. Разработен е компютърен код (на базата на теоретичния модел), позволяващ прецизни пресмятания (с контрол на точността) на абсорбираната активност и разпределението ѝ в поликарбонатни образци. Демонстрирани са възможностите на кода за оптимизиране и планиране на експерименти. Оценена е MDAC при измерване на ^{133}Xe във въздух чрез абсорбция в поликарбонати и гама-спектрометрично измерване, като са посочени възможни приложения на такива измервания. Разработен е и е валидиран числен подход за оценка на ефективността и скоростта на броене при измерване на бета-излъчващи РБГ чрез абсорбция в поликарбонати и последващо общо бета-броене. Демонстрирани са възможностите на този подход. Предложен е и е валидиран подход за оценка на влиянието върху тези величини на алфа-частиците, регистрирани при измерване на смесен източник (напр. ^{222}Rn) с детектор, чувствителен към двата типа частици. Предложен е подход за забавяне или дори спиране на десорбцията на РБГ от поликарбоната чрез съхраняване в течен азот. Подходът способства измервания, които не могат да започнат веднага след края на облъчването.

В **глава V. Заключение** (виж част V на автореферата) е обобщено направеното в дисертацията. Формулирани са приносите на дисертанта и е представен списък на публикациите във връзка с дисертацията.

В **приложение А**, за пълнота на приложенията на поликарбонатния метод, накратко са представени и сравнени четирите най-перспективни метода за кумулативни ретроспективни измервания на ^{222}Rn , единият от които е поликарбонатния метод. В **приложение Б** са представени схемите на разпадане на трите радиоактивни семейства (на ^{238}U , ^{232}Th и ^{235}U), част от които са трите изотопа на радон, съществуващи в природата (съответно ^{222}Rn , ^{220}Rn и ^{219}Rn).

II. Увод

Радонът (${}_{86}\text{Rn}$) е благороден газ, който няма стабилни изотопи. В природата съществуват три негови радиоактивни изотопа, които са част от естествените радиоактивни редове: ${}^{219}\text{Rn}$ ($T_{1/2} = 3.96\text{s}$ [1]) от реда на ${}^{235}\text{U}$, ${}^{220}\text{Rn}$ ($T_{1/2} = 55.6\text{s}$ [1]) от реда на ${}^{232}\text{Th}$ и ${}^{222}\text{Rn}$ ($T_{1/2} = 3.82\text{d}$ [1]) от реда на ${}^{238}\text{U}$ [2]. Основна част от облъчването на човека от естествени източници се дължи на радона. Облъчването от радон се формира основно от облъчването в жилищни и работни помещения, където концентрациите му са много по-високи от тези на открито. Основните източници на радон в затворени помещения са екshalацията от почвен газ и строителни материали, постъпление от въздух от околната среда, дееманация от вода, използвана в домакинството [2]. Поради малките количества ${}^{235}\text{U}$ в природата и малкия период на полуразпадане на ${}^{219}\text{Rn}$, той не е съществен фактор за облъчването на човека [2]. Тъй като ${}^{220}\text{Rn}$ също е със сравнително малък период на полуразпадане, облъчването от него е съществено само в редки случаи на високи концентрации на ${}^{232}\text{Th}$ [2]. Основната част от облъчването на човека от радон се дължи на ${}^{222}\text{Rn}$ и краткоживеещите му продукти на разпадане (КПР), като за него е установено:

- Той е втори по тежест причинител на белодробен рак след тютюнопушенето [3];
- На ${}^{222}\text{Rn}$ се дължи над 50% от годишната ефективна доза за населението, формирана от облъчването от естествени източници [4].

Поради това международни организации, ангажирани с радиационната защита на населението, препоръчват въвеждането на прагови нива на концентрациите на радон в жилища и на работни места, над които да се предприемат мерки [3, 5, 6]. Препоръките са възприети в много европейски страни и са въведени задължителни нива на намеса [7, 8, 9]. В България въведените нива са само с препоръчителен характер [10]. Спазването на тези норми и предприемането на адекватни мерки в случаите на високи концентрации на ${}^{222}\text{Rn}$, налага провеждането на измервания не само в сградите, но и измервания в почвен газ и във води, като източници на ${}^{222}\text{Rn}$. Измерванията в източниците са важни и при планиране на строителство, с оглед вземане на превантивни мерки. Концентрациите на ${}^{222}\text{Rn}$ в питейни води също са обект на контрол в някои страни [7, 11, 12]. Посредством измервания на ${}^{222}\text{Rn}$ в питейни води, може да се определи съдържанието на ${}^{226}\text{Ra}$ [13], което също подлежи на контрол [11, 14]. Измерванията на ${}^{222}\text{Rn}$ в почвен газ и води представ-

ляват интерес и в областта на радиоекологията. В България например, това е свързано с оценка замърсяванията, възникнали по време на уранодобива, с оценка на мерките за ограничаване на замърсяванията и оценка на мерките при ликвидиране на уранодобивната промишленост. Измерванията на ^{222}Rn в почвен газ и води намират приложение също и при изследвания на тектониката на Земята, датиране на подпочвени води, изследване на процесите на взаимодействие между подпочвени и повърхностни води и др.

При измерването на концентрациите на ^{222}Rn в сгради за целите на радиационната защита, основен проблем са големите вариации в концентрацията му, дължащи се на разнообразни причини като метеорологични условия (температура, атмосферно налягане, валежи), проветряване на помещенията и др. Тези вариации могат да достигнат няколко порядъка дори в рамките на едно денонощие. По тази причина, при оценка на облъчването на човека от ^{222}Rn , представителни са кумулативните измервания – интегрални измервания, при които се определя средната концентрация за дълъг период от време. Най-широко използваният метод за кумулативни измервания на радон в жилища е методът на дифузионните камери с твърдотелни детектори на следи [3]. Методът на дифузионните камери е широко приложим и за кратковременни измервания в почвен газ. Въпреки че методът се прилага от десетилетия, едно от предизвикателствата пред него е бързото и надеждно броене на следите. Най-простият метод е визуалното броене с оптичен микроскоп, но той е бавен и същевременно натоварва оператора. Затова, използвайки за сравнение визуалното броене, са разработени множество методи за полуавтоматично и автоматично броене. Методът на дифузионните камери традиционно се използва (повече от 15 години) в лаборатория ”Дозиметрия и лъчезащита”¹ при Физически факултет на СУ ”Св. Климент Охридски”, което доведе до формулирането на първата цел на дисертацията.

Друг метод за прецизни измервания на ^{222}Rn е предложението наскоро от Пресиянов и съавтори поликарбонатен (компакт-диск CD) метод за ретроспективни (измервания назад във времето), кумулативни измервания [15]. Той се основава на способността на някои поликарбонати (каквото е материала на CD/DVD) да абсорбират РБГ, съчетана със свойството на тези поликарбонати на твърдотелни детектори на следи. След като бъде абсорбиран в поликарбоната, α -частиците излъчени от ^{222}Rn и КПП формират следи в поликарбоната. По-късно беше показано че, освен за кумулативни измервания, този метод е приложим и за измервания във води и почвен газ [16, 17, 13]. При тези измервания, методът може да бъде приложен или подобно на случая във въздух – използвайки свойството на поликарбоната на детектор на следи, или да бъде измерен сигнала от поликарбоната, дължащ се на бета- или гама-лъчението на КПП на ^{222}Rn (^{214}Bi и ^{214}Pb).

¹Лабораторията, към която дисертантът е зачислен на редовна докторантура и е извършил работата по настоящата дисертация.

Криптон (${}_{36}\text{Kr}$) и ксенон (${}_{54}\text{Xe}$) са благородни газове, срещащи се в природата основно като смес от няколко стабилни изотопа [1, 18]. Срещат се и радиоактивни изотопи – основно продукти на ядрено делене с техногенен произход. Източници на тези изотопи са заводите за производство на радиофармацевтици, атомните електроцентрали, заводите за преработка на отработено ядрено гориво и ядрени експлозии и аварии [19]. Радиоактивните изотопи от основен интерес са ${}^{85}\text{Kr}$ и ${}^{133}\text{Xe}$. В ядрената енергетика те се използват при контрола на работата на АЕЦ, като по количеството и съотношението между изотопите на РБГ може да се оцени състоянието на горивото или да се идентифицират разхерметизирани горивни елементи [20]. В ядрената и радиационната безопасност тези РБГ се използват при контрола на изхвърлянията от ядрените съоръжения, при контрола за спазване на забраната на ядрените опити и при оценка на разпространението на радиоактивни замърсявания при ядрени аварии. Различните случаи носят различен характерен ”подпис” (съотношение между изотопите на РБГ), по който могат да бъдат разграничавани [21, 22]. В науките за Земята ${}^{85}\text{Kr}$ и ${}^{133}\text{Xe}$ намират приложение при разработване и валидиране на атмосферни модели [21]. Като инертни газове, те са подходящи, тъй като са химически неактивни и позволяват да бъдат проследявани само физичните процеси. При установяване на нерегламентирано изхвърляне или авария, моделите позволяват съответно откриване на източника или оценка на замърсяването. ${}^{85}\text{Kr}$, намира приложение и при датирание на подпочвени води и изследване на взаимодействието океан–атмосфера.

Всяка от гореизброените области се характеризира със специфични, сложни, скъпи и дори безалтернативни методи за измерване на активността на ${}^{85}\text{Kr}$ и ${}^{133}\text{Xe}$ във въздушна и водна среда. Наскоро, с водещото участие на сътрудници на лаборатория ”Дозиметрия и Лъчезащита”, беше показано, че поликарбонатният метод е приложим и за измервания на ${}^{85}\text{Kr}$ и ${}^{133}\text{Xe}$ във въздух [23]. При прилагане на метода за измерване на ${}^{85}\text{Kr}$ и ${}^{133}\text{Xe}$, отново се използва способността на поликарбоната да абсорбира РБГ. След като поликарбонатът абсорбира ${}^{85}\text{Kr}$ и ${}^{133}\text{Xe}$, с подходяща ядрено-физична апаратура, се регистрира бета- или гама-лъчението, дължащо се на абсорбирания РБГ (${}^{85}\text{Kr}$ и ${}^{133}\text{Xe}$ са β - и γ -лъчители). Поради пилотният характер на изследванията в [23], те само показват възможността РБГ да бъдат измервани чрез абсорбция в поликарбонати. За да бъде разкрит пълният потенциал на метода, е необходимо детайлното изучаване на процеса на абсорбция на РБГ в поликарбоната, условията, от които зависи този процес, както и условията, от които зависи измереният сигнал. Поради това беше поставена и втората цел на дисертацията.

III. Развитие на метода на дифузионните камери за кумулативни измервания на ^{222}Rn ¹

Методът на дифузионните камери е един от най-често използваните за кумулативни измервания на ^{222}Rn . Дифузионните камери представляват съд (камера), в който по дифузионен път прониква ^{222}Rn , като същевременно не се позволява проникването на ^{220}Rn , както и на краткоживеещите продукти на разпадане на ^{222}Rn и ^{220}Rn . В камерата най-често е поставен твърдотелен детектор на следи (Solid State Nuclear Track Detector – SSNTD). Дифундиралият в камерата ^{222}Rn и генерираните при разпадането му КПП ^{218}Po и ^{214}Po търпят алфа-разпадане, като получените алфа-частици формират следи в SSNTD. Характерните размери на тези следи са до няколко десетки нанометра. След края на облъчването, SSNTD се подлага на подходяща химична обработка, при която размерът на следите се увеличава и те могат да бъдат преброени. След преброяването се определя плътността на следите (брой следи на единица площ на детектора). Средната обемна активност \bar{A}_V на радона за времето на облъчване t_{exp} е пропорционална на "чистата" плътност на следите s_0 (плътност на следите, коригирана с фон):

$$\bar{A}_V = \frac{1}{k} \frac{s_0}{t_{exp}} \quad (\text{III.1})$$

където k е калибровъчен коефициент. От израза III.1 се вижда, че за да бъде точно определена средната обемна активност на радона за времето на облъчване на дифузионните камери, трябва да може плътността на следите да бъде определяна с малка неопределеност, както и да бъде добре известен калибровъчният коефициент. Затова, задачите, които се решават с цел развитие на метода на дифузионните камери, са: Разработване и валидиране на метод за автоматично броене на следи в SSNTD; Калибриране на дифузионни камери и изследване зависимостта на калибровъчния коефициент от конструктивните особености на камерите.

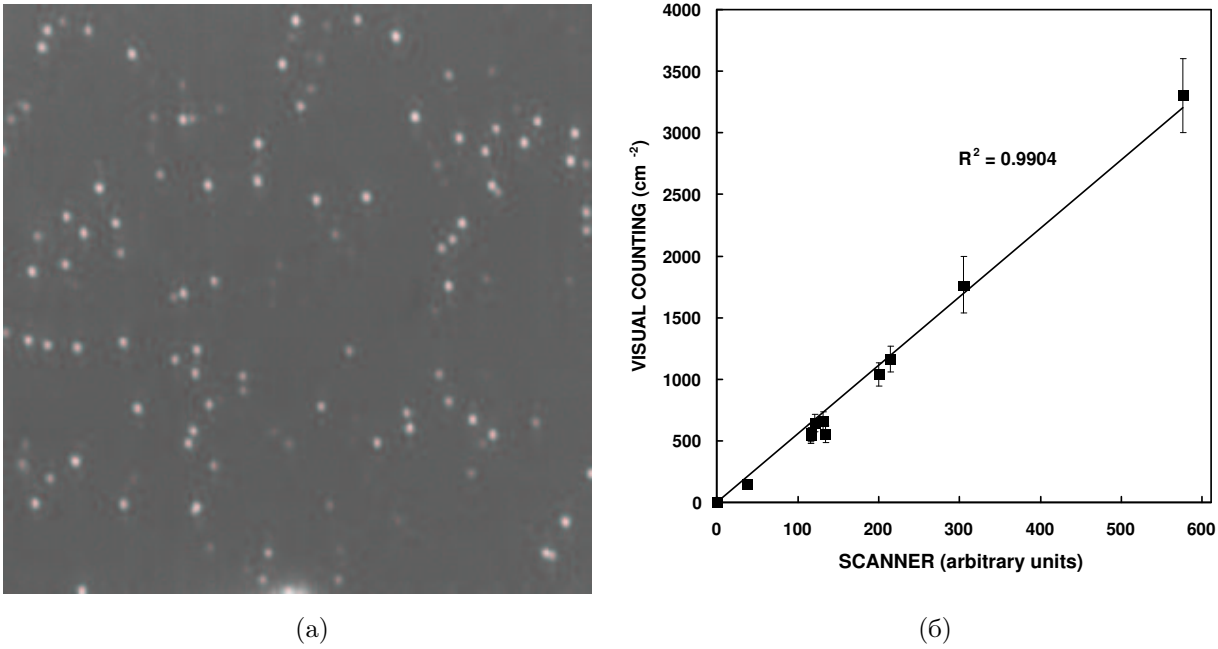
¹Тази част на автореферата е резюме на глава III от дисертацията.

III.1 Разработване и валидиране на метод за автоматично броене на следи в SSNTD

Поради широкото приложение на SSNTDs, различни методи се разработват и прилагат за броене на химически ецвани следи. Тези методи могат да се разделят на два типа: ”ръчно” (визуално) и автоматично. Визуалните методи по правило са много времеемки, натоварващи оператора и зависими от него. От друга страна, автоматичното броене е пречатствано от сравнително малките размери на химически ецваните следи в широко използваните SSNTDs. С развитието на микроелектрониката се появиха и станаха широко достъпни компютърни скенери с разделителна способност от порядъка на няколко микрона. Тази разделителна способност позволи разработването на метод за визуализация и високо продуктивно автоматично броене на химически ецвани следи в SSNTD с помощта на компютърен скенер [24]. Първите ни експерименти показаха, че, ако повърхността на химически ецван SSNTD бъде сканирана с такъв скенер, то на полученото изображение следите са видими. Полученото изображение може да бъде запазено и следите да бъдат преброени автоматично с подходящ софтуер. За целта беше разработен софтуер и потенциалът на подхода беше изследван за два скенера и два вида SSNTDs.

Първоначално този подход беше изследван за детектори Kodak-Pathe LR-115/II (Kodak-детектори). Дифузионни камери с Kodak-детектори бяха облъчени при измервания на ^{222}Rn в околната среда. След облъчването, детекторите бяха ецвани химически с разтвор на NaOH. В резултат следите се проявяват като бели петна на червен фон, което спомага визуализирането и броенето (фигура III.1(a)). Детекторите бяха сканирани в преминала светлина със скенер с разделителна способност 1600dpi. Изображенията бяха запазени в RGB bitmap-формат (при този формат не се прилага компресиране). За броене на следите беше специално разработен компютърен код. Основните стъпки от алгоритъма, заложен в кода, са подробно описани в секция III.1 на дисертацията. Плътността на следите беше определена и чрез визуално броене с оптичен микроскоп в режим на преминала светлина. На фигура III.1(б) е представена зависимостта на автоматично определените плътности на следите от визуално определените плътности на следите. Както се вижда има много добра корелация между резултатите от визуалното и автоматичното броене.

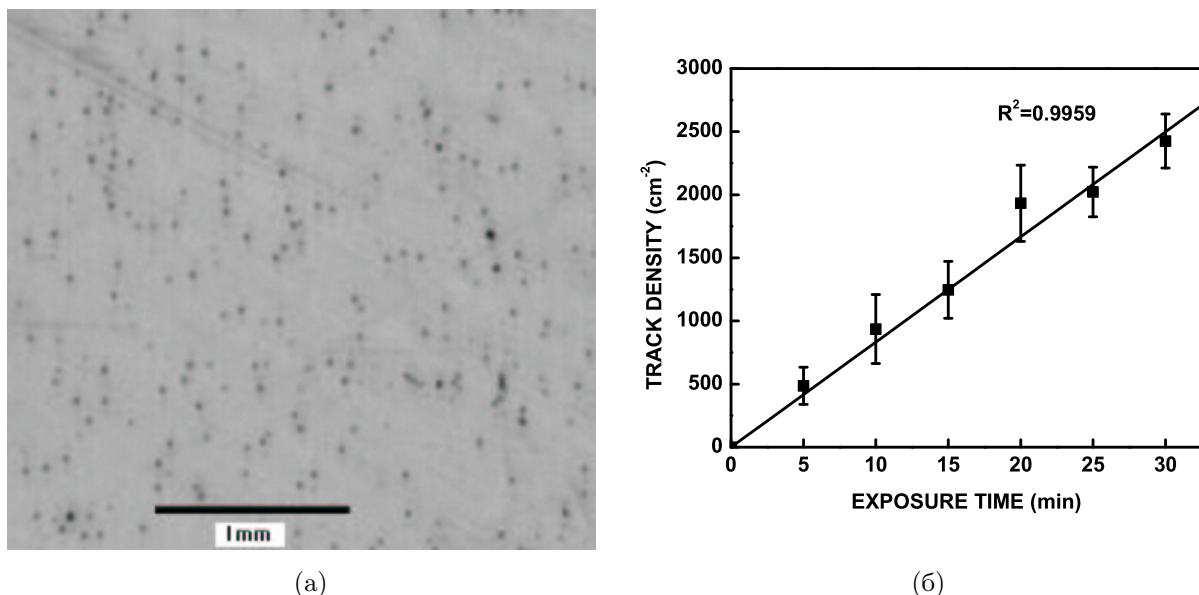
При прилагане на метода на дифузионните камери, в някои случаи се налага облъчванията да бъдат кратковременни. Тогава плътността на следите, дължаща се на облъчването, може да е сравнима с фоновата плътност на детекторите. В такива случаи е необходимо да се определи минималната плътност на следите, която може статистически да се различи от фона. За да се оцени работата на алгоритъма за автоматично броене в такива случаи, плътността на следите на необлъчен Kodak-детектор (фонова плътност)



Фигура III.1: Сканиране и броене на твърдотелен детектор на следи Kodak-Pathe LR-115/II след химическо ецване. (а) Скенерно изображение на детектора. (б) Корелация визуално–автоматично преброени следи [24].

беше определена посредством визуално и автоматично броене. Получената с автоматичното броене плътност на следите $(35 \pm 8) \text{cm}^{-2}$ е в добро съответствие с тази при визуално броене $(37 \pm 7) \text{cm}^{-2}$ (неопределеностите са на ниво 1σ). На базата на това заключаваме, че компютърен скенер с разделителна способност 1600dpi или по-добра може да бъде използван за автоматично броене на следи в Kodak-детектори, при наличие на подходящ софтуер.

Другият тип SSNTD, за който изследвахме приложимостта на гореописания алгоритъм, беше поликарбонатно фолио Makrofol. Този тип детектори също са широко използвани при изследване на концентрациите на радон. За разлика от случая на Kodak-детекторите, химически ецваните следи в Makrofol детектори не се виждат при сканиране в преминала светлина. Това се дължи на факта, че Makrofol детекторите са прозрачни за видимата светлина. При сканиране в преминала светлина, тя се разсейва при преминаване през детектора и размива границите между следите и останалата част от детектора. Поради това и поради малките размери на химически ецваните следи (сравними с разделителната способност на скенера), те не могат да бъдат отделени от фона. Следите станаха видими след потъмняване на задната страна на детектора и сканиране в отразена светлина: неравната повърхност на следите силно отразява светлината, докато чистата от следи повърхност на детектора е гладка и слабо отразява, светлината достига потъмнената повърхност и се поглъща. При това следите се проявяват като бели точки на черен фон (фигура III.2(a)). За потъмняването бяха използвани два подхода, по-подробно разгледани в дисертацията.



Фигура III.2: Сканиране и броене на следи в Makrofol детектори след химическо ецване. (а) Скенерно изображение на детектора. (б) Корелация автоматично преброени следи – време на облъчване на детекторите [24].

За да проверим дали следите в Makrofol могат да бъдат броени надеждно след сканиране и прилагане на алгоритъма за автоматично броене, Makrofol фолио беше облъчено в лабораторни условия с алфа-частици от спектрометричен източник ^{241}Am . Бяха приготвени различни плътности на следите чрез вариране на времето за облъчване. Облъчените детектори бяха ецвани със стандартен (PEW) разтвор [25], задната им повърхност беше потъмнена и бяха сканирани в отразена светлина при разделителна способност 3200dpi. Плътността на следите беше определена с гореспоменатия компютърен код. Много добрата корелация между плътността на следите и съответните времена на облъчване (фигура III.2(б)) ни позволява да заключим, че предложения метод може успешно да бъде приложен за автоматично броене на химически ецвани следи в Makrofol детектори.

III.2 Калибриране на дифузионни камери и изследване зависимостта на калибровъчния коефициент от конструктивните особености на камерите

За да бъде приложен методът за автоматично броене на следи в SSNTD от дифузионни камери, беше необходимо да се определи връзката между плътността на следите определена при автоматичното броене и осреднената за времето на облъчване обемна активност на радона (т.е. калибровъчния коефициент, виж формула III.1). За целта беше проведено калибриране, при което два вида дифузионни камери (метални и пластмасови) бяха облъчени за определено време при известна обемна активност на радон [26]. Пластмасовите дифузионни камери, традиционно използвани от 15 години в лаб. "Дозиметрия и лъчезащита", представляват пластмасова чашка, на дъното на която е прикрепен SSNTD,

а отворът ѝ е покрит с полиетиленово фолио. Тези камери са калибрирани с първичен радонов стандарт през 1999 в CEA – Saclay, France [27] за визуално броене. Металните камери са новоразработени и представляват цилиндрична, метална кутия, с прикрепен на капака SSNTD и няколко отвора в стените, покрити с полиетиленово фолио. Те бяха разработени поради някои техни предимства пред пластмасовите камери като здравина, защита на SSNTD от светлина, не натрупват статичното електричество, влияещо върху калибровъчния коефициент [28] и др. (по-подробно в секция III.2 на дисертацията).

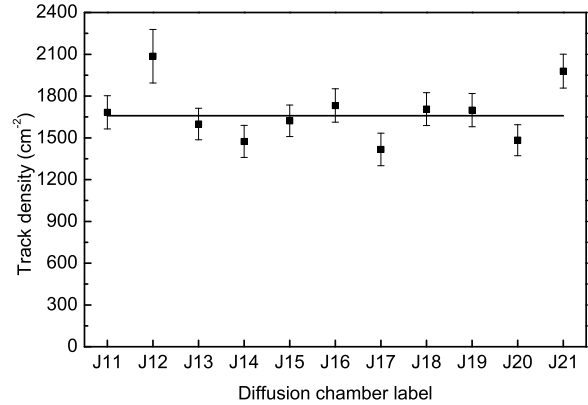
За калибрирането бяха използвани 10 пластмасови и 11 метални камери. За да се изследва влиянието на отворите на металните камери върху калибровъчния коефициент, бяха направени камери с различен брой и обща площ на отворите (вкл. без отвори), подробно описани в дисертацията. Фоновата плътност на следите за използваните SSNTD беше определена, като няколко детектора от същата партида, от която бяха поставени в камерите, бяха оставени необлъчени. По-нататък, те бяха обработени заедно с облъчените детектори. За облъчването беше изградена установка, позволяваща създаването в даден обем на атмосфера с добре определена концентрация на радон. Допълнително, концентрацията на радон беше измервана и измерените стойности записвани от радонов монитор AlphaGUARD. Опитната установка, експериментът по облъчването и изискванията към условията на облъчване са представени подробно в дисертацията (секция III.2).

След облъчването детекторите бяха ецвани и следите бяха броени визуално и автоматично. При автоматичното броене бяха използвани две компютърни програми, едната от които ("Track04") беше споменатата по-горе, а другата ("DGTrack") беше разработена по-късно за целите на автоматичното броене на електрохимично ецвани следи в Makrofol детектори [29].

При визуалното броене за всеки от детекторите бяха броени следите на най-малко 40 зрителни полета на микроскопа с площ $1.89 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-2}$ всяко и за всеки детектор беше определена средната плътност на следите и стандартното ѝ отклонение. На фигура III.3 са представени плътностите на следите за металните камери, определени чрез оптично броене. Както се вижда, не беше наблюдавана зависимост на плътността на следите от броя и размерите на отворите. Това позволява използване на камери без отвори, което осигурява лесна възпроизводимост при изработването на металните камери като същевременно ги прави по-надеждни от гледна точка на повреждане и разгерметизиране по време на измерване.

Процедурата по автоматичното броене следваше три основни стъпки. Първо, детекторите бяха поставени върху скенера. Второ, с помощта на софтуера на скенера бяха избрани и сканирани няколко полета от повърхността на детектора с площ 0.1 cm^{-2} , като изображенията бяха запазени на компютър. Трето, следите в изображенията бяха

Фигура III.3: Плътност на следите за детекторите от металните камери, определена чрез визуално броене. Неопределеностите са на ниво 1σ . С линия е представена средната стойност на плътността на следите. Камерите са подредени по нарастване на общата площ на отворите. Зависимост на плътността на следите от площта на отворите не се наблюдава [26].



преброени независимо с двете програми, при стандартно зададени настройки на програмите. Средната плътност на следите беше определена за всеки от детекторите, за всяка от програмите за броене. Сканирането на няколко малки полета, а не едно голямо (при стъпка 2) беше направено, за да се изследва дали следите са равномерно разпределени по повърхността на детектора. Нехомогенност на разпределението не беше наблюдавана. Това позволява сканиране на голямо поле от детектора без съображения за избора на позицията и размерите му спрямо повърхността на детектора. По този начин се улеснява и ускорява процеса на сканиране и се осигурява по-добра статистика при преброяване на следите.

Таблица III.1: Калибровъчни коефициенти за пластмасови и метални дифузионни камери при визуално броене и автоматично броене с програмите Track04 и DGTrack. Неопределеностите посочени в таблицата са ниво едно стандартно отклонение [26].

Режим на броене	Пластмасови камери k ($\text{cm}^{-2}\text{h}^{-1}\text{kBq}^{-1}\text{m}^3$)	Метални камери k ($\text{cm}^{-2}\text{h}^{-1}\text{kBq}^{-1}\text{m}^3$)
Визуално	2.41 ± 0.15	1.90 ± 0.12
Track04	1.50 ± 0.09	1.11 ± 0.07
DGTrack	1.55 ± 0.10	1.14 ± 0.07

Средните плътности на следите бяха използвани, за определяне на калибровъчните коефициенти за двата типа дифузионни камери за трите режима на броене (визуален и два автоматични), като резултатите са представени в таблица III.1. Неопределеността на всички калибровъчни коефициенти е по-добра от 10%, като се наблюдава добро съответствие между двата алгоритъма за автоматично броене. Въпреки че калибровъчните коефициенти за автоматично броене са по-малки от тези за визуално броене, това не влошава значително чувствителността на метода. За сметка на това, автоматичното броене позволява по-бързо и независимо от оператора определяне на концентрациите на радон. Калибрирането на металните дифузионни камери позволява използването им, което осигурява по-висока надеждност при измерванията на радон.

IV. Поликарбонатен метод за измерване на бета-радиоактивни благородни газове¹

Установено е, че някои поликарбонати (напр. Makrofol) имат свойството силно да абсорбират радон [30]. На базата на тази способност и на свойството на Makrofol на SSNTD, Пресиянов и съавтори предлагат метод за прецизни ретроспективни измервания на радон [15]. В основата на метода стои фактът, че широко използваните CD/DVD се произвеждат от този материал. Тъй като в повечето жилища и работни помещения се намират CD/DVD, то те могат да бъдат използвани за определяне на средната обемна активност на радон в помещението: Когато CD/DVD се намира в радон-съдържаща среда, поликарбонатният материал абсорбира радон от средата, като концентрацията на абсорбирания радон е пропорционална на концентрацията в околната среда. Абсорбираният радон по дифузионен път се разпределя в дълбочина на диска като същевременно се разпада. Получените при разпадането КПП остават фиксирани на мястото на генерирането си и също се разпадат. Радон и генерираните при разпадането му КПП ^{218}Po и ^{214}Po търпят алфа-разпадане. Излъчените алфа-частици формират следи в материала на диска. Плътността на следите на дадена дълбочина под повърхността на диска е пропорционална на средната за времето на облъчване обемна активност на радона на мястото, където е съхраняван диска. След подходяща химична обработка, следите стават видими и могат да бъдат преброени.

През 2004г. Пресиянов и съавтори установяват, че Makrofol притежава висока абсорбционна способност и за други благородни газове и предлагат метод за измерване на ^{85}Kr и ^{133}Xe във въздух [23]. При тези измервания, след края на облъчването се измерва бета- или гама-лъчението от абсорбирания РБГ. По-късно е показано, че високата абсорбционна способност на Makrofol може да бъде използвана успешно за измервания на концентрацията на радон във води [16, 13]. При тези измервания може да бъде регистрирано бета- или гама-лъчението от КПП ^{214}Pb и ^{214}Bi [16] или да се ецват следите от алфа-частиците [13]. Последното може да бъде използвано за измерване на ^{226}Ra във води след настъпване на "веково" равновесие между ^{226}Ra и ^{222}Rn [13].

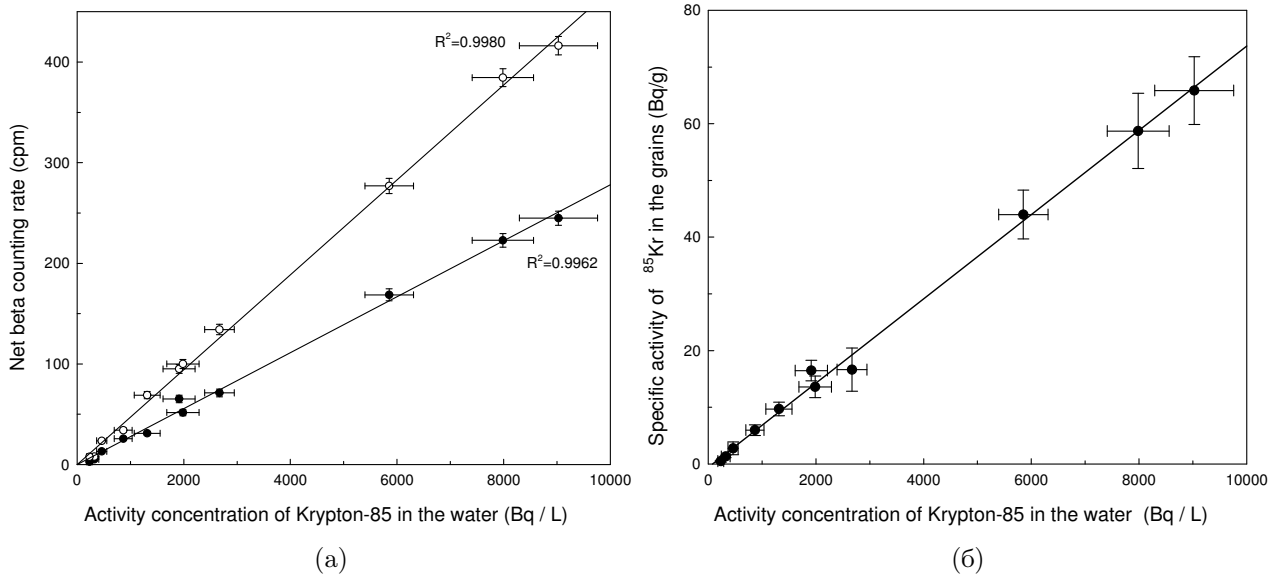
¹Тази част на автореферата е резюме на глава IV от дисертацията.

Предвид изложеното дотук състояние на поликарбонатния метод, възниква въпросът: Приложим ли е той и за други РБГ (освен радон), разтворени във вода? Друг съществен въпрос е свързан с количественото описание на разпределението на РБГ в поликарбонатните образци. Такова описание ще позволи измерената абсорбирана активност на РБГ в поликарбоната да бъде директно свързана с концентрацията на РБГ в облъчващата среда, т.е. прилагане на метода при различни условия, ограничени основно от възможността за измерване на абсорбираната активност. Освен това ще даде възможност за оптимизиране на условията на измерване – време на облъчване и измерване, най-подходящи размери на поликарбонатните образци за конкретните условия и т.н. Друг въпрос, свързан конкретно с бета-измерванията на РБГ е, как зависи ефективността на измерването от конкретните условия? Тъй като при преминаване през веществото, бета-частиците търпят постоянни загуби на енергия и се разсейват, то ефективността при бета-измервания зависи от разпределението на активността в поликарбоната и от енергийния спектър на източника. Затова беше поставена втората цел на дисертацията.

IV.1 Прилагане на поликарбонатния метод за измерване на ^{85}Kr във вода

Приложимостта на метода за измервания на други РБГ (освен радон) разтворени във вода, беше проверена като в еднакви херметични съдове (дрексели с обем 0.7L) бяха облъчени поликарбонати при различни концентрации на ^{85}Kr във води [31]. Тъй като криптонът е благороден газ, той лесно дегазира от водата. Затова бяха поставени два експеримента по прецизно дозиране на различни концентрации на ^{85}Kr във вода. При експериментите бяха взети мерки, гарантиращи неизпускане на активност от водата (подробно в секция IV.1 на дисертацията). Допълнително, за да се провери херметичността на съдовете и за да се определи по-точно концентрацията на ^{85}Kr , след края на облъчването, водата от всеки дрексел беше измерена гама-спектрометрично. Измерванията бяха проведени с детектор от свръхчист германий (HPGe, производител ORTEC, ефективност 24.9% и разделителна способност 1.9keV за гама-линията с енергия 1332keV на ^{60}Co) в геометрия "Marinelli" 450cm^3 , като за анализа беше използвана линията 514keV на ^{85}Kr . Пригответните активности бяха в три интервала: $(0.8\div 3)\text{kBq/L}$ (5 дрексела) при първия експеримент и $(0.2\div 0.5)\text{kBq/L}$ (3 дрексела) и $(5\div 10)\text{kBq/L}$ (3 дрексела) при втория. В съдовете бяха поставени и облъчени за едно и също време (330 часа) поликарбонатни образци – две пластинки всяка с размери $3.5\text{cm}\times 4.5\text{cm}$ и дебелина съответно 0.25mm и 0.70mm и 75g гранули с форма на елиптичен цилиндър с височина 2.65mm и полуоси 1.78mm и 1.17mm.

След края на облъчването, поликарбонатните пластинки бяха измерени чрез



Фигура IV.1: Зависимост на измереният сигнал от поликарбонатите от обемната активност на ^{85}Kr във водата. (а) Зависимост на чистата скорост на броене на пластинките от обемната активност на ^{85}Kr във водата при общо бета-броене на пластинки с дебелина 0.25mm (плътни кръгове) 0.7mm (незапълнени кръгове). (б) Зависимост на специфичната активност на ^{85}Kr в гранули от обемната активност на ^{85}Kr във водата. Неопределеностите са на ниво 1σ [31].

Таблица IV.1: Оценка на MDAC при измерване на ^{85}Kr във води чрез абсорбция в поликарбонати при продължителност на измерването t_m . За сравнение е дадена MDAC при директно измерване на 1L вода в херметичен съд Marinelli [31].

Детектор	t_m (h)	MDC (Bq/L)
Пластина 0.25mm	1	40
Пластина 0.70mm	1	25
Гранули 50g	8.3	65
Гранули 1L Marinelli	8.3	8
Вода 1L Marinelli	8.3	62

общо-бета броене, а гранулите – чрез гама-спектрометрия. За да може директно (без корекция за десорбция по време на измерването) да бъдат сравнени резултатите от измерванията на идентичните детектори от различните дрексели, началото и продължителността на измерванията трябва да съвпадат. При бета-измерванията, поликарбонатните пластинки бяха измервани веднага след изваждането им от водата на установка за измерване на ниски бета-активности УМФ-1500. При гранулите беше определена специфичната активност на ^{85}Kr абсорбиран в тях чрез гама-спектрометрични измервания в геометрия 50mL цилиндър поставен върху детектора. Както се вижда от фигура IV.1, беше наблюдавана много добра линейна корелация за двете дебелини пластинки и за гранули. На базата на тези резултати, за конкретните условия на облъчване и измерване за използваните детектори, бяха оценени MDAC за ^{85}Kr във води съгласно подхода на Currie [32] (табл. IV.1). За постигане на сравнима MDAC, при директно измерване на водна проба съдържаща ^{85}Kr , е необходимо да се измери 1L вода (геометрия Marinelli) за 8.3h (табл. IV.1). Такова

измерване изисква херметично затваряне на съда, в който се измерва пробата, т.к. ^{85}Kr бързо дегазира от водата.

Въз основа на получените резултати може да заключим, че методът е приложим за измерване на ^{85}Kr във води. Такива измервания могат да намерят приложение, например в АЕЦ при контрола на херметичността на топлоотделящите елементи по време на работа, както и при съхранението им в басейните за отработено гориво.

IV.2 Разработване, валидиране и приложение на теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати

При измерванията на ^{85}Kr във води чрез абсорбция в поликарбонати (виж по-горе) беше използван подход, при който условията на облъчване и измерване се запазваха едни и същи. Това се наложи, за да могат да се правят количествени оценки и сравнения, без да се налагат корекции за разлики във времената на облъчване и измерване, отчитащи процесите на сорбция и десорбция. Този подход е подходящ при лабораторни изследвания на метода, но не и при измервания в реални условия. Затова беше разработен теоретичен модел, описващ количествено процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати. Това позволява да се правят количествени измервания на концентрациите на РБГ в дадена среда, като се облъчи и измери поликарбонат при произволни, но известни условия.

IV.2.1 Теоретичен модел

Предложеният теоретичен модел [33] описва процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати при следните две предположения:

- При поставяне на поликарбонат в среда съдържаща РБГ, поликарбонатът абсорбира РБГ, като концентрацията $c_{pc}(t)$ на РБГ на повърхността на поликарбоната е пропорционална на концентрацията му $c(t)$ в средата: $c_{pc}(t) = Kc(t)$, където K е коефициентът на разпределение на съответния РБГ между дадената среда и поликарбоната. Прието е също, че РБГ е хомогенно разпределен в средата и изменението на концентрацията му зависи само от времето. Това приемане е коректно, когато характерните размери на поликарбонатните образци, използвани за измерване на РБГ, са много по-малки от дължината на дифузия L_D на РБГ в съответната среда. Това условие беше изпълнено при представените по-нататък експерименти.
- Транспортът на РБГ в поликарбоната се описва като процес на дифузия с отчитане

на радиоактивното разпадане на РБГ:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D\left(\frac{\partial^2 n}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 n}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 n}{\partial z^2}\right) - \lambda n \quad (\text{IV.1})$$

където $n(x, y, z, t)$ е атомната концентрация на РБГ в поликарбоната, D е коефициентът на дифузия на благородния газ в поликарбоната и λ е константата на разпадане на конкретния му изотоп.

Решението на диференциалното уравнение IV.1 описва разпределението на РБГ в поликарбонатен образец като функция на времето. Началното и граничното условия, съответстващи на горните предположения са:

- $n(x, y, z, t = 0) = n_0(x, y, z)$ – начално условие, съответстващо на известно разпределение $n_0(x, y, z)$ на РБГ в момента $t = 0$;
- $n(x, y, z, t)|_S = c_{pc}(t) = Kc(t)$ – гранично условие, съответстващо на динамично равновесие между концентрациите на РБГ на границата поликарбонат–обкръжаваща среда при хомогенно разпределение на РБГ в средата.

Диференциалното уравнение IV.1 е разгледано в литературата и се решава с помощта на функции на Green [34, 35]. Тъй като функцията на Green зависи от формата на тялото (поликарбоната) и само в някои случаи може да се представи аналитично, то по-нататъшните разглеждания са направени за два типа образци с определена геометрия – плоско-паралелна пластинка (пластинка) и цилиндър с основа кръг (гранула), за които функцията на Green може да се представи аналитично. Изборът на тези две геометрии беше определен от удобство при експериментална работа с образци с такава геометрия и наличие на готови такива образци на пазара. Разгледани са два случая на облъчване: режим А – облъчване при постоянна концентрация на РБГ в околната среда $c_{pc}(t) = C_{pc} = const$ и режим Б – експоненциално намаляваща, с константата на разпадане λ на конкретния РБГ $c_{pc}(t) = C_{pc}e^{-\lambda t}$, където $C_{pc} = K(A_V/\lambda)$ е концентрацията на РБГ на повърхността на поликарбоната в началния момент на облъчването, а A_V е началната обемна активност на РБГ в средата. Решението е описано подробно в секция IV.2.1 на дисертацията. Получени са аналитични изрази за разпределението на РБГ и абсорбираната активност в двата типа поликарбонати при режим на сорбция и десорбция за двата режима на облъчване. За пластинка с дебелина, много по-малка от другите ѝ две измерения, задачата се свежда до едномерна и изразите за двете величини са:

– за разпределението на РБГ в обема на пластинката:

$$n(x, t_s, t_d) = \frac{4DC_{pc}}{L} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}\right)}{\lambda_{2k+1} - \lambda^*} (e^{-\lambda^* t_s} - e^{-\lambda_{2k+1} t_s}) e^{-\lambda_{2k+1} t_d} \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L} x\right) \quad (\text{IV.2})$$

– за активността на РБГ, абсорбирана в пластинката:

$$A(t_s, t_d) = \frac{8\lambda K A_V V L_D^2}{L^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{(e^{-\lambda^* t_s} - e^{-\lambda_{2k+1} t_s})}{\lambda_{2k+1} - \lambda^*} e^{-\lambda_{2k+1} t_d} \quad (\text{IV.3})$$

където x е координата по направление на дебелината на пластинката, t_s и t_d са съответно времената на сорбция и десорбция, D е коефициента на дифузия на РБГ в поликарбоната, $L_D = \sqrt{D/\lambda}$ е дължината на дифузия на РБГ в поликарбоната, L и V са съответно дебелината и обема на пластинката, λ^* приема стойност 0 или λ съответно за режим А или Б, а величината λ_{2k+1} се дава с израза:

$$\lambda_{2k+1} = \lambda \left(1 + \left(\frac{(2k+1)\pi L_D}{L} \right)^2 \right) \quad (\text{IV.4})$$

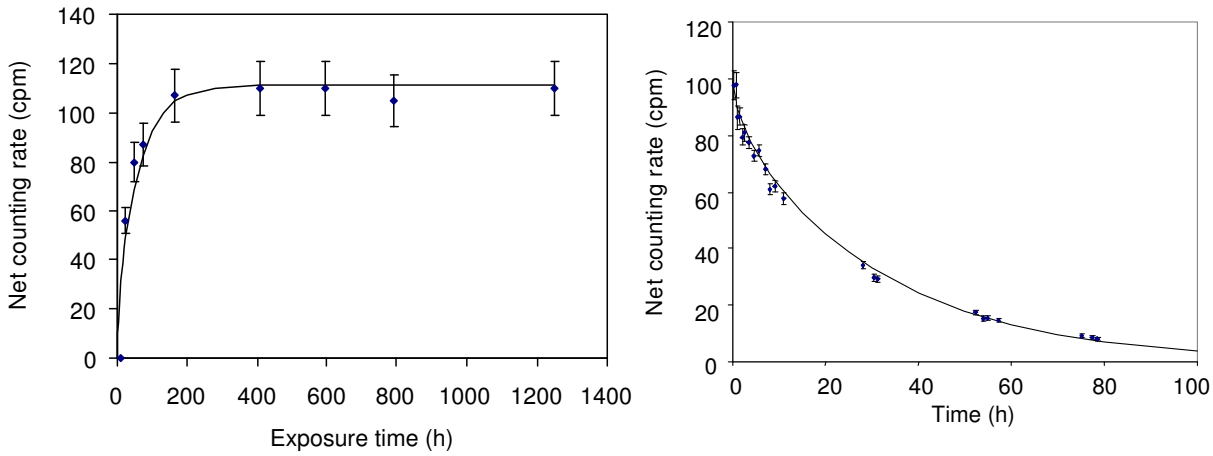
Изразите за тези величини за гранули също представляват суми от членовете на безкраен ред и са представени в секция IV.2.1 на дисертацията.

IV.2.2 Валидиране на теоретичния модел

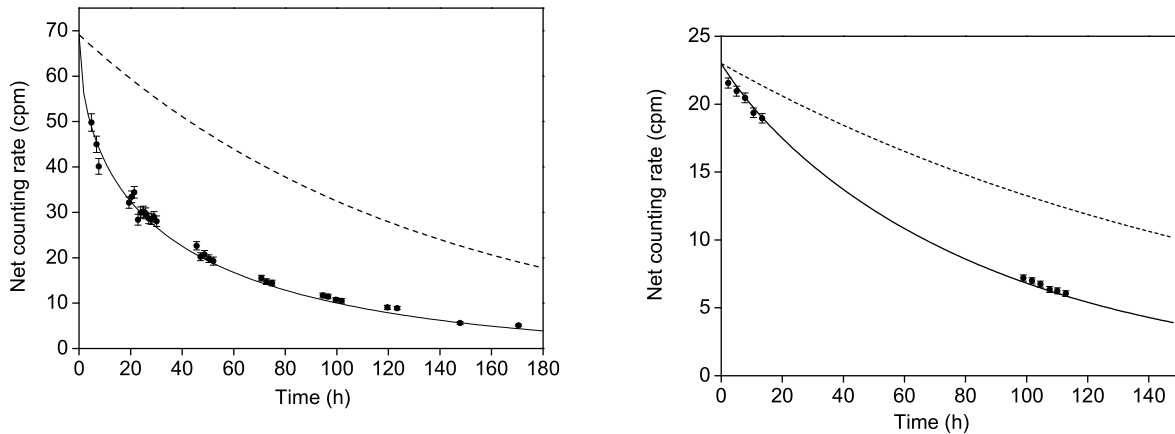
За валидирането на модела бяха проведени серии експерименти по облъчване на поликарбонати във въздушна или водна среда, съдържаща ^{85}Kr , ^{133}Xe или ^{222}Rn . След облъчването, сигналът от абсорбираната в поликарбонатите РБГ беше измерван чрез общо бета-броене (за пластинки) или чрез гама-спектрометрия (за пластинки и гранули). Тъй като изменението на активността в поликарбоната с времето не зависи от абсорбираната активност (виж изрази IV.2 и IV.3), при валидирането беше сравнявана времевата зависимост на експериментално получения сигнал и теоретично пресметнатата зависимост. Безкрайните суми, участващи в изразите за абсорбираната активност и за разпределението на РБГ в поликарбоната са сходящи, така че величините могат да бъдат получени с определена точност като се ограничи съответната сума. За валидирането на модела беше необходимо да се познават дължината на дифузия L_D на съответния РБГ в поликарбоната, а за по-нататъшни количествени пресмятания и коефициента на разпределение K на РБГ между съответната среда и поликарбоната. За целта бяха разработени и валидирани методи, позволяващи определяне на тези величини (виж част IV.2.3 на автореферата).

Експериментите по облъчване на поликарбонати с трите РБГ за валидирането на модела са подробно представени в секция IV.2.2 на дисертацията. Примери за резултатите от валидирането са представени на фигура IV.2. От доброто съгласуване на теоретичния модел с експерименталните резултати, наблюдавано при всички експерименти, можем да заключим, че предложения теоретичен модел много добре описва процесите на сорбция

и десорбция. Това позволява използването му за предварително планиране и оптимизиране на експерименти по измерване на РБГ с поликарбонати, както и при изследване на величини, свързани с дифузията и разтворимостта на РБГ в различни среди.



(а) Сорбция на ^{85}Kr от въздух в 0.7mm пластинка (б) Десорбция на ^{85}Kr от 0.5mm пластинка облъчена с във въздух за 596.4h при режим А



(в) Десорбция на ^{222}Rn от 0.3mm пластинка облъчена с във вода за 48h при режим Б (г) Десорбция на ^{133}Xe от 0.3mm пластинка облъчена с във вода за 383h при режим Б

Фигура IV.2: Зависимост на чистата скорост на броене от времето за сорбция или десорбция. С точки са дадени експерименталните резултати, а плътна линия – теоретично пресметнатата зависимост. (а) и (б) Общо бета-броене на пластинки. (в) и (г) Гама-спектрометрия на пластинки. За сравнение, с прекъснатата линия е показано как би намалявал сигналът, ако намаляването се дължи само на радиоактивно разпадане [33].

IV.2.3 Методи за определяне на коефициента на разпределение и дължина на дифузия на РБГ в поликарбонати, базирани на теоретичния модел

Изследването на коефициента на разпределение и дължината на дифузия (респ. коефициента на дифузия $D = \lambda L_D^2$) на РБГ за поликарбонати представлява интерес не само от гледна точка прилагане на гореизложения теоретичен модел. Тези характеристики пред-

ставяват интерес, например, при изследване на различни материали, използвани в строителството като "радонови бариери" [36, 37] или при измервания на радон, основаващи се на преминаването на радона през дифузионни мембрани [38, 37]. Представеният по-горе теоретичен модел, позволи разработването на сравнително прости методи за определяне на дължината на дифузия и коефициента на разпределение на РБГ за поликарбонати. Общата схема при тези методи е: първо поликарбонатен образец се облъчва контролирано в РБГ съдържаща среда, след което се измерва сигналът, дължащ се на разпадането на абсорбирания РБГ. При подходящо калибриране на детекторната система може да бъде получена активността, абсорбирана в поликарбоната като функция на времето и уравнение IV.3 да се реши спрямо търсената величина.

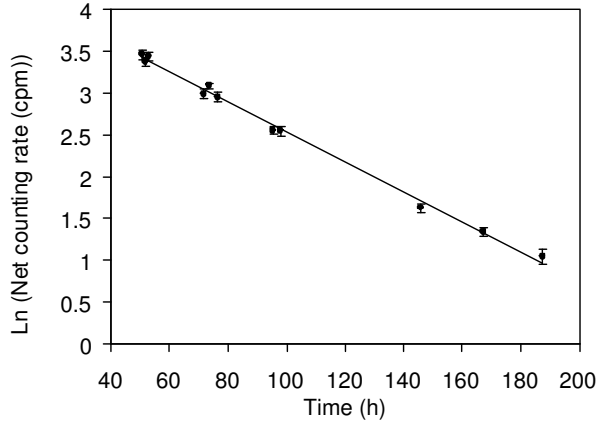
Методът за определяне на дължината на дифузия на РБГ в поликарбонати [33], беше разработен паралелно с валидирането на теоретичния модел. Той се основава на факта, че в израза IV.3 за активността, абсорбирана в поликарбоната, константите λ_{2k+1} нарастват с увеличаване на k , респективно членовете $e^{-\lambda_{2k+1}t_d}$ намаляват. Тогава, след достатъчно дълго време на десорбция t_d^{crit} , приносът на всички членове в сумата може да се пренебрегне спрямо първия и израза за активността като функция на времето за десорбция се свежда до една експонента. В полулогаритмичен мащаб тази зависимост се линеаризира:

$$\ln(A(t_d)) = -\lambda_1 t_d + const \quad (IV.5)$$

където λ_1 е константата λ_{2k+1} при $k = 0$. Изразите пред $e^{-\lambda_1 t_d}$ означени с $const$, не зависят от времето на десорбция и остават постоянни. Тогава, ако се проследи зависимостта на абсорбираната активност $A(t_d)$ от времето на десорбция t_d , константата λ_1 се определя като ъгловия наклон на правата $\ln A(t_d)$. След като се определи λ_1 , от израза IV.4 може да се определят L_D и D ($D = \lambda L_D^2$):

$$L_D = \frac{L}{\pi} \sqrt{\frac{\lambda_1}{\lambda} - 1} \quad (IV.6)$$

За прилагането на този метод за определяне на L_D и D не е необходимо да се познават величините включени в константата $const$ и не е необходимо да се определя абсорбираната в поликарбоната активност. Достатъчно е да се знае, че ефективността ε при измерванията при проследяване на зависимостта $A(t_d)$ не зависи от времето на десорбция. Условието за прилагане на метода са подробно описани в секция IV.2.3 на дисертацията включително и критерий за определяне на t_d^{crit} . Методът е приложен за определяне на дължината на дифузия на ^{85}Kr , ^{222}Rn и ^{133}Xe (фигура IV.3 и таблица IV.2).



Фигура IV.3: Определяне на дължината на дифузия за ^{85}Kr . Сигналът при десорбция е проследен след време на десорбция по-голямо от t_d^{crit} . Полученият сигнал е представен в полулогаритмичен мащаб и е фитиран с права. Наклонът на правата е използван за определяне на дължината на дифузия на ^{85}Kr в Makrofol [33].

Таблица IV.2: Дължини на дифузия на ^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn в поликарбонати и коефициенти на разпределение на ^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn за границата поликарбонат/въздух и поликарбонат/вода. Дадените неопределености са на ниво 1σ [39].

РБГ	L_D (mm)	Среда	K
^{85}Kr	10.5 ± 0.5	Въздух	0.81 ± 0.05
		Вода	11.9 ± 0.8
^{133}Xe	0.0999 ± 0.0030	Въздух	4.25 ± 1.21
^{222}Rn	0.0692 ± 0.0036	Въздух	25.4 ± 4.9
		Вода	100 ± 15

За разлика от метода за определяне на L_D , **методът за определяне на коефициента на разпределение** на РБГ между дадена среда и поликарбонат [39] изисква пълно познаване на условията на облъчване, както и на дължината на дифузия на съответния РБГ в поликарбоната. При този метод, поликарбонатният образец се облъчва за определено време t_s в дадената среда, съдържаща РБГ с известна концентрация. След това абсорбираната в образца активност се измерва в геометрия, за която е калибриран съответният детектор. Тогава, ако е известна дължината на дифузия, уравнението IV.3 за активността в поликарбоната може да се реши спрямо коефициента на разпределение K :

$$K = \frac{\bar{A}(t_s, t_{d1}, t_{d2})(t_{d2} - t_{d1})}{V A_V 8\lambda \frac{L_D^2}{L^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{(e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1} t_s}) (e^{-\lambda_{2k+1} t_{d1}} - e^{-\lambda_{2k+1} t_{d2}})}{\lambda_{2k+1} - \lambda}}{\lambda_{2k+1}}} \quad (\text{IV.7})$$

където $\bar{A}(t_s, t_{d1}, t_{d2})$ е средната за времето на измерване $[t_{d1}, t_{d2}]$ активност на РБГ в образца. Условията, които трябва да са изпълнени при прилагане на метода са описани в секция IV.2.3 на дисертацията. Методът беше приложен за определяне на коефициента на разпределение на ^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn за поликарбонат/въздух и на ^{85}Kr и ^{222}Rn за поликарбонат/вода. Резултатите са представени в таблица IV.2.

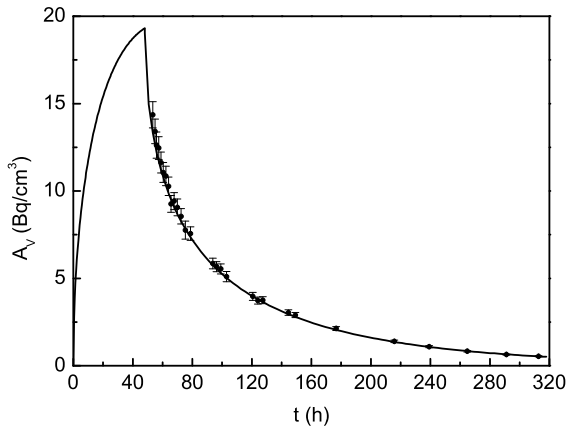
Метод за едновременно определяне на дължината на дифузия и коефициента на разпределение. Прилагането на описания по горе метод за определяне

Таблица IV.3: В таблицата са представени дължините на дифузия L_D и коефициентите на разпределение K за ^{222}Rn за трите неизвестни материала и Makrofol. За сравнение е дадена и дължината на дифузия на ^{222}Rn в Makrofol, определена в [42]. Пресметнати са коефициентите на дифузия D и ефективните коефициенти на дифузия p . Неопределеностите са на ниво 1σ [40].

Материал	L_D (mm)	D (m^2/s)	K	$p = KD$ (m^2/s)
A	0.721 ± 0.009	$(1.09 \pm 0.02) \times 10^{-12}$	2.21 ± 0.13	$(2.40 \pm 0.15) \times 10^{-12}$
B	1.463 ± 0.033	$(4.48 \pm 0.10) \times 10^{-12}$	2.17 ± 0.14	$(9.72 \pm 0.66) \times 10^{-12}$
C	1.437 ± 0.094	$(4.32 \pm 0.28) \times 10^{-12}$	2.40 ± 0.22	$(1.04 \pm 0.12) \times 10^{-11}$
Makrofol	0.0508 ± 0.0010	$(5.40 \pm 0.12) \times 10^{-15}$	27.6 ± 1.6	$(1.48 \pm 0.14) \times 10^{-13}$
Makrofol [42]	0.0517 ± 0.0008			

на дължината на дифузия на РБГ в различни поликарбонати доведе до откриването на един негов недостатък: В някои случаи, времето t_d^{crit} , което трябва да се изчака преди да се определи L_D , е много голямо. За това време активността в поликарбоната намалява дотолкова, че зависимостта ѝ от времето на десорбция практически не може да бъде проследена. Затова беше предложен друг метод [40], който елиминира този недостатък, като същевременно позволява едновременно (или поотделно) да бъдат определени и дължината на дифузия, и коефициентът на разпределение. При този метод също се проследява зависимостта на активността в поликарбоната от времето на десорбция. След това, получената зависимост се фитира с нелинейна функция, представляваща теоретичната зависимост $A(t_s, t_d)$ (IV.3), параметризирана по L_D и K , а сумирането се ограничава до няколко члена. В секция IV.2.3.3 на дисертацията е предложен и числено валидиран критерий за ограничаване на броя членове в сумата. Демонстрирано е предимството на този метод за определяне на L_D пред представения по-горе метод чрез линейно фитиране в полулогаритмичен мащаб.

Методът за едновременно определяне на K и L_D беше валидиран експериментално при участието ни в междулабораторно сравнение по определяне на ефективния коефициент на дифузия ($p = KD$) на ^{222}Rn в различни полимерни материали [41]. При експериментите бяха облъчени пластинки от три неизвестни материала "А", "В" и "С" и пластинки Makrofol с дебелини 0.25mm и 0.7mm (експериментите са подробно описани в секция IV.2.3.3 на дисертацията). Величините K , L_D , D и p , определени за трите материала и 0.25mm пластинки Makrofol, са представени в таблица IV.3. За сравнение, в таблицата е дадена дължината на дифузия за Makrofol според [42]. Както се вижда, двете стойности добре съвпадат в рамките на неопределеностите. Добро съответствие между нашите и резултатите на другите лаборатории беше наблюдавано след публикуване на резултатите от сравнението [41]. За допълнително сравнение, резултатите за 0.25mm Makrofol бяха използвани за пресмятане на теоретичната зависимост на активността в за 0.7mm Makrofol и сравнени с експериментално получената зависимост (фигура IV.4).



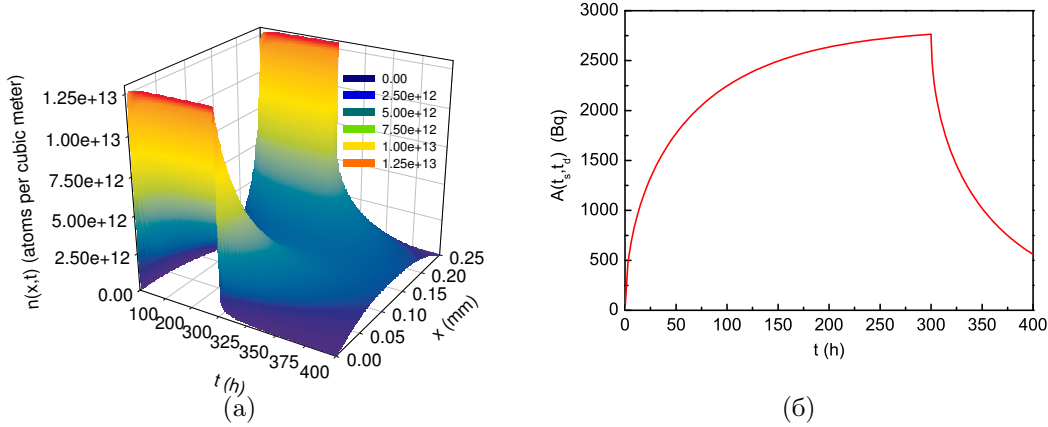
Фигура IV.4: Обемна активност на ^{222}Rn , абсорбиран в Makrofol пластинки с дебелина 0.7mm. С точки са представени експерименталните резултати при проследяване на десорбцията (неопределеностите са на ниво 1σ). С линия е представена теоретичната зависимост на абсорбираната обемна активност. За пресмятанятия са използвани стойностите на L_D и K , определени за пластинки с дебелина 0.25mm (таблица IV.3).

IV.2.4 Компютърен код, базиран на теоретичния модел. Изследване сходимостта на безкрайните суми и точността на пресмятанятия при ограничаването им. Оптимизиране при планиране на експерименти

След като беше успешно експериментално валидиран, теоретичният модел може да бъде използван за числено моделиране при планиране и оптимизиране на експерименти по сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати при произволни условия на облъчване. Точността при численото моделиране, обаче, зависи от сходимостта на сумите на безкрайните редове, включени в изразите за разпределението и абсорбираната активност на РБГ в поликарбонатите (виж формули IV.2 и IV.3). Сходимостта на тези суми силно зависи от конкретния РБГ, условията на облъчване и геометрията на поликарбонатите. В някои случаи тези суми са бързо сходящи и ограничаване до първите няколко члена при сумирането дава точно решение. В други случаи, ограничаване на сумата дори до $\sim 10^6$ члена не е достатъчно. Това наложи разработването на компютърен код, който да прави пресмятания на базата на теоретичния модел и да позволява контрол на точността.

Представеният тук компютърен код беше разработен на езика за програмиране FORTRAN 77 за пресмятания само за поликарбонати с форма на пластинки. В основната версия на кода, коефициентите на разпределение и дължините на дифузия бяха предварително зададени, т.к. експериментите, които трябваше да описва, бяха с три изотопа на РБГ (^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn), разтворени във въздух или във вода. Фиксирани бяха и двата режима (А и Б) на облъчване. Останалите величини, свързани с облъчването и размерите на пластинката трябва да бъдат зададени чрез входен файл. В този файл също се задава до каква стойност на сумационния индекс k да се ограничат различните пресмятания.

Компютърният код дава възможност за пресмятане на абсорбираната активност и разпределението ѝ в поликарбонатна пластинка като функция на времето (виж

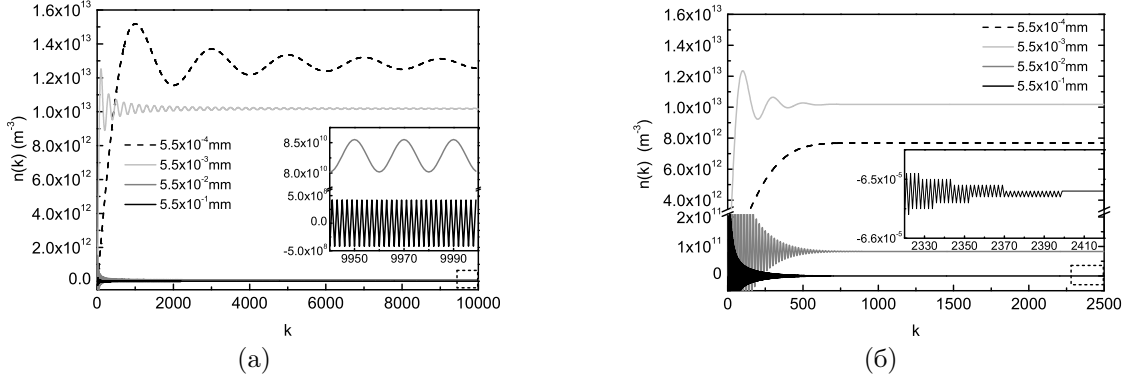


Фигура IV.5: (а) Разпределение на концентрацията $n(x, t_s, t_d)$ на РБГ в поликарбонатна пластинка и (б) съответстващата ѝ абсорбирана активност $A(t_s, t_d)$ като функции на времето. Пластинка с дебелина $L=0.25\text{mm}$, облъчвана с ^{222}Rn във въздух при режим А, $T_s=300\text{h}$, $T_d=100\text{h}$. За 300 часа ^{222}Rn достига равновесното си разпределение, но поради малката му дължина на дифузия, концентрацията му на повърхността остава много по-голяма отколкото в дълбочина.

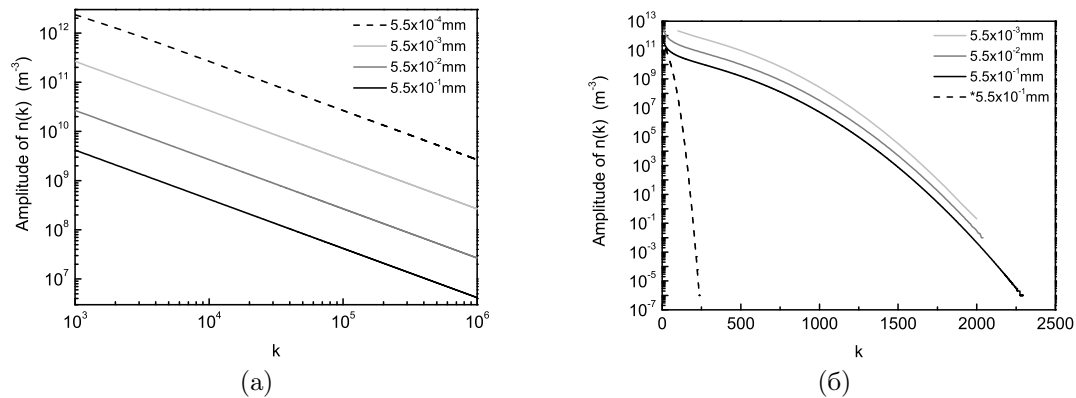
фигура IV.5). Повече примери за работата на кода са представени в дисертацията – голямата част от теоретичните зависимости на сорбция, десорбция и разпределения на РБГ в поликарбонатни пластинки, представени на фигурите в дисертацията, са пресметнати с кода. Освен тези величини, кодът позволява пресмятането на величини, свързани с оценка на сходимостта и точността при пресмятане на дълбочинните профили. Тази възможност (подробно описана в секция IV.2.4.1 на дисертацията) беше използвана за изследване сходимостта на сумите и грешката при пресмятанията с кода, както и на параметрите от които зависят [43]. Изследванията бяха проведени при пресмятанията на дълбочинното разпределение $n(k, x, t_s, t_d)$ на РБГ в пластинката, тъй като сходимостта при тези пресмятания е по-бавна (секция IV.2.4.2 на дисертацията). Както се вижда от фигура IV.6, $n(k)$ осцилира около истинската си стойност с амплитуда $n_A(k)$ намаляваща с увеличаване на k . При изследванията беше установено, че:

1. При сорбция, за фиксирана дълбочина x и момент t_s , зависимостта $n_A(k)$ в двойно логаритмичен мащаб се линеаризира, като наклонът на правата не зависи от x, t_s , вида РБГ и режима на облъчване.
2. При сорбция, за фиксирани k и x , зависимостта $n_A(t_s)$ следва зависимостта на концентрацията на РБГ на повърхността на поликарбоната $n_A(t_s) \sim n(x=0, t_s)$.
3. При сорбция и при десорбция, за фиксирани k, t_s и t_d , зависимостите $n_A(x/L)$ за $0 < x < L/2$ и $n_A((L-x)/L)$ за $L/2 < x < L$ се линеаризират в двойно логаритмичен мащаб, като наклона на правата не зависи от k, t_s, t_d , вида РБГ и режима на облъчване.
4. При десорбция зависимостта $n_A(k)$ в полулогаритмичен мащаб се описва добре с полином от втора степен. Сходимостта на сумата при пресмятане на $n(x, t_s, t_d)$ при десорбция зависи от времето на десорбция, като за по-големи времена на десорбция сумата е по-

бързо сходяща (фигура IV.7(б)). Въпреки много по-бързата сходимост при десорбция (в сравнение с тази при сорбция), $n(x, t_s, t_d)$ не винаги може да се пресметне (фигура IV.6(б)). Това ограничение се задава от машинната точност, с която се правят пресмятанията.



Фигура IV.6: Зависимост на пресметнатата концентрация на РБГ $n(k; x, t_s, t_d)$ от сумационния индекс k за пластинка с дебелина $L=1.1$ mm, за различни дълбочини x . (а) При $t_s=10$ h, поради малка дължина на дифузия, концентрацията на ^{222}Rn в средата на пластинката не може да бъде пресметната при $k < 10^5$. (б) Въпреки много по-бързата сходимост при десорбция, концентрацията не може да бъде пресметната и в режим на десорбция при $t_s=10$ h $t_d=30$ s, поради ограничение наложено от машинната точност при пресмятанията и малка концентрация на ^{222}Rn в дълбочина на пластинката [43].



Фигура IV.7: Зависимости $n_A(k, x)$ за пластинка с дебелина $L=1.1$ mm (облъчване с ^{222}Rn във въздух, режим А). (а) При сорбция ($T_s=1000$ h), зависимостта на амплитудата от k в двойно логаритмичен мащаб е линейна, като наклона на правата не зависи от времето на сорбция или вида на РБГ. (б) В режим на десорбция ($T_s=1000$ h, $T_d=36$ s за непрекъснатите линии и $T_d=1$ h за пунктираната*) амплитудата намалява много по-бързо отколкото при сорбция, като в полулогаритмичен мащаб, при k по-голямо от дадена стойност, зависимостта се описва добре с полином от втора степен. С увеличаване на времето на десорбция, сумата сходяща по-бързо [43].

Наблюдаваните зависимости могат да послужат за определяне границите на приложимост на кода, както и за по-нататъшното му усъвършенстване:

- Амплитудата n_A може да бъде използвана като оценка на грешката на пресметната стойност $n(k; X, T_s, T_d)$ при дадената стойност на k . От зависимостите 1, 2 и 3 може да се изведе аналитичен израз за n_A :

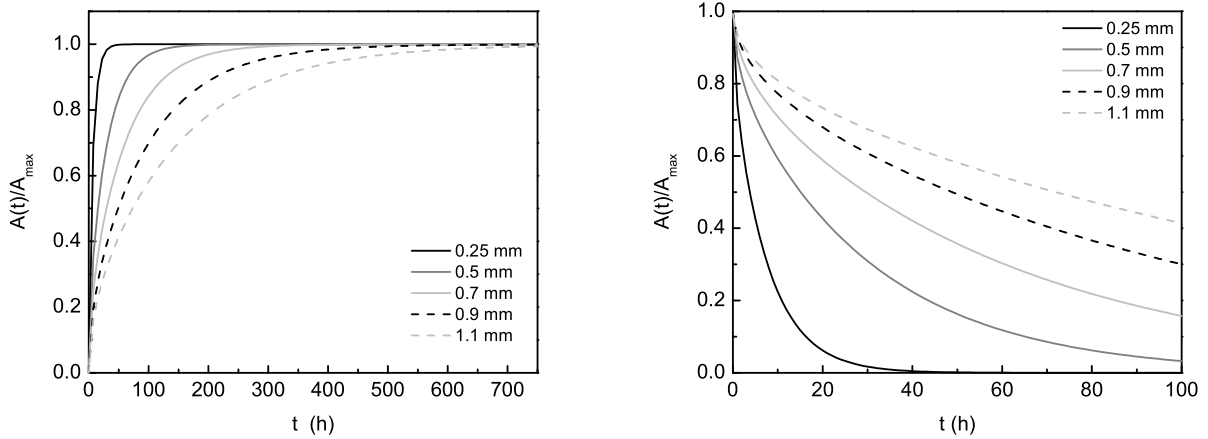
$$\frac{n_A(x, k, t_s)}{n(x=0, t_s)} = \frac{B}{k^\alpha \left(\frac{x(L-x)}{L^2}\right)^\beta} \quad (\text{IV.8})$$

където $B=0.103\pm 1\%$ $\alpha=0.99995\pm 0.01\%$ $\beta=0.997\pm 0.5\%$ са безразмерни константи, определени емпирично и независещи от вида РБГ.

- Въз основа на така оценената грешка може да се оцени максималната дълбочина, при по-голяма от която $n(x)$ не може да се пресметне за конкретните условия.
- При десорбция максималната дълбочина може да се оцени на база на машинната точност. Например при по-голяма от тази дълбочина концентрацията на РБГ отнесена към максималната пресметната концентрация става по малка от машинната точност умножена по подходящо избрана константа.
- Идея за подобряване на точността при пресмятанията на $n(x)$ е да се използва периодичността на $n(k)$. Ако за всяка дълбочина се подбира стойност на k кратна на периода на $n(k)$ (но все пак близка до зададената във входния файл), тогава грешката ще е много по-малка, отколкото стойността при фиксирано k .

При измерванията на РБГ чрез абсорбция в поликарбонатни пластинки, първоначално пластинката се облъчва в среда съдържаща РБГ, след което облъчването се прекратява и известно време след това се измерва сигналът от разпадането на абсорбирания РБГ. Този сигнал (активността на абсорбирания РБГ) зависи от времето на облъчване t_s , времето от края на облъчването до началото на измерването t_d , продължителността на измерването t_m и дебелината на пластинката L . Разбира се, зависи и от коефициента на разпределение K и дължината на дифузия L_D , но те са фиксирани за конкретния РБГ за конкретното измерване. Зависимостта на измервания сигнал от t_s , t_d , t_m , L позволява оптимизиране при планиране на условията на облъчване и измерване, с цел подобряване резултата от измерването. Компютърният код, представен по-горе, позволява да се правят бързи и точни пресмятания като се варира всяка от тези величини.

На фигура IV.8 е показана зависимостта на абсорбирана активност на ^{85}Kr от времето на сорбция $A(t_s)$ и от времето на десорбция $A(t_d)$ след достигане на хомогенно разпределение в пластинки с различна дебелина, нормирани към максималната абсорбирана активност в съответната пластинка. От фигурата се вижда че, ако трябва да се облъчва кратко време, по-добре е да използват по-тънки пластинки. От друга страна, ако измерването не може да започне скоро след края на облъчването или трябва да бъде с по-голяма продължителност, то при използване на по-тънки пластинки измерването може да бъде провалено, поради пълна загуба на абсорбираната активност. Освен това, за всяка



Фигура IV.8: Зависимост на пресметнатата абсорбирана активност на ^{85}Kr от времето на сорбция $A(t_s)$ (ляво) и от времето на десорбция $A(t_d)$ (дясно) след достигане на хомогенно разпределение в пластинки с различна дебелина. Пресмятанятията са за облъчване при режим А. Активността и в двата случая е нормирана към максималната абсорбирана активност във всяка пластинка, съответстваща на хомогенно разпределение [31].

дебелина може да се определи максимално време на облъчване, при което се достига максимална активност и по-дълго облъчване не би довело до увеличаване на абсорбираната активност. Повече примери са дадени в секция IV.2.4.3 на дисертацията.

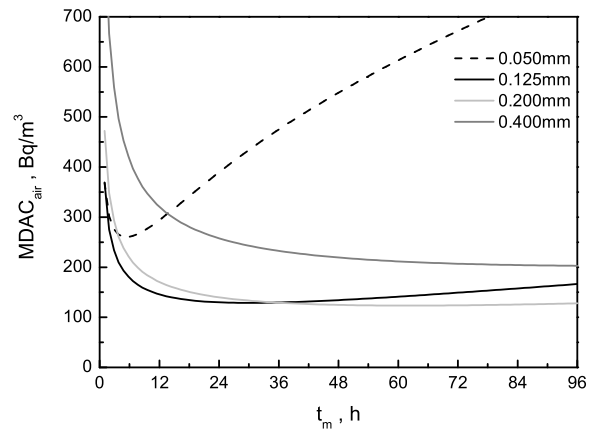
Аварията на 13.04.2011г. в АЕЦ-Фукушима, липсата на информация за концентрациите на ^{133}Xe в атмосферата в близост до авариралата централа [44], както и оскъдната информация докъде е достигнал ^{133}Xe облак [44, 45], мотивираха изследването и оценката на $MDAC_{air}$ при измерване на ^{133}Xe във въздух чрез абсорбция в пластинки и последващо гама-спектрометрично измерване [46]. При изследването беше оценено *a priori* нивото на детектиране L_d при гама-спектрометрично измерване на поликарбонатни пластинки в различни геометрии за време на измерване T_m . Изведен е израз за $MDAC_{air}(t_m)$ и с помощта на кода беше изследвана тази зависимост при различни времена на сорбция t_s и различни дебелини на пластинките L (фигура IV.9):

$$MDAC_{air}(t_m) = \frac{1}{K} \frac{\frac{L_d(T_m)}{\varepsilon\eta} \sqrt{\frac{T_m}{t_m}}}{1/t_m \int_{t_d}^{t_d+t_m} f(t_s, \tau_d) d\tau_d} \quad (\text{IV.9})$$

където ε е ефективността за регистрация на γ -квантите на ^{133}Xe с енергия 81keV при дадените условия на измерване, а η е квантовия добив на γ -квантите с тази енергия. Функцията $\int_{t_d}^{t_d+t_m} f(t_s, \tau_d) d\tau_d$ отчита времевата зависимост на измервания сигнал и е пресметната с компютърния код. Извеждането на израза IV.9 и условията при изследването са подробно представени в секция IV.2.4.4 на дисертацията. При изследването беше установено, че е достижимо $MDAC_{air}=130\text{Bq}/\text{m}^3$ при разумни условия на облъчване и измерване. Това

MDAC е по-голямо, но сравнено с концентрациите на ^{133}Xe , достигнали до западното крайбрежие на Северна Америка ($30\text{-}70\text{Bq/m}^3$, разстояние $\sim 7000\text{km}$) [44, 45]. Следователно, методът е приложим при изследване разпространението на замърсявания вследствие на ядрени аварии. Методът е приложим и при контрол на изпусканията на АЕЦ при нормален режим на работа – изискването за MDAC за такива методи е 10^4Bq/m^3 [47].

Фигура IV.9: Зависимост $MDAC_{air}(t_m)$ при измерване на ^{133}Xe във въздух. Пресмятанията са за пластинки с дебелини от 0.05mm до 0.40mm при облъчване 96h при постоянна концентрация на ^{133}Xe и измерени гама-спектрометрично веднага след края на облъчването ($t_d=0$) в геометрия 1L Marinelli с помощта на HPGe детектор с относителна ефективност 24.9% [46].

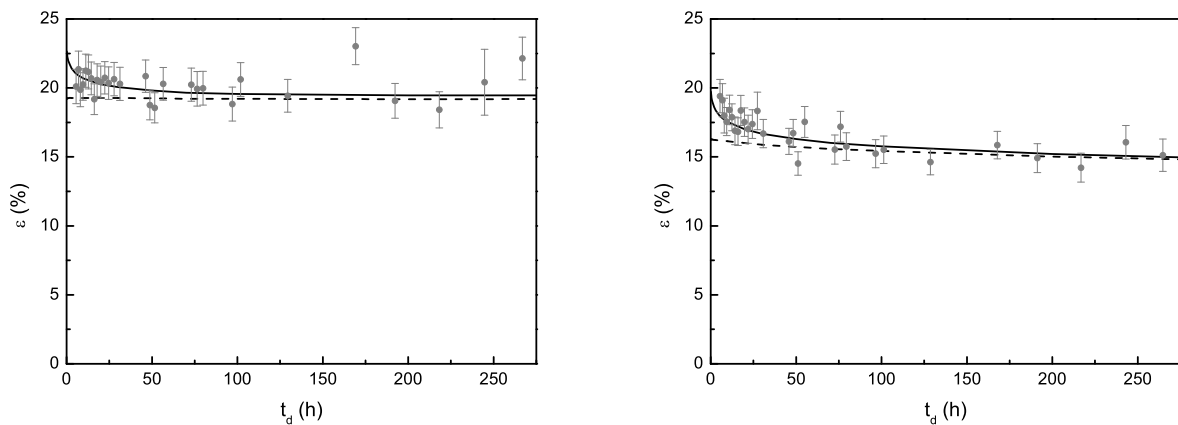


IV.3 Разработване и валидиране на числен подход за определяне на ефективността при измерване на бета-радиоактивни благородни газове

При измерванията на бета-радиоактивни благородни газове (бета-РБГ), след края на облъчването на поликарбонатите, се регистрират излъчените от поликарбоната бета-частици (при ^{222}Rn се регистрират бета-частиците на КПП ^{214}Pb и ^{214}Bi). Чистият измерен сигнал c_0 (коригиран с фон) и абсорбираната в поликарбоната активност A са свързани чрез ефективността на измерването $\varepsilon = c_0/A$. Ефективността ε при регистриране на бета-частици зависи от разпределението на активността в поликарбоната, от формата на бета-спектъра и от геометрията на измерването. Формата на спектъра на частиците достигащи детектора също зависи от разпределението, а то зависи от времената на сорбция и десорбция. Следователно може да се очаква, че ефективността е сложна функция на времето $\varepsilon(t_s, t_d)$. Затова беше разработен числен подход за определяне на $\varepsilon(t_s, t_d)$ [48]. При този подход $\varepsilon(t_s, t_d)$ се определя чрез Монте Карло симулации с кода PENELOPE v.2006 [49]. Този код е добре валидиран [50, 51, 52] и позволява симулации на транспорт на електрони, позитрони и фотони в сложни геометрии със зададен материален състав [50, 49]. Кодът също така позволява детайлна, удар-по-удар симулация на транспорта на електрони с проследяване на историята на събитията [49, 53, 52], каквато беше използвана при проведените от нас симулации. При симулациите се използва детайлно описание на геометрията на измерване, като разпределението на активността в поликарбоната при конкретните условия

на измерване се пресмята чрез компютърния код, описан в част IV.2.4 на автореферата. Освен ефективността ε , подходът позволява определяне и на други величини, свързани с регистрирането на бета-частици. Подходът и възможностите му са подробно описани в секция IV.3 на дисертацията.

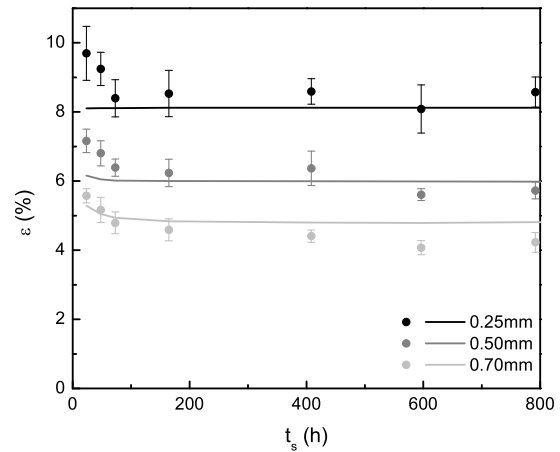
Подходът беше приложен и сравнен с експерименти по измерване на ^{85}Kr и ^{222}Rn чрез абсорбция в поликарбонатни пластинки и измерване с нискофонова установка за общо бета-броене УМФ-1500. При сравнението беше установено, че при измерване на смесен алфа-бета-източник (какъвто е случая на ^{222}Rn), ГМ-детекторът на УМФ-1500 е чувствителен и към алфа-частиците. Затова беше разработен и валидиран подход за оценка на ефективността на детектора за алфа-частици и оценка на влиянието ѝ върху общата ефективност при измерване на смесен източник [54] (подробно в секция IV.3.2 на дисертацията). Важно е да се отбележи, че и при двата подхода ефективностите се определят без свободни параметри. Резултати от сравнението са показани на фигури IV.10 и IV.11. От доброто съответствие между Монте Карло и експериментално определените ефективности, заключаваме че предложения подход може да бъде прилаган успешно за определяне на ефективността и числено оптимизиране при измерване на бета-РБГ чрез абсорбция в поликарбонати (примери в секция IV.3.4 на дисертацията). Освен това, беше наблюдавано, че след определено време на сорбция (за ^{85}Kr) и десорбция (за ^{222}Rn) ефективността остава постоянна или се изменя бавно. Постоянната ефективност за поликарбонати с фиксирана дебелина позволява измервания без необходимост от определяне на ефективността за конкретните условия, което способства широкото прилагане на метода.



Фигура IV.10: Сравнение между експериментално и Монте Карло получените ефективности на УМФ-1500 при измерване на ^{222}Rn за пластинки с дебелина 0.25mm (ляво) и 0.70mm (дясно). Ефективностите са получени при режим на десорбция след 48h облъчване при режим Б. Със символи са представени експерименталните резултати, с прекъснатата линия Монте Карло получената ефективност за регистриране само на бета-частици, с непрекъснатата линия – Монте Карло ефективността след отчитане на ефективността на УМФ-1500 за регистриране на алфа-частици. Неопределеностите на експерименталните точки са на ниво 1σ [48].

В някои случаи измерването не може да бъде проведено достатъчно скоро след

Фигура IV.11: Сравнение между експериментално и Монте Карло получените ефективности на УМФ-1500 при измерване на ^{85}Kr за пластинки с дебелина 0.25mm, 0.50mm и 0.70mm. Ефективностите са получени при режим на сорбция. Със символи са представени експерименталните резултати, а с непрекъснатата линия числено получената ефективност. Неопределеностите на експерименталните точки са на ниво 1σ [48].



края на облъчването. Тогава активността на РБГ в поликарбоната може да намалее до толкова, че не може да бъде измерена. Затова беше проведен пилотен експеримент, целящ изследване на възможността за забавяне на десорбцията на РБГ от поликарбоната чрез замразяване в течен азот (подробно в секция IV.3.4 на дисертацията). Експериментът показва, че замразяването в течен азот напълно спира десорбцията на ^{222}Rn от пластинките. Може да се очаква, че при температура на течния азот (77.4K) процесът на десорбция може да бъде спряен или поне силно забавен и за други благородни газове (Ar, Kr, Xe и Rn) т.к. те са твърди вещества² при тази температура. Това позволява измерване на РБГ значително след края на облъчването, ограничено единствено от периода на полуразпадане на съответния РБГ. Освен това, този подход може да бъде използван при разделяне на различни РБГ, в случаи когато са абсорбирани повече от един бета-РБГ: ако замразяването спира напълно десорбцията, то намаляването на сигнала ще се дължи само на радиоактивно разпадане на абсорбираните РБГ. Тогава, ако времевата зависимост на сигнала се деконволюира с експоненти с константи на разпадане на потенциално абсорбираните РБГ, тогава техните активности могат да бъдат оценени. Тази възможност може да намери приложение при измерване на РБГ в близост до горивните елементи в АЕЦ, където по съотношението на изотопите на РБГ се съди за състоянието на горивните елементи.

²Температурите на топене на тези благородни газове са: Ar (84K), Kr (117K), Xe (161K), Rn (202K) [55].

V. Заключение

Представената в настоящата дисертация работа е посветена на измерванията на радиоактивни благородни газове (РБГ). Работата може да се раздели на две основни направления:

1. Развитие на метода на дифузионните камери за кумулативни измервания на ^{222}Rn ;
2. Разработване и изследване на наскоро предложения, поликарбонатен метод за измерване на РБГ в различни среди.

В увода на дисертацията е показана необходимостта от кумулативни измервания на ^{222}Rn – той е естествен РБГ, идентифициран като първи по тежест причинител на белодробен рак, след тютюнопушенето. Поради големите вариации в концентрациите му, представителни за оценка на риска са продължителните, кумулативни измервания в обитаемите помещения (облъчването на човек от ^{222}Rn се дължи основно на облъчването в жилища и на работното място). В глава II са разгледани най-популярните методи за измерване на ^{222}Rn , като са представени предимствата и недостатъците им. Основно внимание е обърнато на методите, използващи твърдотелни детектори на следи и по-конкретно методът на дифузионните камери – това е най-широко използвания метод за кумулативни измервания. Сравнението му с останалите методи, определят метода на дифузионните камери като най-подходящ за такива измервания. Разгледани са основните етапи при прилагането на този метод.

Глава III представя работата, посветена на развитието на метода на дифузионните камери, извършена в лаборатория ”Дозиметрия и лъчезащита” с участието на дисертанта. След като в продължение на десетилетие следите в SSNTD на дифузионните камери се броят визуално, предложен е и е разработен метод за автоматично броене [24]. Методът се основава на сканиране на химически ецваните детектори Kodak-Pathe LR-115/II с помощта на компютърен скенер, запазване на изображението и преброяване на следите със специално разработен алгоритъм за броене. Автоматичното броене е сравнено с визуално. Въпреки намаляването на ефективността на броене ($\sim 40\%$), автоматичното броене ускорява процеса на броене, прави го независим от оператора и позволява броене на следите от по-голяма площ (което позволява компенсиране на по-ниската ефективност на броене). Демонстрирана е приложимостта на метода за броене и при други SSNTD [24].

Предложена е процедура за калибриране на дифузионни камери [26]. Процедурата е приложена при калибриране на традиционно използваните в лабораторията пласт-

масови дифузионни камери, както и за нов тип камери – метални, имащи няколко важни предимства пред пластмасовите. При броене на следите е използвано визуално броене и автоматично броене с два алгоритъма, разработени във Физически факултет на Софийски университет. Резултатите от двата алгоритъма се съгласуват добре, което позволява използването и на двата алгоритъма. Калибровъчните коефициенти за двата типа камери и двата типа броене са в рамките на $1.1-2.4\text{cm}^{-2}\text{Bq}^{-1}\text{h}^{-1}\text{m}^3$, с неопределеност по-добра от 10%. При калибрирането са изследвани и метални камери с различен брой и размери на отворите [26]. Резултатите показват, че броят и размерите на отворите не влияят на процеса на дифузия на радон в камерата. Това позволява по-лесното изработване на метални камери, без спазване на специална конструкция. В следствие на извършената дотук работа е налице завършена процедура (вкл. калибриране), позволяваща прецизни кумулативни измервания на радон с два типа дифузионни камери.

В глава II е представено разнообразието от научни области, в които измерванията на РБГ представляват интерес. Това са области като радиоекология, ядрена енергетика, ядрена безопасност, науки за Земята (геология, геофизика, хидрология). Разгледани са методите, прилагани в тези науки, като някои от тези методи са безалтернативни. Паралелно с тях е разгледан и предложеният наскоро поликарбонатен метод, основаващ се на високата абсорбционна способност на някои поликарбонати за благородни газове. В много от случаите е показано, че този метод има потенциал да бъде използван като допълващ или алтернативен на използваните до момента. В някои случаи дори се оказва, че методът е по-подходящ от досега използваните. До момента обаче, методът е прилаган само на пилотно ниво. Затова са очертани насоките, в които трябва да се работи, за да се разкрие пълният му потенциал.

В глава IV е показана приложимостта на метода за измерване на ^{85}Kr във вода [31]. Оценена е минималната детектируема концентрация на ^{85}Kr за конкретните условия на измерване [31]. Фактът, че методът е приложим за ^{85}Kr и ^{222}Rn във вода, дава основание да считаме, че ще е приложим и за други РБГ разтворени във вода. Представена е работата посветена на разработването на метода за измерване на РБГ чрез абсорбция в поликарбонати и регистриране на бета- или гама-лъчението от абсорбирания РБГ. Разработен е и експериментално е валидиран теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати [33]. Единствените свободни параметри в модела са коефициентът на разпределение и дължината на дифузия (коефициента на дифузия) на РБГ в поликарбоната, като и двата параметъра са физични величини, подлежащи на точно определяне. Теоретичният модел позволява определяне на абсорбираната активност в поликарбонат с определена форма и разпределението на тази активност като функция на времената на сорбция и десорбция и размерите на поликарбоната. Аналитичните изрази

за тези величини представляват суми от членовете на безкрайни редове. Затова е разработен компютърен код, който позволява прецизното им пресмятане. Кодът е валидиран чрез сравнение с експериментални данни. С помощта на кода е изследвана сходимостта на сумите като функция на сумационния индекс, до който се ограничава сумирането на безкрайните редове. Изведен е аналитичен израз за оценка на точността на пресмятанията като функция на сумационния индекс [43]. Въз основа на тези изследвания са предложени възможности за подобрения в кода, водещи до подобряване на точността. Показана е приложимостта на кода при планиране и оптимизиране на експерименти по измерване на РБГ [31, 46, 48]. С помощта на кода е оценена минималната детектируема концентрация на ^{133}Xe във въздух, при измерване чрез абсорбция в поликарбонат и последващо гама-спектрометрично измерване [46]. При конкретните условия оцененото MDAC е 100Bq/m^3 .

Въз основа на теоретичния модел са разработени методи за определяне на коефициентът на разпределение и дължината на дифузия на РБГ в полимерни материали [33, 39, 40]. Методите са приложени за определяне на дължините на дифузия на ^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn в поликарбонати, за определяне на коефициентът на разпределение на ^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn между въздух и поликарбонат и за определяне на коефициентът на разпределение на ^{85}Kr и ^{222}Rn между вода и поликарбонат. Приложимостта на методите е потвърдена и от успешното ни участие в международно сравнение по определяне на ефективен коефициент на дифузия на ^{222}Rn в различни полимерни материали [41]. Участието ни се отличи с добро съответствие между нашите резултати и тези на повечето участници. Резултатите ни съвпадат и с изнесените (впоследствие) литературни данни [41].

В секция IV.3. е представен проблемът при определяне на ефективността при измерване на бета-РБГ чрез абсорбция в поликарбонати и регистриране на β -частиците, излъчени от поликарбоната при разпадането на съответния бета-РБГ. Предложен е числен подход за оценка на тази ефективност [48], който се реализира в три стъпки: 1. Пресмятане на разпределението на РБГ в поликарбоната; 2. Точно описание на геометрията на измерване и на детекторната система с помощта на пакета PENGEOM от кода PENELOPE; 3. Използване на пресметнатото разпределение, литературни данни за енергийния спектър на β -частиците на съответния РБГ и описанието на геометрията при детайлна Монте Карло симулация с PENELOPE за определяне на ефективността. Важно е да се отбележи, че при този подход за определяне на ефективността, няма свободни параметри. Подходът е валидиран като е сравнен с експериментални резултати от измервания на ^{85}Kr и ^{222}Rn чрез абсорбция в поликарбонатни пластинки и измерване с установка за общо бета-броене с детектор ГМ-брояч с тънък входящ прозорец [48]. За случая на радон са наблюдавани систематични разлики, обяснени с чувствителността на детектора към α -частиците на КПП на ^{222}Rn . Предложен е и валидиран е подход за оценка на приноса на α -частиците

към сигнала от детектора [54]. След отчитане на този принос, се наблюдава много добро съвпадение на числената оценка с експерименталните резултати [48]. Предложеният подход позволява оценка на ефективността при измерване на бета-РБГ при произволни условия на облъчване и измерване. Установено е, че след известно време на сорбция за $^{85}\text{Kг}$ ефективността става постоянна, а при десорбция за ^{222}Rn в широк интервал от времена на десорбция ефективността се изменя слабо [48]. Съществуването на такива условия на постоянна във времето ефективност би позволило измервания без необходимост от калибриране за конкретните условия.

Предложен е подход, позволяващ забавяне или дори спиране на процеса на десорбция на РБГ от поликарбоната [48]. Подходът се основава на замразяване на поликарбоната след края на облъчването. По този начин се намалява загубата на активност от поликарбоната, което е важно в случаите, когато измерването не може да започне веднага след облъчването. Демонстрирано е успешното прилагане на подхода в експеримент с ^{222}Rn .

Приноси

Приноси, които дисертантът защитава в представената дисертация:

1. Валидиран е и е изследван новопредложения алгоритъм за автоматично броене на химически ецвани следи в твърдотелни детектори на следи Kodak Pathe LR115/II сканирани с компютърен скенер. Показано е, че алгоритъмът е приложим и за химически ецвани следи и в друг тип SSNTD – Makrofol.
2. Проведено е калибриране на два типа дифузионни камери (пластмасови и метални) със SSNTD при визуално и автоматично броене на следите. Калибровъчните коефициенти са определени с неопределеност по-добра от 10%.
3. Показано е, че методът за измерване на РБГ чрез абсорбция в поликарбонати, е приложим за измервания на $^{85}\text{Kг}$ във води.
4. Експериментално е валидиран новопредложеният теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати. Моделът позволява пресмятането на абсорбираната активност и разпределението ѝ в поликарбонат.
5. На базата на теоретичния модел е разработен компютърен код, позволяващ пресмятания с контролирана точност. Изведен е аналитичен израз за грешката при пресмятанията. С помощта на кода е оценена MDAC за ^{133}Xe във въздух при измерване чрез абсорбция в поликарбонати и гама-спектрометрия.

6. Разработен метод позволяващ определяне на коефициента на разпределение K и/или дължината на дифузия L_D (коефициента на дифузия D) на РБГ в поликарбонати. С него е определен ефективния коефициент на дифузия ($p = KD$) на ^{222}Rn в различни полимерни материали, при успешното ни участие в международно сравнение.
7. Предложен е и е валидиран подход за числено определяне на ефективността при измерване на РБГ чрез абсорбция в поликарбонати и общо бета-броене. Предложен е и е валидиран метод за оценка на приноса на α -частици към сигнала от общо бета-броене, в случай на смесен източник – какъвто е случая с ^{222}Rn .
8. Изследвана е възможността за забавяне и спиране на десорбцията на РБГ от поликарбоната чрез съхраняване при ниски температури, с оглед на възможността да се прожеждат измервания значително след края на облъчването.

Публикации във връзка с дисертацията

Публикации в списания

1. L. Tsankov, D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, I. Dimitrova. Automatic Counting of Chemically Etched Tracks by Means of a Computer Scanner. *Rad. Meas.*, 39:557-559, 2005. (библ. изт. [24], секция III.1 на дисертацията).
2. S. Georgiev, D. Pressyanov, K. Mitev, I. Dimitrova. Calibration of Diffusion Chambers for Measuring ^{222}Rn in Air. *BgNS Trans.*, 12(1):3-6, 2008. (библ. изт. [26], секция III.2 на дисертацията).
3. K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, T. Boshkova, V. Zhivkova. Measurement of Krypton-85 in Water by Absorption in Polycarbonates. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 603:491-494, 2009. (библ. изт. [31], секции IV.1 и IV.2.4.3 на дисертацията).
4. D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, I. Dimitrova. Sorption and Desorption of Radioactive Noble Gases in Polycarbonates. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 598:620-627, 2009. (библ. изт. [33], секции IV.2.1, IV.2.2, IV.2.3 на дисертацията).
5. D. Pressyanov, K. Mitev, I. Dimitrova, S. Georgiev. Solubility of Krypton, Xenon and Radon in Polycarbonates. Application for Measurement of Their Radioactive Isotopes. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 629:323-328, 2010. (библ. изт. [39], секция IV.2.3 на дисертацията).
6. D. Pressyanov, S. Georgiev, I. Dimitrova, K. Mitev, T. Boshkova. Determination of the Diffusion Coefficient and Solubility of Radon in Plastics. *Rad. Prot. Dosim.*, 145(2-3):123-126, 2011. (библ. изт. [40], секция IV.2.3 на дисертацията).
7. S. Georgiev, K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, T. Boshkova. Numerical modelling of the activity concentration measurements of beta-radioactive noble gases by absorption in

polycarbonates and external beta-counting. *Rad. Meas.* accepted (библ. изт. [48], секция IV.3 на дисертацията).

Доклади на конференции

1. С. Георгиев, И. Димитрова, Т. Бошкова, К. Митев, Д. Пресиянов. Определяне на ефективността за регистрация на алфа-частици на установка за измерване на ниски бета-активности УМФ-1500. В *Сборник с доклади от XX НАЦИОНАЛЕН НАУЧЕН СИМПОЗИУМ с международно участие МЕТРОЛОГИЯ И МЕТРОЛОГИЧНО ОСИГУРЯВАНЕ*, 283-289, Созопол, България, Септември 2010. (библ. изт. [54], секция IV.3 на дисертацията).

2. С. Георгиев, К. Митев, Д. Пресиянов, Г. Герганов, И. Димитрова. Компютърен код за прецизно пресмятане на активността и дълбочинното разпределение на радиоактивни благородни газове абсорбирани в поликарбонати. В *Сборник с доклади от XXI НАЦИОНАЛЕН НАУЧЕН СИМПОЗИУМ с международно участие МЕТРОЛОГИЯ И МЕТРОЛОГИЧНО ОСИГУРЯВАНЕ*, 278-283, Созопол, България, Септември 2011. (библ. изт. [43], секция IV.2.4.2 на дисертацията).

3. S. Georgiev, K. Mitev, D. Pressyanov, T. Boshkova, I. Dimitrova. Measurement of ^{133}Xe in Air by Absorption in Polycarbonates – Detection Limits and Potential Applications. *IEEE NSS/MIC Conference record: NP1.M-85*, Valencia, Spain, 23-29 October 2011 (библ. изт. [46], секция IV.2.4.4 на дисертацията).

Библиография

- [1] Brookhaven National Laboratory. National nuclear data center: Chart of nuclides. <http://www.nndc.bnl.gov/>.
- [2] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. Sources and effects of ionizing radiation*. UN Publications, New York, NY, USA, 1993.
- [3] World Health Organization. WHO handbook on indoor radon - a public health perspective. <http://www.who.int/en/>.
- [4] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. Sources and effects of ionizing radiation*. UN Publications, New York, NY, USA, 2000.
- [5] International Commission on Radiological Protection. *Protection Against Radon-222 at Home and at Work*. ICRP Publication 65. *Annals of the ICRP* 23 (2), 1993.
- [6] Commission of the European Communities. Commission recommendation of 21 february 1990 on the protection of the public against indoor exposure to radon (90/143/euratom).
- [7] H. Synnott and D. Fenton. *ERRICCA 2 Report: An Evaluation of Radon Reference Levels and Radon Measurement Techniques and Protocols in European Countries*. Radiological Protection Institute of Ireland, March 2005.
- [8] J. M. Zielinski and Z. Carr. *Meeting Report of The 1st Meeting of National Experts for WHO's International Radon Project - 17-18 Jan 2005*. Geneva, Switzerland.
- [9] S. Przyborowski and W. Rönhsch. Putting the ICRP recommendations on radon into national practice: Possibilities and problems. *Env. Internat.*, 22:S1093–S1097, 1996.
- [10] Министерски съвет. Наредба за основните норми за радиационна защита. *Държавен вестник*, 73, 2004.
- [11] Environmental Protection Agency. *National Primary Drinking Water Regulations*. Federal Register, Washington, DC, USA, 2000.
- [12] Commission of the European Communities. Commission recommendation of 20 december 2001 on the protection of the public against exposure to radon in drinking water supplies (notified under document number c(2001) 4580). *Official Journal of the European Union*, L 344/85, 2001.
- [13] I. Dimitrova, K. Mitev, D. Pressyanov, S. Georgiev, and T. Boshkova. Measurement of ^{222}Rn and ^{226}Ra by absorption of radon in polycarbonates and etching alpha-tracks. *Rad. Meas.*, 46:119–126, 2011.
- [14] Министерски съвет. Наредба No7 за показатели и норми за определяне качеството на течащите повърхностни води. *Държавен вестник*, 96, 1986.
- [15] D. Pressyanov, A. Van Deynse, J. Buysse, A. Poffijn, and G. Meesen. Polycarbonates: A new retrospective radon monitor. In *Proceedings of IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe.*, pages 716–722, Cedex, France, 1999. International Radiation Protection Association.
- [16] D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, E. Hristova, and K. Mitev. Measurement of radon-222 in water by absorption in Makrofol. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 574:202–204, 2007.
- [17] D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, and K. Mitev. Measurements of ^{222}Rn by absorption in polycarbonates - research and practice. In *Proceedings of the American Association fo Radon Scientists and Technologists 2008 International Symposium.*, Las Vegas, NV, USA, September 14-17 2008. AARST. (Available on: <http://www.aarst.org/proceedings/2008/>).
- [18] M. Heim, A. Fritsch, A. Schuh, A. Shore, and M. Thoennessen. Discovery of the krypton isotopes. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 96:333–340, 2010.
- [19] Y. Dubasov and N. Okunev. Krypton and xenon radionuclides monitoring in the northwest region of russia.

- Pure Appl. Geophys.*, 167:487–498, 2010.
- [20] International Atomic Energy Agency. *Review of Fuel Failures in Water Cooled Reactors*. IAEA NUCLEAR ENERGY SERIES No. NF-T-2.1. IAEA, Vienna, Austria, 2010.
- [21] K. Winger, J. Feichter, M. B. Kalinowski, H. Sartorius, and C. Schlosser. A new compilation of the atmospheric ^{85}Kr inventories from 1945 to 2000 and its evaluation in a global transport model. *J. Env. Rad.*, 80:183–215, 2005.
- [22] Paul R. J. Saey. The influence of radiopharmaceutical isotope production on the global radioxenon background. *J. Env. Rad.*, 100:396–406, 2009.
- [23] D. Pressyanov, K. Mitev, and V. Stefanov. Measurement of ^{85}Kr and ^{133}Xe in air by absorption in Makrofol. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 527:657–659, 2004.
- [24] L. Tsankov, D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, and I. Dimitrova. Automatic counting of chemically etched tracks by means of a computer scanner. *Rad. Meas.*, 39:557–559, 2005.
- [25] G. Somogyi. Processing of plastic track detectors. *Nucl. Track Det.*, 1(1):3–18, 1977.
- [26] S. Georgiev, D. Pressyanov, K. Mitev, and I. Dimitrova. Calibration of diffusion chambers for measuring ^{222}Rn in air. *BgNS Trans.*, 12(1):3–6, 2008.
- [27] J. L. Picolo, D. Pressyanov, P. Blanchis, M. Barbier, N. Michielsen, D. Grassin, V. Voisin, and K. Turek. A radon 222 traceability chain from primary standard to field detectors. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. B*, 52:427–434, 2000.
- [28] D. Pressyanov, I. Rusinov, and G. Simeonov. Radon progeny deposition in track-detection diffusion chambers. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 435(3):509 – 513, 1999.
- [29] K. Mitev, Y. Madzhunkov, G. Gerganov, I. Dimitrova, S. Georgiev, and D. Pressyanov. Automatic counting of electrochemically etched tracks in compact disks. application to retrospective measurements of Rn-222. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 57:300–308, 2010.
- [30] H. Möre and L.M. Hubbard. ^{222}Rn absorption in plastic holders for alpha track detectors: A source of error. *Rad. Prot. Dosim.*, 74:85–91, 1997.
- [31] K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, T. Boshkova, and V. Zhivkova. Measurement of Krypton-85 in water by absorption in polycarbonates. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 603:491–494, 2009.
- [32] L.A. Currie. Limits for qualitative detection and quantitative determination: Application to radiochemistry. *Anal. Chem.*, 40:586–593, 1968.
- [33] D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, and I. Dimitrova. Sorption and desorption of radioactive noble gases in polycarbonates. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 598:620–627, 2009.
- [34] А. Н. Тихонов and А. А. Самарский. *Уравнения математической физики*. Наука, Москва, СССР, 1977.
- [35] Хр. Христов. *Математически методи на физиката*. Наука и изкуство, София, България, 1967.
- [36] R. L. Fleischer. Permeability of caulking compounds to ^{222}Rn . *Health Phys.*, 62(1):91–95, 1992.
- [37] M. Ďurčík and F. Havlík. Experimental study of radon and thoron diffusion through barriers. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 209(2):307–313, 1996.
- [38] V. Labeled, A. Rannou, and G. Tymen. Study of ^{222}Rn permeation through polymer membrains: Application to continuous measurement of ^{222}Rn in water. *Health Phys.*, 63(2):172–178, 1992.
- [39] D. Pressyanov, K. Mitev, I. Dimitrova, and S. Georgiev. Solubility of krypton, xenon and radon in polycarbonates. application for measurement of their radioactive isotopes. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 629:323–328, 2011.
- [40] D. Pressyanov, S. Georgiev, I. Dimitrova, K. Mitev, and T. Boshkova. Determination of the diffusion coefficient and solubility of radon in plastics. *Rad. Prot. Dosim.*, 145(2-3):123–126, 2011.
- [41] K. Rovenská and M. Jiránek. 1st international comparison measurement on assessing the diffusion coefficient of radon. *Rad. Prot. Dosim.*, 145:127–132, 2011.
- [42] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Poffijn, G. Meesen, and A. Van Deynse. The compact disk as radon detector – a laboratory study of the method. *Health Phys.*, 84:642–651, 2003.
- [43] С. Георгиев, К. Митев, Д. Пресиянов, Г. Герганов, and И. Димитрова. Компютърен код за прецизно пресмятане на активността и дълбочинното разпределение на радиоактивни благородни газове абсорбирани в поликарбонати. In *Сборник с доклади от XXI НАЦИОНАЛЕН НАУЧЕН СИМПОЗИУМ с международно участие МЕТРОЛОГИЯ И МЕТРОЛОГИЧНО ОСИГУРЯВАНЕ.*, pages 278–283, Созопол, България, Септември 2011. Технически Университет – София, Български Метрологичен Институт, Съюз на Метролозите в България, АЕЦ Козлудуй, Издателство ”ГУ-София”.

- [44] T. W. Bowyer, S. R. Biegalski, M. Cooper, P. W. Eslinger, D. Haas, J. C. Hayes, H. S. Miley, D. J. Strom, and V. Woods. Elevated radionon detected remotely following the Fukushima nuclear accident. *J. Env. Rad.*, 102:681–687, 2011.
- [45] L. E. Sinclair, H. C. J. Seywerd, R. Fortin, J. M. Carson, P. R. B. Saull, M. J. Coyle, R. A. Van Brabant, J. L. Buckle, S. M. Desjardins, and R. M. Hall. Aerial measurement of radionon concentration off the west coast of Vancouver Island following the Fukushima reactor accident. *J. Env. Rad.*, 102:1018–1023, 2011.
- [46] S. Georgiev, K. Mitev, D. Pressyanov, T. Boshkova, and I. Dimitrova. Measurement of ^{133}Xe in air by absorption in polycarbonates – detection limits and potential applications. In *IEEE NSS/MIC Conference record*, pages NP1.M–85, Valencia, Spain, October 2011.
- [47] Commission of the European Communities. Commission recommendation of 18 december 2003 on standardised information on radioactive airborne and liquid discharges into the environment from nuclear power reactors and reprocessing plants in normal operation (notified under document number c(2003) 4832). *Official Journal of the European Union*, L 2/36, 2004.
- [48] S. Georgiev, K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, and T. Boshkova. Numerical modelling of the activity concentration measurements of beta-radioactive noble gases by absorption in polycarbonates and external beta-counting. *Rad. Meas.*, 2012. accepted.
- [49] F. Salvat, J. M. Fernández-Varea, and J. Sempau. PENELOPE-2006: A code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport. *Issy-les-Moulineaux, France: OECD/NEA Data Bank.*, 2006. <http://www.nea.fr/lists/penelope.html>.
- [50] J. Sempau, J.M. Fernandez-Varea, E. Acosta, and F. Salvat. Experimental benchmarks of Monte Carlo code PENELOPE. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. B*, 207:107–123, 2003.
- [51] M. Vilches, S. García-Pareja, R. Guerrero, M. Anguiano, and A. M. Lallena. Monte Carlo simulation of the electron transport through thin slabs: A comparative study of PENELOPE, GEANT3, GEANT4, EGSnrc and MCNPX. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sec. B*, 254:219–230, 2007.
- [52] K. Mitev. *Numerical modeling of the processes in proportional counters used for absolute measurement of activity concentration of Krypton-85*. PhD thesis, University Toulouse III "Paul Sabatier", Toulouse, France, 2005.
- [53] F. Salvat and J. M. Fernández-Varea. Overview of physical interaction models for photon and electron transport used in Monte Carlo codes. *Metrologia*, 46:S112–S138, 2009.
- [54] С. Георгиев, И. Димитрова, Т. Бошкова, К. Митев, and Д. Пресиянов. Определяне на ефективността за регистрация на алфа-частици на установка за измерване на ниски бета-активности УМФ-1500. In *Сборник с доклади от XX НАЦИОНАЛЕН НАУЧЕН СИМПОЗИУМ с международно участие МЕТРОЛОГИЯ И МЕТРОЛОГИЧНО ОСИГУРЯВАНЕ.*, pages 283–289, Созопол, България, Септември 2010. Технически Университет – София, Български Метрологичен Институт, Съюз на Метролозите в България, АЕЦ Козлудуй, Издателство "ГУ-София".
- [55] Royal Society of Chemistry. Visual elements periodic table. <http://www.rsc.org/chemsoc/visualelements/>.

