

**INSTYTUT FIZYKI JĄDROWEJ**  
**im. H. Niewodniczańskiego**  
**Kraków.**

---

RAPORT NR 1687/AP

**ANALIZA PROMIENIOTWÓRCZOŚCI**  
**NIEKTÓRYCH MATERIAŁÓW BUDOWLANÝCH**  
**Z OBSZARU MAŁOPOLSKI**

**Joanna Bogacz, Teresa Cywicka-Jakiel,**  
**Jadwiga Mazur, Jerzy Łoskiewicz, Jan Swakoń,**  
**Grzegorz Tracz**

Zakład Fizyki Środowiska i Transportu Promieniowania  
Instytut Fizyki Jądrowej

KRAKÓW 1994

WYDANO NAKŁADEM  
INSTYTUTU FIZYKI JĄDROWEJ  
IM. HENRYKA NIEWODNICZAŃSKIEGO  
KRAKÓW, UL. RADZIKOWSKIEGO 152

Kopia offsetowa, druk i oprawa: DRUKARNIA IFJ  
Współpraca wydawnicza: SEKCJA WYDAWNICTW  
DZIAŁU INFORMACJI NAUKOWEJ IFJ

# Abstract

*In the paper are presented the results of building materials analysis connected with radiation protection. The concentration of natural radioactive elements (k, U, Th) and the values of  $f^1$  and  $f^2$  coefficients are measured for these materials. The values for ceramic building materials and for cellular concretes are composed. The utility of  $f^2$  parameter is unformally discussed.*

## 1 Wstęp

W kraju o takim położeniu geograficznym jak Polska, jego mieszkańcy większość czasu (ok. 80%) [1] spędzają wewnątrz budynków. Ściany, podłogi i stropy tych budynków, jak zresztą wszystkie materiały i przedmioty na Ziemi, emitują promieniowanie jonizujące. Natężenie tego promieniowania może być różne. Źródłem jego są zarówno stałe jak i gazowe naturalne pierwiastki promieniotwórcze. Podstawowe znaczenie mają radioaktywne izotopy potasu ( $K-40$ ), szeregu uranowego (pochodne  $U-238$ ) i szeregu torowego (pochodne  $Th-232$ ). Specjalną rolę odgrywa gazowy radon ( $Rn-222$ ). Od stężenia radonu w glebie, na której osadowiony jest budynek oraz od koncentracji stałych pierwiastków promieniotwórczych w murach budynku zależy wielkość dawki, jaką otrzymują mieszkańcy danego budynku, a więc i pośrednio wartość dawki populacyjnej dla danego regionu. Dziś wiemy już, że przeważnie głównym źródłem dawek promieniowania jest radon ulatniający się z gruntu. Jako przykład można przytoczyć Rys.1, na którym przedstawiona jest ekshalacja radonu ze ścian i podłogi w domu parterowym [2].

Ekshalacja z podłogi obejmuje radon pochodzący z gruntu i jest 10 razy większa od produkcji radonu w ścianach. Jednakże i promieniowanie gamma z materiałów budowlanych oraz ekshalacja z nich radonu wnoszą swój wkład i czasem odgrywają istotną rolę.

Pojawia się oczywiste pytanie: **Jak szkodliwe są wysokie stężenia radonu w mieszkaniach.**

Największe badania dotyczące szkodliwości radonu przeprowadzono w Karolinska Institut w Sztokholmie (1993) [2]. W czasie ich prowadzenia przejrzano dane dotyczące 1360 osób ze Szwecji w wieku 35-74 lat, u których w latach 1980-84 zdiagnozowano raka płuc. W czasie badań 90% osób z tej grupy zmarło, 86% z nich paliło papierosy. Wybrano, używając procedur statystycznych, dwie grupy kontrolne z tych samych obszarów geograficznych takie, że pierwsza odpowiadała wiekowo grupie chorych, zaś druga miała to samo prawdopodobieństwo przeżycia; wykluczono z niej wszakże śmiertelność związaną z paleniem papierosów. W czasie miesięcy zimowych wykonywano pomiary stężeń radonu we wszystkich domach. Przebadano 8992 domy, w których te osoby mieszkały dłużej niż dwa lata. Średnia wartość stężenia radonu wyniosła  $106.5 \text{ Bq/m}^3$ . Najwyższa zaobserwowana wartość wyniosła  $6784 \text{ Bq/m}^3$ . W tabeli zamieszczono wyniki dotyczące czynnika ryzyka zapadnięcia na raka płuc przy różnych poziomach stężeń radonu w porównaniu z zapadalnością przy stężeniu  $<50 \text{ Bq/m}^3$  dla niepalących.

Stężenie Rn [Bq/m <sup>3</sup> ]	< 50	50 – 80	80 – 140	140 – 400	> 400
wzgl. współcz ryzyka					
wszyscy	1	1.1	1.0	1.3	1.8
niepalący	1	1.1	1.0	1.5	1.2
uprzednio palący	2.6	2.4	3.2	4.5	1.1
< 10 papierosów na dzień	6.2	6.0	6.1	7.3	25.1
> 10 papierosów na dzień	12.6	11.6	11.8	15.0	32.5

Tabela opracowana na podstawie [2]

Jak widać z tej tabeli jest możliwe, że istnieje wzrost zapadalności na raka płuc wraz ze wzrostem stężenia radonu, jednakże dla grupy niepalących jest on na granicy znaczącości. Wszystkie efekty związane z radonem są wielokrotnie mniejsze od efektu związanego z paleniem papierosów. Tutaj wzrost ryzyka jest co najmniej 10-krotny. Występuje także wyraźne (3, 4 - krotne) wzajemne wspomaganie efektu palenia i wysokich stężeń radonu.

W obecnym opracowaniu zajmiemy się promieniotwórczością (w tym i Ra-226 związanego z emisją radonu) cegieł ceramicznych i bloczków z betonu komórkowego produkowanych w Małopolsce.

Ponieważ wszystkie materiały są w mniejszym lub większym stopniu radioaktywne to istotną rzeczą jest ustalenie poziomu porównawczego. Przeważnie za taki poziom przyjmowany jest średni poziom stężeń naturalnych pierwiastków promieniotwórczych w skorupie ziemskiej, tj. tzw. stężenia klarkowe. Stężenia te wynoszą odpowiednio:

$$S(K)_{klark} = 370 \text{ Bq/kg dla potasu,}$$

$$S(Ra)_{klark} = 26 \text{ Bq/kg dla radu,}$$

$$S(Th)_{klark} = 26 \text{ Bq/kg dla toru.}$$

Istotny dla oceny zagrożenia jest również wybór dopuszczalnego poziomu granicznego dodatkowej mocy dawki związanej z promieniotwórczością pochodzącą od murów budynku. Obecnie za taką dawkę przyjmuje się  $\Delta D = 0.8 \text{ mGy/rok}$  [3].

Celem niniejszego opracowania jest zmierzenie stężeń potasu K-40, radu Ra-226 i toru Th-228 w ceglach ceramicznych i bloczkach z betonu komórkowego oraz statystyczne porównanie z ustalonymi normami dawek promieniowania.

## 2 Opis próbek materiałów budowlanych

Analizy zostały wykonane w oparciu o próbki cegieł ceramicznych z firmy CERMEGAD oraz próbki bloczków z betonu komórkowego produkcji PREVAR'u (dawny PREFABET) w Skawinie. Przebadano 10 próbek cegieł ceramicznych i 5 bloczków z betonu komórkowego dostarczonych przez wymienione firmy. Zestaw próbek uzupełniono 8 próbkami pobranymi

przez pracowników IFJ. Wykorzystano również pomiary betonów komórkowych PREVAR'u wykonane w ciągu lat 1991 - 1993 w Centralnym Ośrodku Badawczo-Rozwojowym Przemysłu Betonów CEBET (Pracownia Badań Fizyko-Technicznych) w Warszawie. W Tabeli 1 przedstawiony jest opis próbek i ich miejsc pochodzenia. Całkowita liczba próbek wynosi 51 z czego 18 to cegły i pustaki ceramiczne, zaś 33 to betony komórkowe.

### 3 Metoda pomiaru stężeń K, U, Th

Pomiary stężeń naturalnych pierwiastków radioaktywnych (potasu, radu i toru) dokonywane były w oparciu o metodę spektrometrii gamma. Widma energetyczne promieniowania gamma mają charakter wyraźnych wąskich linii co pozwala na łatwą identyfikację linii o określonej energii gamma. Metoda spektrometryczna jest wobec tego wygodnym narzędziem do oznaczania izotopów promieniotwórczych. Do detekcji promieniowania gamma użyty został w naszym laboratorium spektrometr składający się z detektora scyntylicyjnego NaJ(Tl) typu 12S12 o wymiarach  $\phi 3'' \times 3''$  firmy HARSHAW o zdolności rozdzielczej około 6.5% dla linii 662 keV z  $^{137}\text{Cs}$ , wzmacniacz liniowy oraz analizator wielokanałowy firmy ORTEC współpracujący z komputerem klasy IBM PC. Schemat aparatury użytej w pomiarach przedstawia Rys.2.

Do określania koncentracji naturalnych pierwiastków promieniotwórczych: potasu, radu i toru zastosowano metodę trójoknową. Metoda ta polega na pomiarach ilości zliczeń w trzech oknach energetycznych, odjęciu od ilości zliczeń w oknach o niższej energii zliczeń pochodzących z okien energetycznych o wyższej energii i porównaniu takich wyników z pomiarami wykonanymi dla wzorców. Szczegółowy opis zamieszczono w Uzupelnieniu 1.

Do pomiarów stosowany był spektrometr złożony z detektora scyntylicyjnego NaJ(Tl) oraz analizatora wielokanałowego z możliwością wyboru trzech okien energetycznych. Trzy okna są ustawione na liniach charakterystycznych dla poszczególnych, interesujących pierwiastków. Okna energetyczne zostały wybrane w taki sposób jak przedstawia Rys.3. Pierwsze okno, tzw. "okno potasowe" obejmuje obszar w okolicy energii 1.46 MeV i służy do rejestracji zliczeń od linii 1460 keV radionuklidu K-40. Drugie okno zaznaczone na Rys.3 jako "okno radowe" obejmuje obszar energii w okolicy linii 1760 keV od Bi-214 z szeregu uranowego i służy do wyznaczania koncentracji radu. Trzecie okno energetyczne - "okno torowe" obejmuje linię 2620 keV od Tl-208 z szeregu torowego. Okna energetyczne muszą być na tyle szerokie, by obejmowały całe powierzchnie pików, na które zostały ustawione. Zależą zatem od zdolności rozdzielczej stosowanego detektora. W pomiarach z użyciem detektorów scyntylicyjnych nie jest możliwe takie ustawienie okien, by rejestrowane były tylko impulsy od wybranej linii energetycznej. Zdolność rozdzielcza wysokiej klasy detektorów scyntylicyjnych jest rzędu 6 - 7 %. Powoduje to nakładanie się na wybrane zakresy energii dodatkowych zliczeń od innych linii energetycznych. W oknie obejmującym linię 2620 keV od Tl-208 są rejestrowane dodatkowo zliczenia od linii 2447 keV z Bi-214 pochodzącego z szeregu uranowego. Intensywność tej linii jest na tyle mała, że zliczenia te można zaniedbać jako mało znaczące. Zaniedbywane są też zliczenia od kwantów gamma o energii powyżej górnego zakresu torowego okna energetycznego. W pozostałych oknach rejestrowane są zliczenia od nuklidów emitujących kwanty gamma o wyższych energiach niż wybrane zakresy poszczególnych okien energetycznych. W oknie radowym rejestrowane są, oprócz zliczeń od nuklidów z szeregu uranowego, również zliczenia od nuklidów z szeregu torowego, a w oknie potasowym od nuklidów pochodzących z obydwu szeregów promieniotwórczych.

Na Rys.4 przedstawiona jest część widma betonu komórkowego odpowiadająca za

tzw. "okno radowe" zarejestrowanego wysokorozdzielczym detektorem z czystego germanu (HPGe). Tło leżące poniżej wyraźnych pików odpowiada rejestracji zliczeń od fotonów wyższych energii.

Wykonane dla próbek i dla wzorców pomiary ilości zliczeń w oknach energetycznych pozwalają na ułożenie układu równań:

$$N_I = a_1 N_K + b_1 N_{Ra} + c_1 N_{Th}$$

$$N_{II} = a_2 N_K + b_2 N_{Ra} + c_2 N_{Th}$$

$$N_{III} = a_3 N_K + b_3 N_{Ra} + c_3 N_{Th}$$

(objaśnienia w Uzupelnieniu 1) wiążącego wkład od stężeń poszczególnych pierwiastków promieniotwórczych ( $S_K, S_{Ra}, S_{Th}$ ) z rejestrowanymi sumarycznymi ilościami zliczeń w poszczególnych oknach energetycznych.

Ze względu na znaczną grubość próbki następuje w niej samoabsorpcja promieniowania gamma, której wielkość zależy od gęstości mierzonego materiału i od energii promieniowania. Dla analizowanych w tym projekcie badawczym próbek wartość poprawek na samoabsorpcję zawiera się w przedziale od 0.939 do 1.048. Z utworzonego układu równań, uwzględniając poprawki na samoabsorpcję wyliczane są stężenia potasu, radu i toru. Dokładny sposób obliczania stężeń oraz analiza błędów przedstawione są w Uzupelnieniu 1.

Tak określone koncentracje pierwiastków mogą również służyć do określania aktywności każdego z radionuklidów obecnych w badanej próbce po porównaniu z wynikami otrzymanymi z wzorców K, U, Th.

## 4 Wyniki pomiarów stężeń naturalnych izotopów promieniotwórczych (K,U,Th)

Dla próbek opisanych w Tabeli 1 widma energetyczne zmierzone zostały przy użyciu scyntylatora NaJ(Tl) o rozmiarach  $\phi 3'' \times 3''$ , a następnie przy pomocy programu KUTH wyliczono stężenia radionuklidów K-40, Ra-226 i Th-232. Otrzymane wartości  $S_K, S_{Ra}, S_{Th}$  oraz ich błędy ( $2\sigma$ )  $\sigma_K, \sigma_{Ra}, \sigma_{Th}$  przedstawiono w Tabeli 2. Podano tam także masę próbek.

Stężenie potasu dla kolejnych próbek przedstawione jest na Rys.5. Na Rys. 6 i 7 przedstawione są stężenia radu i toru. Z rysunków tych widać, że wyrob. ceramiczne (CE) zawierają więcej potasu, a mniej radu.

Histogramy rozkładów wartości stężeń K-40, Ra-226 i Th-232 przedstawione są odpowiednio na Rys. 8, 9, 10. Pola danych dotyczących cegieł są kropkowane, zaś odpowiadające betonom komórkowym są zakreskowane. Na Rys.8 widzimy, że stężenie potasu jest wyraźnie większe dla materiałów ceramicznych niż dla betonów komórkowych. Wartości średnie wynoszą dla betonów komórkowych  $\langle S_K \rangle_p = 483.2 \pm 13.3$  Bq/kg, a dla cegieł  $\langle S_K \rangle_c = 651.7 \pm 25.2$  Bq/kg, a więc różnica o ok. 200 Bq/kg średnio. Odwrotnie wygląda sytuacja na Rys.9, gdzie przedstawiono stężenie radu Ra-226. Tutaj cegły ceramiczne wykazują wartości o ok. 50 Bq/kg mniejsze niż betony komórkowe. W końcu na Rys.10 przedstawiony jest histogram wartości stężeń Th-232 dla obu rodzajów materiałów budowlanych. Tutaj mamy dwa podobne do siebie histogramy. Ten dotyczący materiałów ceramicznych jest nieco szerszy i o niższej (o ok. 7 Bq/kg) wartości średniej.

## 5 Analiza wyników

Dobrze jest przeprowadzać porównanie sumarycznego wpływu wszystkich naturalnych pierwiastków promieniotwórczych. W tym celu w Polsce stosuje się tzw. wskaźnik  $f_1$ . Wskaźnik  $f_1$  oparty jest na obliczaniu mocy dawki pochłoniętej na wysokości 1m nad płaską powierzchnią ziemi przy porównaniu ze stężeniami klarkowymi oraz przy założeniu wartości  $\Delta D$  - dodatkowej mocy dawki związanej z obecnością materiałów budowlanych.

W rzeczywistym budynku można obliczyć granice dawki jako:

$$D = D_{klark} + \Delta D$$

W polskich normach przyjęto za wartość  $\Delta D = 0.8$  mGy/rok.

Tę dawkę można porównać z dawką pochłoniętą w gonadach dla maksymalnych wartości tła naturalnego w Polsce, która wynosi 1.7 mGy/rok. Zatem jest to niecałe 50% wzrostu nad dawkę pochodzącą od maksymalnych wartości tła naturalnego.

Wskaźnik  $f_1$  jest oparty na użyciu współczynników półempirycznych i wyraża się jako:

$$f_1 = 0.00027S_K + 0.0027S_{Ra} + 0.0043S_{Th}$$

Maksymalna dopuszczalna wartość  $f_1 = 1$  odpowiada  $D_{klark} + \Delta D$ .

Jeżeli idzie o ekshalację czyli współczynnik emanacji radonu z materiałów budowlanych, to warunek dopuszczalności można zapisać jako:

$$f_2 = S_{Ra} \leq 185 Bq/kg$$

Warunek ten oparty jest w jeszcze większym stopniu na współczynnikach półempirycznych niż  $f_1$ . W wyniku zapewnia on, że zwiększona dawka promieniowania alfa spowodowana przebywaniem wewnątrz budynku będzie wg nowszych danych mniejsza niż  $0.45 \mu\text{Gy/rok}$ , odpowiada to efektywnemu równoważnikowi dawki  $0.9 \text{ mSv/rok}$ . Warto tu podkreślić, że normy te odnoszą się do stężenia radionuklidów w kg materiału budowlanego, natomiast nie biorą pod uwagę ciężaru właściwego materiału. Ten ostatni waha się od ok.  $2.7 \text{ kg/dm}^3$  dla betonu do  $0.6 \text{ kg/dm}^3$  dla bloczków z betonu komórkowego. Promieniowanie wewnątrz pomieszczenia oraz ilość wyemanowanego radonu zależą od ciężaru ścian. Dla lżejszych materiałów budowlanych jak drzewo czy beton komórkowy ściany są lżejsze. Ciężar ściany wykonanej w różnych technologiach waha się w stosunku 1:0.3. Dlatego lżejsze materiały budowlane emitują mniej kwantów gamma - w przybliżeniu tyle razy mniej ile razy dany materiał jest lżejszy (nie uwzględniając wpływu samoabsorpcji itp.).

W Tabeli 3 zebrano wskaźniki  $f_1$  i  $f_2$  (wraz z błędami) obliczone dla badanego zestawu próbek cegieł i bloczków z betonu komórkowego, a na Rys.11 i 12 przedstawione są rozkłady tych wskaźników. Wartość średnia  $f_1$  wynosi dla cegieł  $\langle f_1 \rangle_c = 0.56 \pm 0.02$ , a dla betonów komórkowych  $\langle f_1 \rangle_p = 0.69 \pm 0.01$ . Warto tutaj podkreślić, że w takich krajach jak Niemcy czy Szwecja (które są rygorystyczne w sprawie zabezpieczenia przed promieniowaniem) przyjęto wyraźnie mniejsze wartości współczynników przy  $S_K$  i  $S_{Th}$ . Powoduje to, że wyliczone tak wartości  $f_1^N$  i  $f_1^S$  są niższe niż obowiązujący w Polsce współczynnik kwalifikacyjny  $f_1$ . Wskaźniki dla badanych materiałów wyliczone według norm niemieckich  $f_1^N$  [9] i szwedzkich  $f_1^S$  [9] są zamieszczone w Tabeli 3.

Wartości średnie  $f_2$  wynoszą dla wyrobów ceramicznych  $\langle f_2 \rangle_c = 56.8 \pm 5.6$ , zaś dla betonów komórkowych  $\langle f_2 \rangle_p = 110.3 \pm 5.4$ , ale betony komórkowe są 3 razy lżejsze, co w efekcie zmniejsza emanację z  $\text{m}^2$  powierzchni ściany.

Ze względu na wartość wskaźnika  $f_1$  to obie grupy materiałów znajdują się w bezpiecznej odległości od granicznej wartości  $f_1$ . Trochę gorzej wygląda sytuacja dla wskaźnika  $f_2$ , gdzie na Rys.12 niektóre wartości dla betonów komórkowych zbliżają się do wartości 185 Bq/kg, ale pozostają od niej mniejsze, czyli są zgodne z polską normą i żadna próbka nie przekroczyła normy na  $f_2$ .

Warto zwrócić uwagę na umieszczone we wstępie wyniki badań nad szkodliwością radonu prowadzone przez Karolinska Institut. Z badań tych wynika, że wszystkie efekty związane z radonem są nieporównywalnie mniejsze od efektu związanego z paleniem tytoniu, gdzie wzrost ryzyka jest co najmniej 10-krotny.

Trzeba podkreślić, że w badaniach tych efekty wpływu stężeń radonu są widoczne dla stężeń większych od 140 Bq/m<sup>3</sup>, natomiast wartość współczynnika  $f_2$  w Polsce określono dla dopuszczalnego stężenia radonu równego 37 Bq/m<sup>3</sup>. Założono przy tym że:

a) że cały radon wyemanowany do wewnętrznych warstw materiału przedyfunduje do pomieszczenia

b) przyjęto typową grubość ścian i ich powierzchnię odpowiadającą budynkom mieszkalnym

c) przyjęto wentylację odpowiadającą 1 wymianie powietrza na godzinę

d) przyjęto wartość ekshalacji równą 5% i gęstość ścian  $\rho = 2.4 \text{ kg/dm}^3$ .

Zatem poziom, przy którym występuje widoczny wzrost zagrożenia od radonu jest ok. 4-krotnie wyższy niż odpowiadający granicznej wartości współczynnika  $f_2$ , który został przyjęty na niskim poziomie (dotychczasowe, skromne ilościowo badania mówią, że średnia wartość stężeń radonu w domach mieszkalnych w Polsce wynosi ok. 55 Bq/m<sup>3</sup>).

Ograniczenia związane ze współczynnikiem kwalifikacyjnym  $f_2$  są rzeczą wyjątkową i nigdzie poza Polską nie są spotykane. W związku ze zrozumieniem, że przeważnie głównym źródłem radonu jest podłoże, z którego radon poprzez konwekcję i dzięki efektowi kominowemu przedostaje się do budynków (patrz Rys.1), stosuje się bezpośrednie pomiary stężeń radonu w budynkach i określa jedynie tzw. poziom interwencji; jeżeli poziom ten zostaje przekroczony, to należy zastosować specjalne techniki budowlane by to stężenie Rn-222 obniżyć. Ten poziom interwencji jest ustalony jako 150 Bq/m<sup>3</sup> w Niemczech i USA, 200 Bq/m<sup>3</sup> w Anglii, a nawet 750 Bq/m<sup>3</sup> w Kanadzie. Należy podkreślić, że przyjęte w Polsce bardzo ostre kryterium na stężenie radonu wynoszące 37 Bq/m<sup>3</sup> powoduje, że materiały budowlane produkowane zgodnie z tymi normami są bezpieczniejsze niż w wielu krajach zachodnich o wysokiej wrażliwości ekologicznej. Dla obniżenia szybkości emanacji radonu ze ścian warto pamiętać, że pokrycie warstwy materiału budowlanego tynkiem i warstwą farby emulsyjnej obniża ekshalację radonu czasami nawet o 30%.

## 6 Wnioski

Reasumując omówione wyniki badań należy stwierdzić jak niżej:

1. Przebadane przez nas materiały budowlane (cegła i bloczki z betonu komórkowego) spełniają całkowicie wymogi polskich norm i norm obowiązujących w krajach zachodnich w zakresie dopuszczalnych stężeń naturalnych pierwiastków promieniotwórczych.

2. Obowiązujące w Polsce normy są bardziej rygorystyczne niż w krajach zachodnich, a z obecnego stanu badań wynika, że widoczny wzrost zagrożenia od radonu występuje dopiero przy 4-krotnym przekroczeniu wartości obowiązującego w Polsce współczynnika  $f_2$ .



3. Oszacowany poziom promieniotwórczości ścian domów wykonanych z badanych materiałów będzie nie więcej niż o ok. 50% wyższy od mocy dawki pochodzącej od promieniotwórczości tzw. tła naturalnego.

4. Znacznie większym problemem dla zachowania bezpieczeństwa mieszkańców jest emanacja radonu z podłoża niż ze ścian budynków.

5. Na poziom dawek promieniowania wpływa nie tylko stężenie pierwiastków promieniotwórczych (liczone w Bq/kg), ale również gęstość materiałów budowlanych powodująca, że ściana lżejsza (przy tym samym stężeniu pierwiastków promieniotwórczych) daje mniejszą dawkę promieniowania w pomieszczeniu.

## **Podziękowania.**

Autorzy wyrażają podziękowania firmom PREWAR i CERMEGAD za finansowanie przedstawionych w pracy badań.

Tabela 1. Opis otrzymanych próbek materiałów budowlanych.

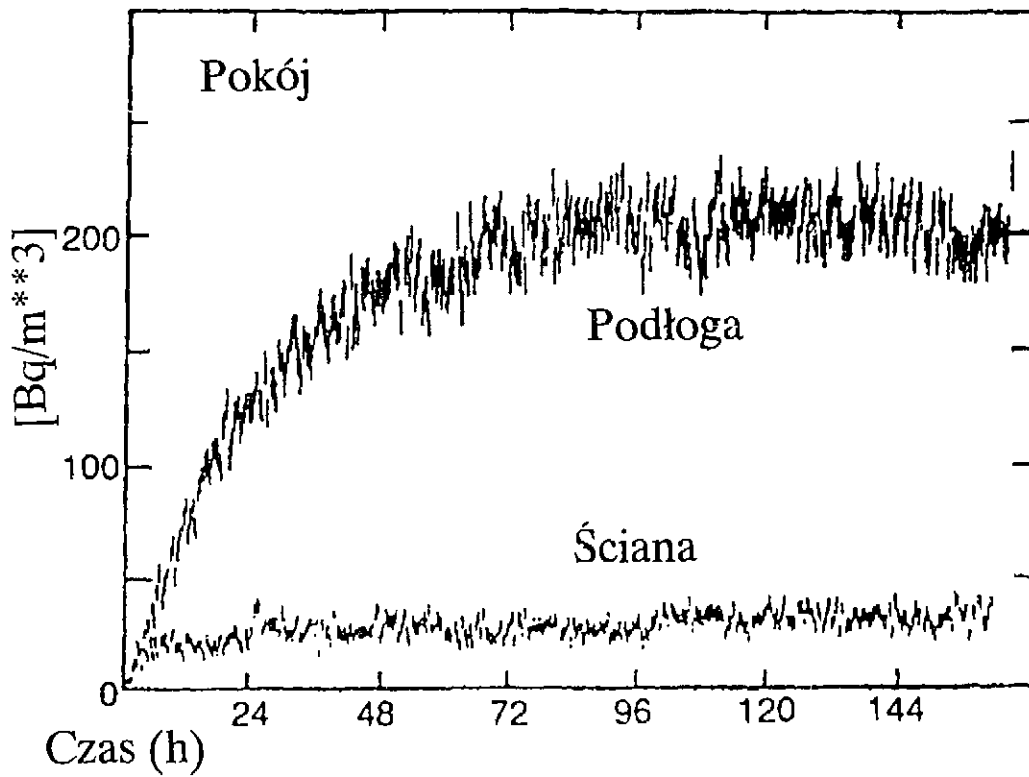
Lp.	Nazwa próbki	Miejsce pobrania	Data pobrania	Materiał	Uwagi
1.	PU0001	PREVAR Skawina d. PREFABET	5.02.1993	bloczek z betonu komórkowego	
2.	PU0002	"	7.04.1993	"	
3.	PU0003	"	3.02.1993	"	
4.	PU0004	"	6.03.1993	"	
5.	PU0005	"	19.03.1993	"	
6.	CE0006	CERMEGAD Kraków	3.11.1993	cegła	
7.	CE0007	"	"	"	
8.	CE0008	"	"	"	
9.	CE0009	"	"	"	
10.	CE0010	"	"	"	
11.	CE0011	"	"	"	
12.	CE0012	"	"	"	
13.	CE0013	"	"	"	
14.	CE0014	"	"	"	
15.	CE0015	"	"	"	
16.	CE0021	Cegielnia A. Głuś Dziekanowice	10.01.1994	cegła pełna	prod. 1982
17.	CE0022	Cegielnia Zator	13.01.1994	cegła pełna	cegła świeża
18.	CE0023	Cegielnia Kęty	13.01.1994	"	
19.	CE0024	Cegielnia Zestawice	10.01.1994	cegła kratówka	
20.	CE0025	Cegielnia Zator	10.01.1994	cegła pełna	prod. maj '85
21.	CE0042	Cegielnia Zielonki	4.05.1994	cegła	
22.	CE0044	Cegielnia Zestawice	4.05.1994	cegła	
23.	CE0045	Cegielnia Wola Rzędzińska k. Tarnowa	4.05.1994	puształ ceramiczny	
24.	B36/91	PREVAR Skawina	22.11.1990	beton komórkowy	pomiary z "CEBET" Warszawa
25.	B37/91	"	18.12.1990	"	
26.	B38/91	"	19.03.1991	"	
27.	B49/91	"	25.01.1991	"	
28.	B50/91	"	14.02.1991	"	
29.	B95/91	"	16.04.1991	"	
30.	B96/91	"	15.05.1991	autoklawizowany beton komórkowy	
31.	B97/91	"	19.06.1991	"	
32.	B12/K/91*	"	3.07.1991	beton komórkowy	
33.	B106/91	"	20.08.1991	autoklawizowany beton komórkowy	
34.	B107/91	"	16.09.1991	"	
35.	B108/91	"	15.10.1991	"	
36.	B150/91	"	15.11.1991	"	
37.	B60R/92	"	21.01.1992	"	
38.	B61R/92	"	18.02.1992	"	
39.	B93R/92	"	23.06.1992	"	
40.	B165R/92	"	14.07.1992	"	
41.	B166R/92	"	20.08.1992	"	
42.	B167R/92	"	22.09.1992	"	
43.	B168R/92	"	13.10.1992	"	
44.	B34R/93	"	18.12.1992	"	
45.	B35R/93	"	28.01.1993	"	
46.	B36R/93	"	11.02.1993	"	
47.	B166R/93	"	20.04.1993	"	
48.	B167R/93	"	18.05.1993	"	
49.	B168R/93	"	22.06.1993	"	
50.	B169R/93	"	15.07.1993	"	
51.	B170R/93	"	6.08.1993	"	

Tabela 2. Wyniki pomiarów stężeń K, Ra, Th.

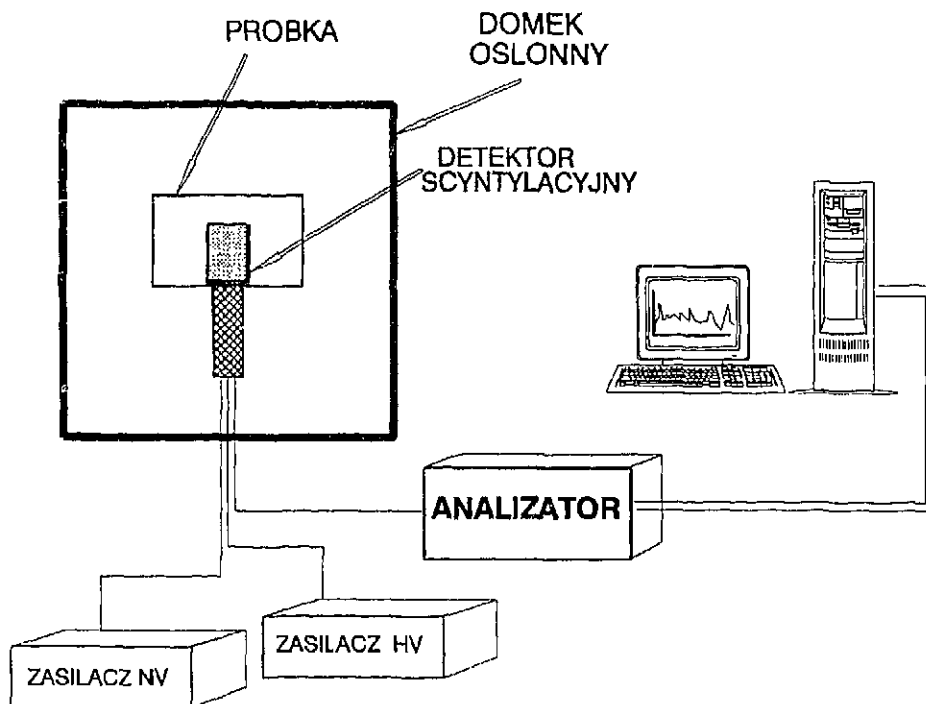
Nazwa próbki	$S_K$ [Bq/kg]	$S_{Ra}$ [Bq/kg]	$S_{Th}$ [Bq/kg]	$\sigma_K$	$\sigma_{Ra}$	$\sigma_{Th}$	masa [g]
PU0001	387.40	113.16	70.88	18.29	4.77	3.99	1003.9
PU0002	399.87	124.10	66.41	19.42	5.07	3.93	903.8
PU0003	385.28	107.04	70.25	18.33	4.74	4.00	933.0
PU0004	430.35	97.13	60.16	18.24	4.44	3.61	887.2
PU0005	361.76	121.53	80.32	18.68	5.06	4.37	1031.5
CE0006	617.12	33.03	43.13	14.99	2.33	2.44	1606.2
CE0007	673.10	45.29	51.86	16.56	2.74	2.84	1532.9
CE0008	753.24	48.39	52.36	18.27	2.92	2.95	1371.1
CE0009	601.81	33.25	34.58	14.79	2.25	2.15	1512.9
CE0010	584.04	64.00	59.37	16.28	3.25	3.20	1490.1
CE0011	657.56	61.52	60.99	16.79	3.12	3.19	1665.7
CE0012	795.47	80.62	77.83	20.56	3.93	4.03	1362.7
CE0013	692.19	50.31	49.88	17.10	2.85	2.80	1472.0
CE0014	748.45	99.96	81.74	20.89	4.40	4.25	1321.1
CE0015	722.65	96.53	76.30	19.91	4.16	3.97	1433.0
CE0021	679.46	37.73	43.32	15.96	2.40	2.45	1669.1
CE0022	601.10	46.95	46.33	15.64	2.74	2.66	1481.4
CE0023	592.91	45.39	50.55	15.19	2.68	2.76	1642.8
CE0024	768.31	95.75	71.82	20.72	4.18	3.85	1349.0
CE0025	573.53	45.29	49.11	15.15	2.72	2.75	1527.1
CE0042	725.61	77.52	68.08	18.86	3.60	3.56	1411.1
CE0044	327.87	28.30	29.42	10.12	1.90	1.82	1538.8
CE0045	616.78	32.56	35.47	14.70	2.10	2.08	1532.1
B36/91	518.71	72.20	68.48	43.75	10.95	5.68	1310.0
B37/91	530.88	66.49	76.94	44.93	10.04	5.34	1350.0
B38/91	569.34	51.84	73.55	42.94	9.43	5.13	1386.0
B49/91	627.22	58.59	78.64	46.00	10.00	5.42	1330.0
B50/91	522.65	76.21	66.55	43.94	9.93	5.03	1290.0
B95/91	499.92	111.47	63.83	48.51	10.84	4.96	1240.0
B96/91	297.47	138.55	55.78	46.02	10.79	4.57	1310.0
B97/91	524.20	137.18	67.66	52.17	11.51	5.14	1270.0
B12K/91*	530.97	136.41	68.55	52.38	11.53	5.43	1270.0
B106/91	410.70	146.51	60.86	49.26	11.46	4.73	1350.0
B107/91	478.49	141.92	54.75	48.69	8.12	4.57	1290.0
B108/91	430.70	160.73	59.45	50.91	11.74	4.96	1350.0
B150/91	495.19	123.47	61.50	47.13	10.71	4.77	1320.0
B60R/92	465.97	108.67	62.06	46.14	10.28	4.71	1360.0
B61R/92	453.55	109.89	62.61	45.73	10.16	4.66	1420.0
B93R/92	706.24	87.01	72.01	50.31	10.65	5.23	1280.0
B165R/92	430.05	158.96	51.87	48.86	11.04	4.45	1380.0
B166R/92	523.12	151.85	55.54	49.62	10.85	4.50	1450.0
B167R/92	534.62	157.14	56.20	52.78	11.83	4.89	1210.0
B168R/92	510.34	98.90	50.27	42.90	9.50	4.24	1420.0
B34R/93	452.00	142.89	57.81	50.79	11.59	4.90	1230.0
B35R/93	488.66	111.47	45.07	44.66	10.19	4.33	1230.0
B36R/93	492.09	96.42	47.52	43.05	9.73	4.31	1290.0
B166R/93	473.37	90.99	51.35	39.80	8.58	3.94	1550.0
B167R/93	507.30	96.22	61.66	42.92	9.06	4.30	1600.0
B168R/93	510.14	91.46	57.62	41.13	8.64	4.08	1660.0
B169R/93	462.76	61.21	43.62	33.77	7.22	3.45	1710.0
B170R/93	533.50	92.14	50.92	39.89	8.34	3.82	1670.0

Tabela 3. Wartości współczynników  $f_1$ ,  $f_2$  oraz  $f_1^N$  i  $f_1^S$ .

Nazwa próbki	$f_1$	$f_2$	$\sigma_{f_1}$	$\sigma_{f_2}$	$f_1^N$	$f_1^S$	$f_1^N/f_1$
PU0001	0.71	113.16	0.02	4.77	0.660	0.443	0.930
PU0002	0.73	124.10	0.02	5.07	0.675	0.468	0.925
PU0003	0.70	107.04	0.02	4.74	0.641	0.426	0.916
PU0004	0.64	97.13	0.02	4.44	0.586	0.389	0.916
PU0005	0.77	121.53	0.02	5.06	0.713	0.477	0.926
CE0006	0.44	33.03	0.01	2.33	0.389	0.211	0.884
CE0007	0.53	45.29	0.01	2.74	0.467	0.262	0.881
CE0008	0.56	48.39	0.02	2.92	0.495	0.279	0.884
CE0009	0.40	33.25	0.01	2.25	0.354	0.198	0.885
CE0010	0.59	64.00	0.02	3.25	0.527	0.314	0.893
CE0011	0.61	61.52	0.02	3.12	0.542	0.317	0.889
CE0012	0.77	80.62	0.02	3.93	0.688	0.406	0.894
CE0013	0.54	50.31	0.01	2.85	0.478	0.275	0.885
CE0014	0.82	99.96	0.02	4.40	0.745	0.459	0.909
CE0015	0.78	96.53	0.02	4.16	0.710	0.440	0.910
CE0021	0.47	37.73	0.01	2.40	0.416	0.230	0.885
CE0022	0.49	46.95	0.01	2.74	0.435	0.252	0.888
CE0023	0.50	45.39	0.01	2.68	0.445	0.253	0.890
CE0024	0.77	95.75	0.02	4.18	0.700	0.436	0.909
CE0025	0.49	45.29	0.01	2.72	0.435	0.248	0.888
CE0042	0.70	77.52	0.02	3.60	0.628	0.377	0.897
CE0044	0.29	28.30	0.01	1.90	0.260	0.150	0.897
CE0045	0.41	32.56	0.01	2.10	0.358	0.199	0.873
B36/91	0.63	72.20	0.06	10.95	0.569	0.343	0.903
B37/91	0.65	66.49	0.06	10.40	0.589	0.340	0.906
B38/91	0.61	51.84	0.06	9.43	0.545	0.300	0.893
B49/91	0.66	58.59	0.06	10.00	0.595	0.331	0.902
B50/91	0.63	76.21	0.06	9.93	0.574	0.351	0.911
B95/91	0.71	111.47	0.06	10.84	0.653	0.440	0.920
B96/91	0.69	138.55	0.06	10.78	0.651	0.482	0.943
B97/91	0.80	137.18	0.07	11.51	0.743	0.517	0.929
B12K/91*	0.81	136.41	0.07	11.53	0.746	0.517	0.921
B106/91	0.76	146.51	0.06	11.46	0.717	0.522	0.943
B107/91	0.75	141.92	0.05	8.12	0.696	0.508	0.928
B108/91	0.81	160.73	0.07	11.74	0.755	0.560	0.932
B150/91	0.73	123.47	0.06	10.71	0.676	0.469	0.926
B60R/92	0.69	108.67	0.06	10.28	0.632	0.427	0.916
B61R/92	0.69	109.89	0.06	10.16	0.634	0.430	0.919
B93R/92	0.74	87.01	0.06	10.65	0.664	0.406	0.897
B165R/92	0.77	158.96	0.06	11.04	0.721	0.545	0.936
B166R/92	0.79	151.85	0.06	10.85	0.736	0.540	0.932
B167R/92	0.81	157.14	0.07	11.83	0.755	0.556	0.932
B168R/92	0.62	98.90	0.06	9.50	0.570	0.388	0.919
B34R/93	0.77	142.98	0.07	11.59	0.705	0.512	0.916
B35R/93	0.63	111.47	0.06	10.19	0.580	0.413	0.921
B36R/93	0.60	96.42	0.06	9.73	0.549	0.376	0.915
B166R/93	0.59	90.99	0.05	8.58	0.545	0.365	0.924
B167R/93	0.66	96.22	0.05	9.06	0.606	0.397	0.918
B168R/93	0.63	91.46	0.05	8.64	0.578	0.379	0.917
B169R/93	0.48	61.21	0.04	7.22	0.433	0.273	0.902
B170R/93	0.61	92.14	0.05	8.34	0.560	0.373	0.918

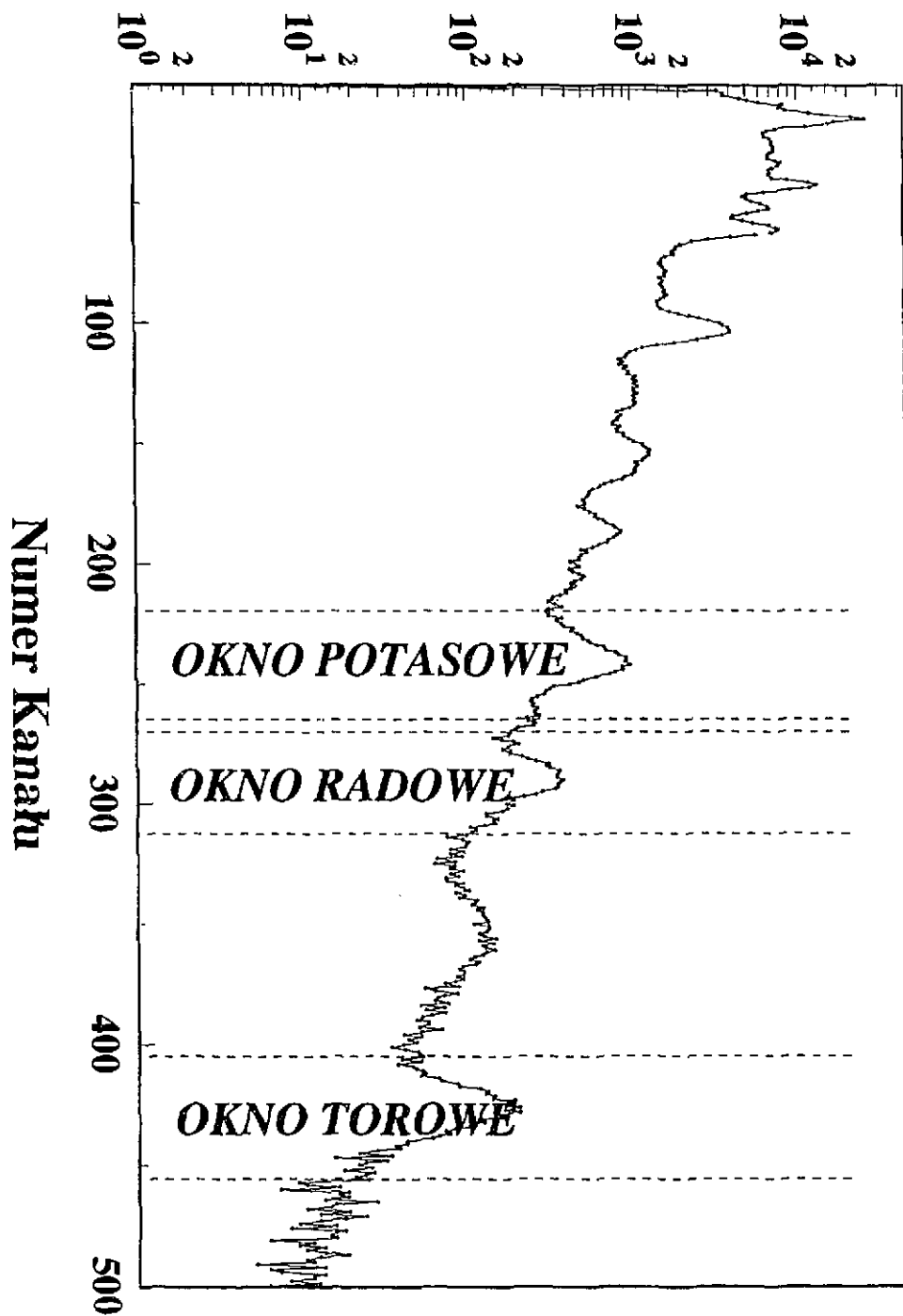


**Rys.1** Ekshalacja radonu ze ścian i podłogi w domu jednorodzinny.



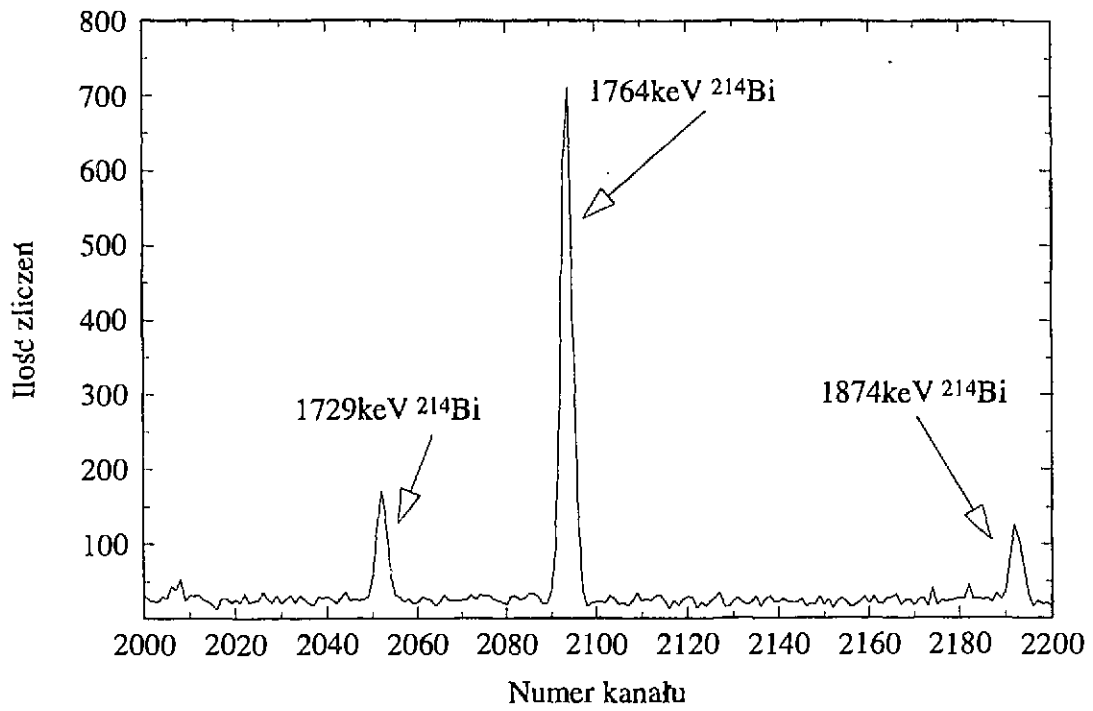
**Rys.2** Schemat aparatury użytej w pomiarach.

# Liczba zliczeń w kanale

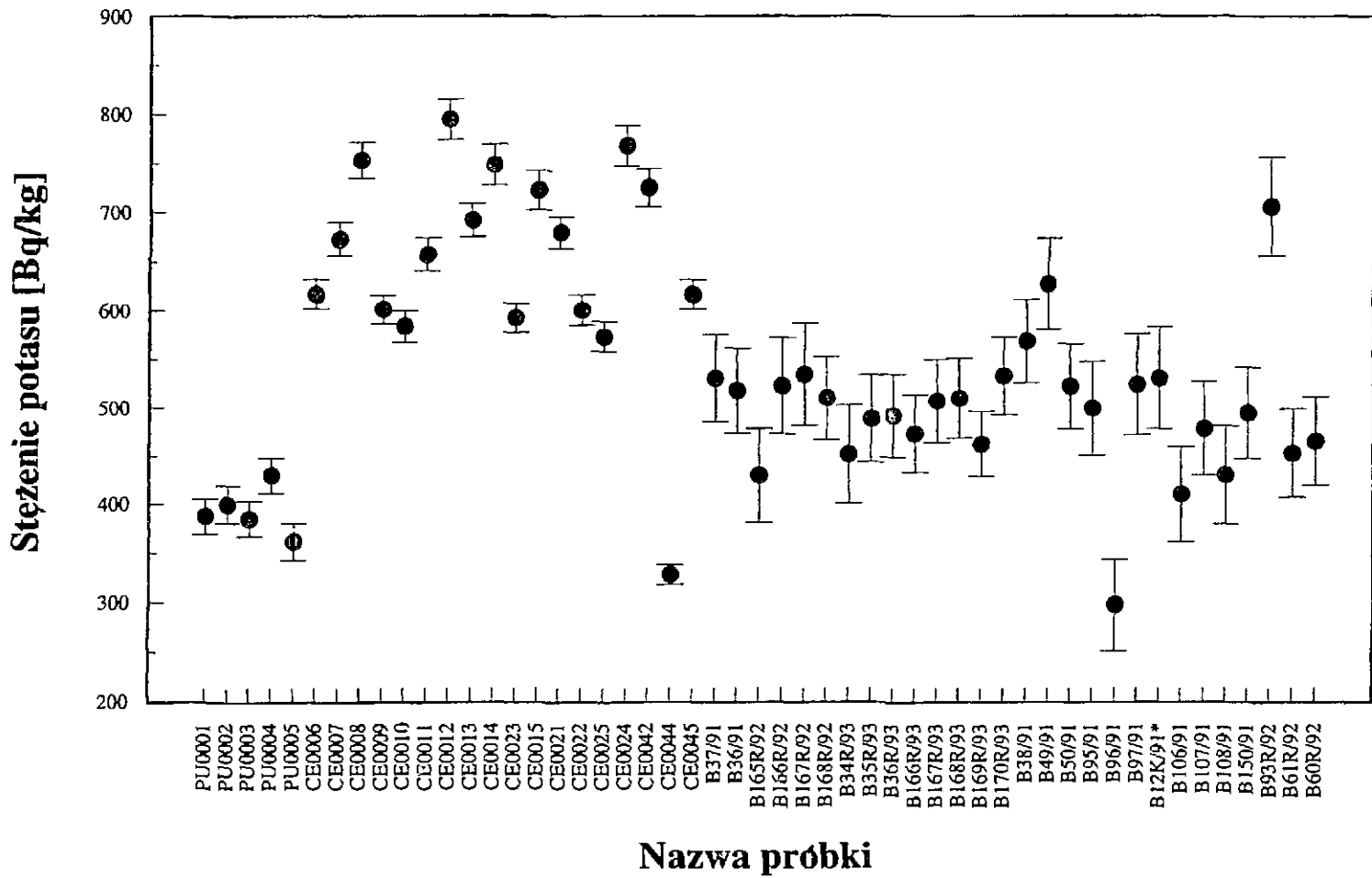


Rys.3

Okno RADOWE

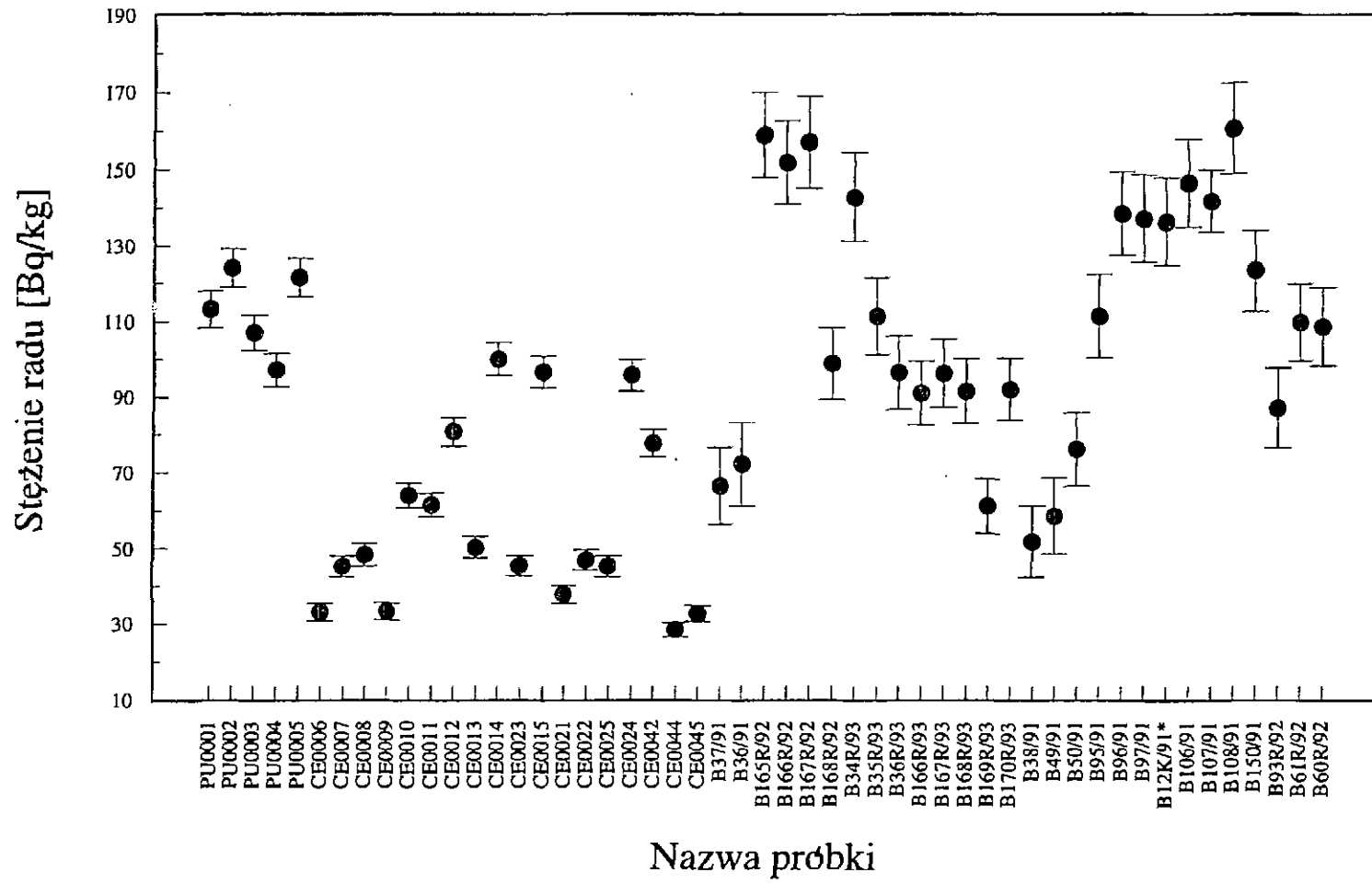


Rys.4

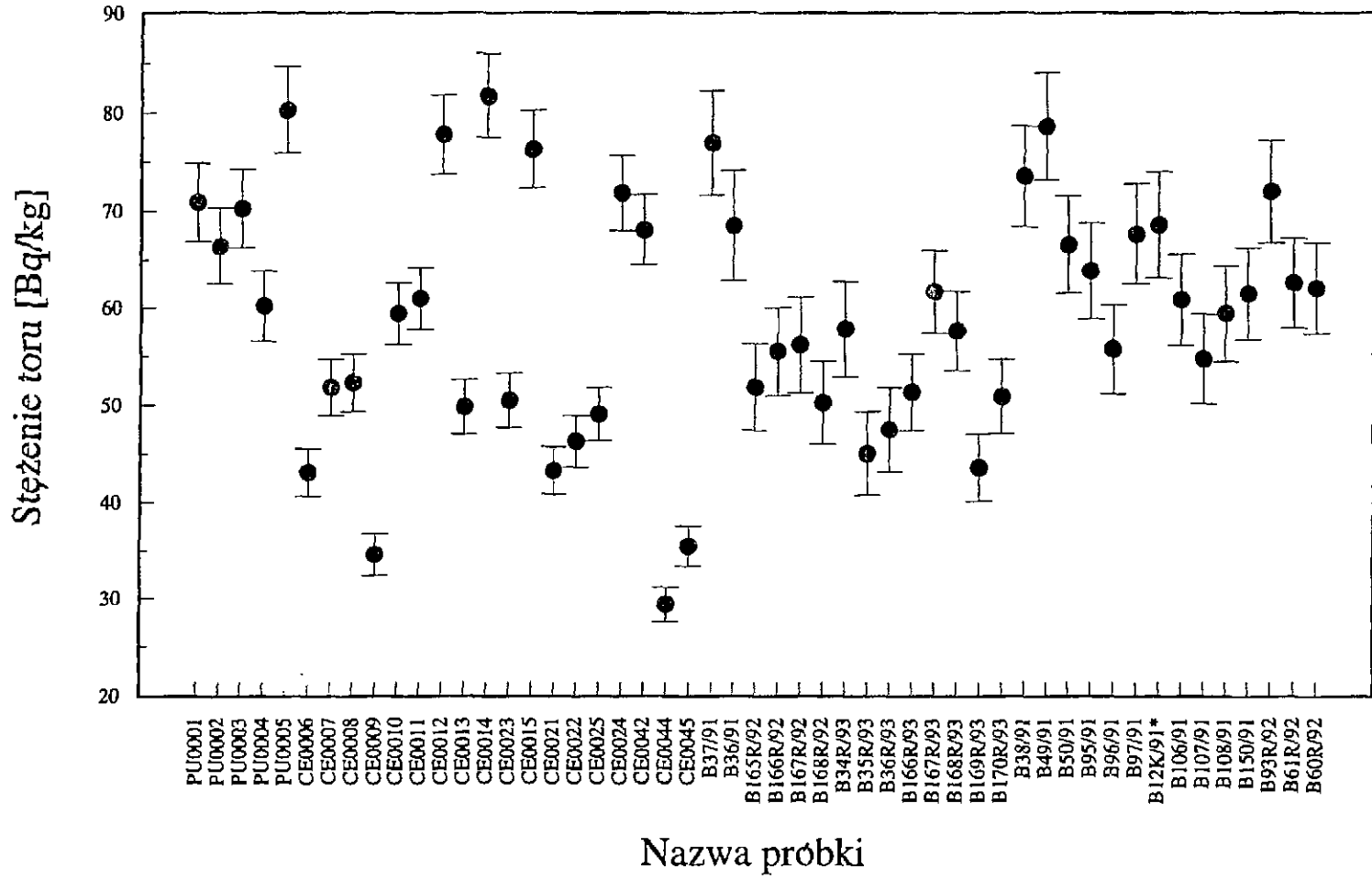


Rys.5

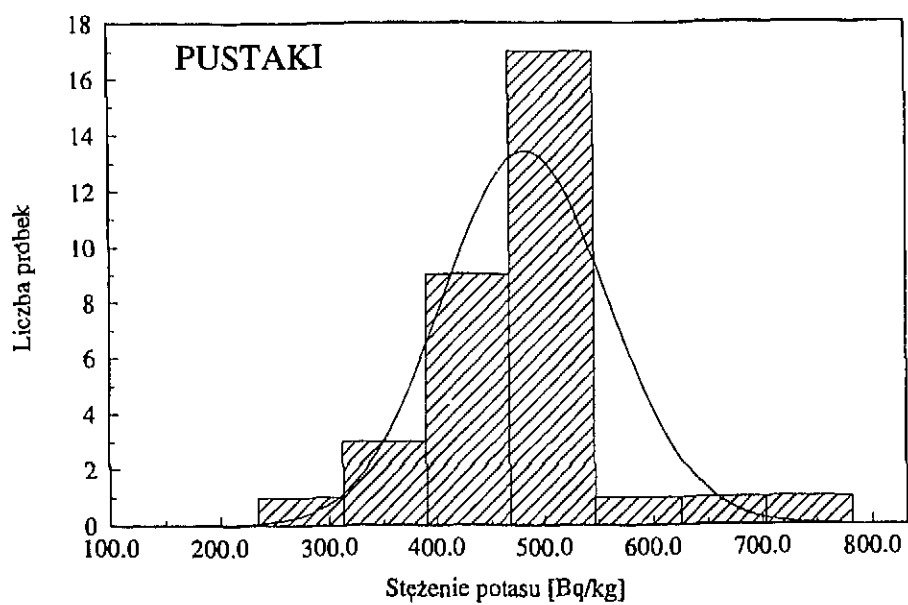
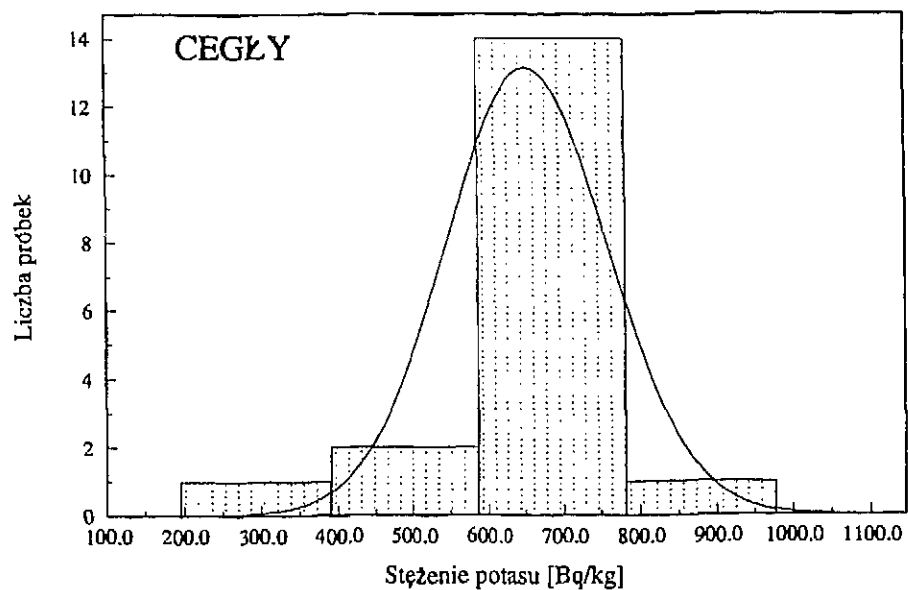




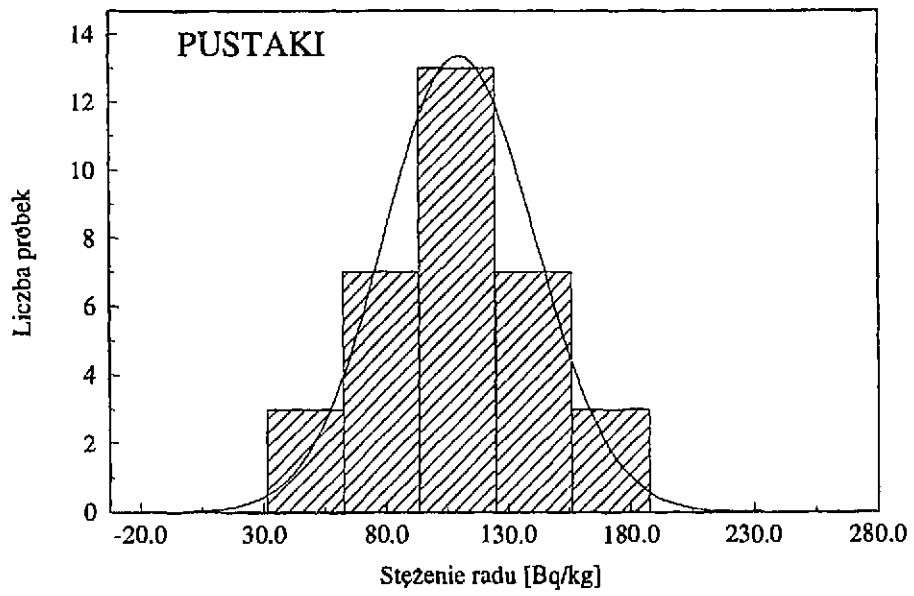
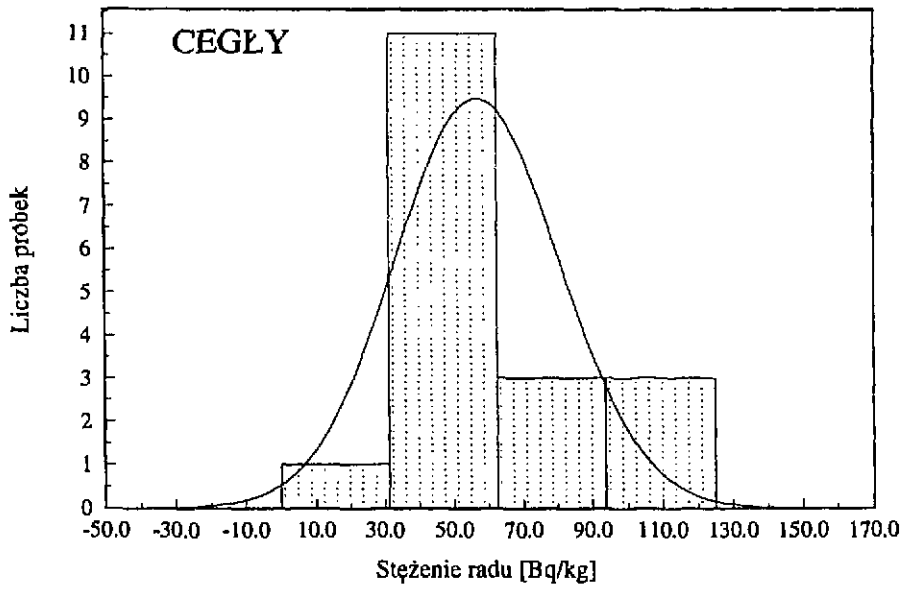
Rys.6



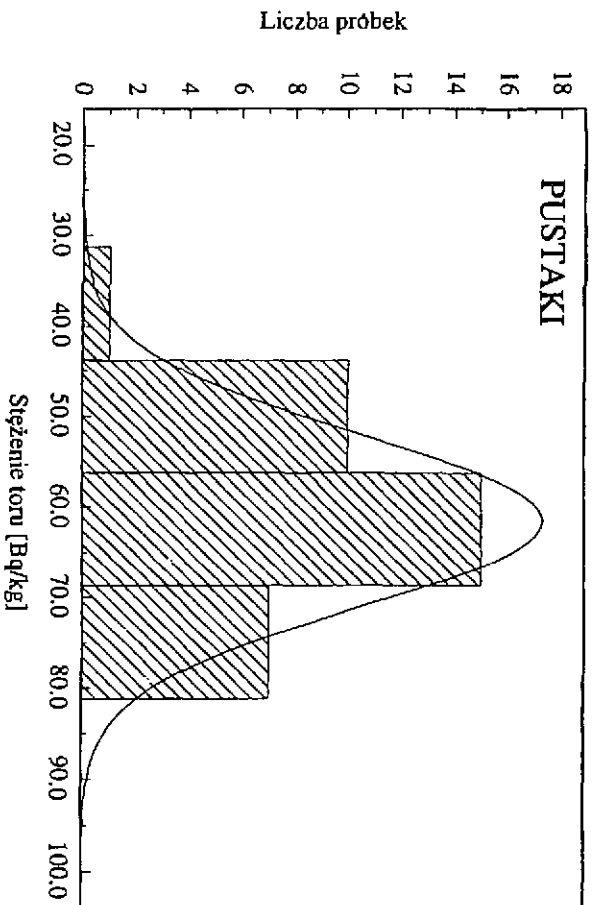
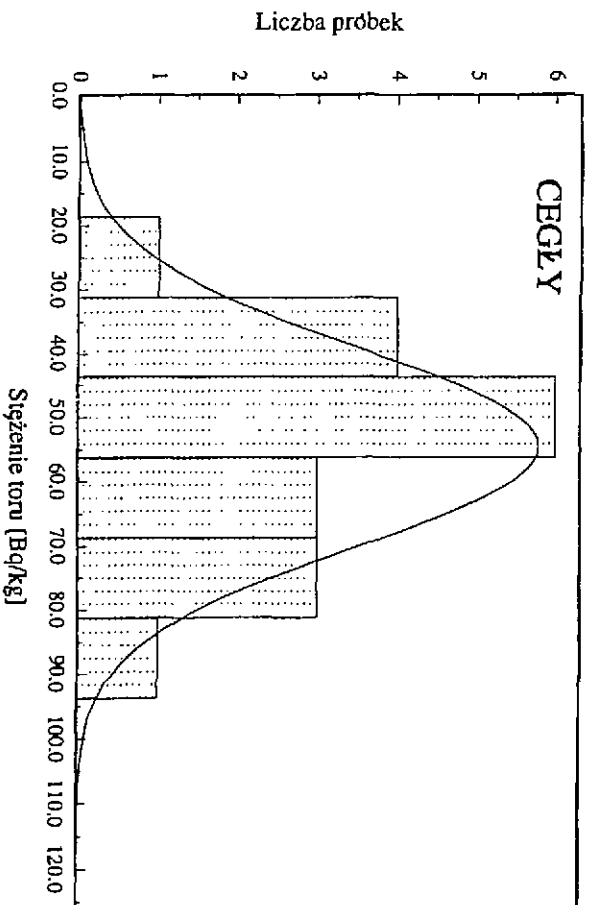
Rys. 7



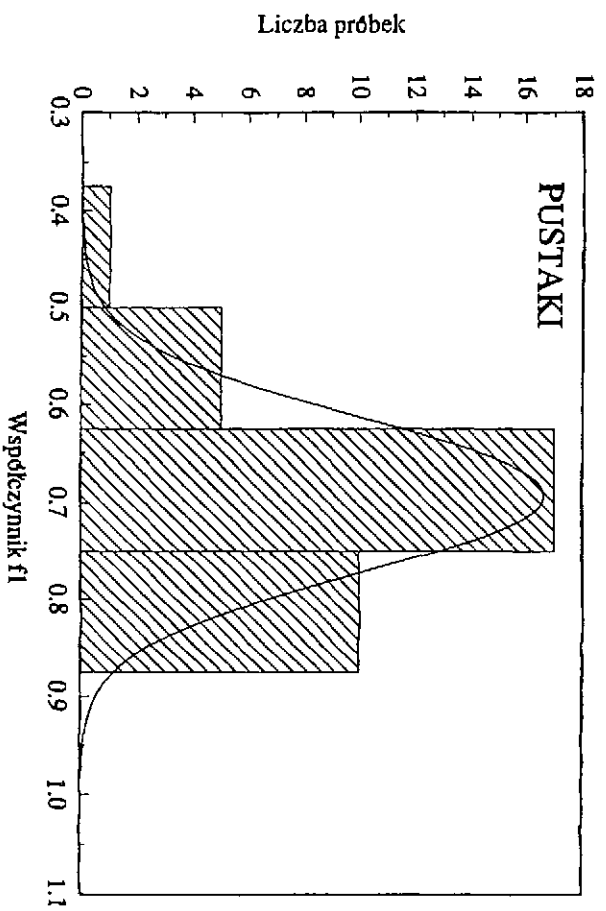
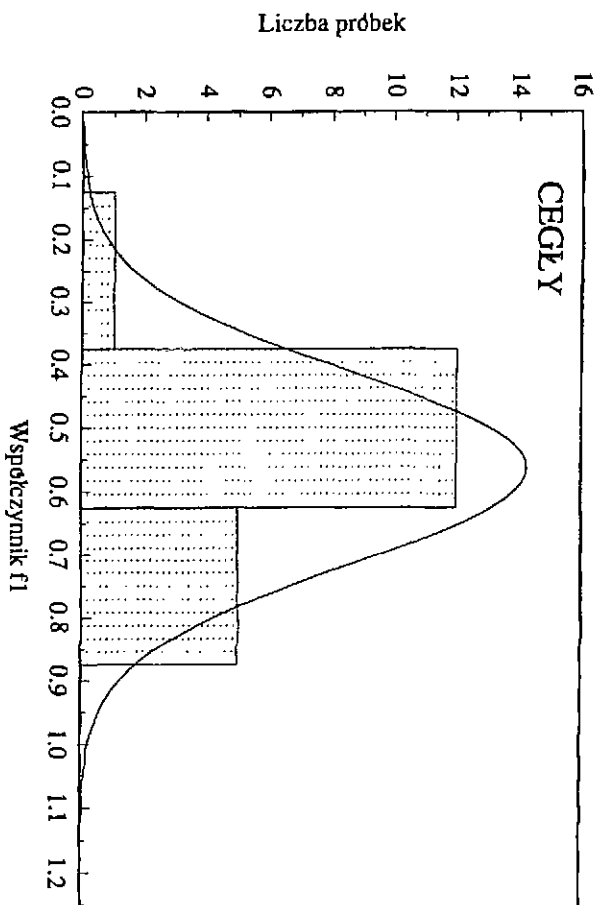
**Rys.8**



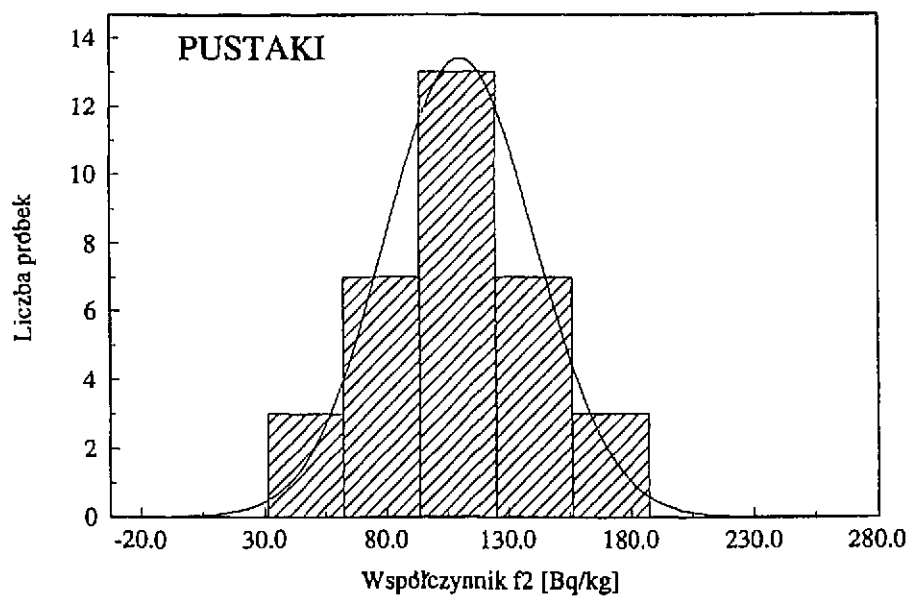
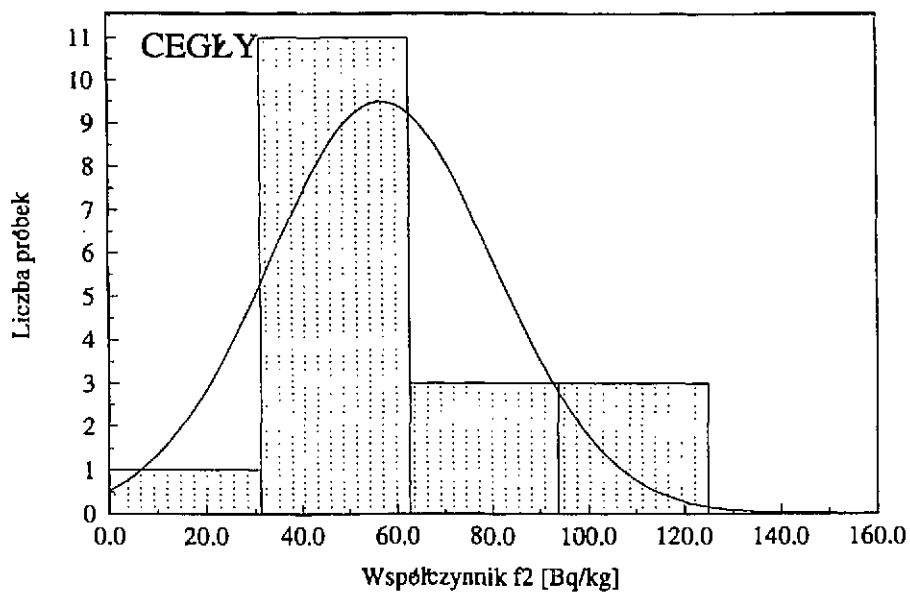
**Rys.9**



**Rys.10**



**Rys. 11**



**Rys.12**

# Uzupełnienie 1

## POMIAR PROMIENIOWANIA NATURALNEGO METODĄ SPEKTROMETRII GAMMA

Ze względu na dyskretny charakter widm energetycznych promieniowania gamma pozwalający na dość łatwą identyfikację poszczególnych linii o energii  $E_\gamma$ , metoda spektrometrii gamma jest wygodnym narzędziem do oznaczania izotopów naturalnych szeregów promieniotwórczych zapoczątkowanych przez K-40, U-238, U-235 oraz Th-232. W laboratoriach stosuje się głównie 2 wersje tej metody: scyntylicyjną i półprzewodnikową.

Scyntylicyjna metoda spektrometrii gamma posiada niewątpliwe zalety jak duża wydajność detekcji, łatwość obsługi stosunkowo nieskomplikowanego układu pomiarowego co w wielu przypadkach nawet przy jej wadzie jaką bez wątpienia jest gorsza zdolność rozdzielcza czyni ją niezastąpioną.

### 3-KANALOWA SCYNTYLACYJNA METODA POMIARU NATURALNEGO PROMIENIOWANIA GAMMA

W naszym laboratorium stosujemy metodę scyntylicyjnej spektrometrii gamma w wersji 3-kanalowej ("3-oknowej"). Jest to metoda porównawcza, w której analizujemy wysokoenergetyczne linie promieniowania gamma:

1.46 MeV -  $^{40}\text{K}$

1.76 MeV -  $^{214}\text{Bi}(\text{RaC})$

2.62 MeV -  $^{208}\text{Tl}(\text{ThC''})$

zarówno z badanej próbki jak i z trzech objętościowych wzorców: potasowego, radowego i torowego. Rejestrowane przy pomocy sondy scyntylicyjnej ilości zliczeń promieniowania  $\gamma$  pochodzą z trzech kanałów pomiarowych tzw. "okien":

1.30 - 1.60 MeV ( okno potasowe I )

1.60 - 2.00 MeV ( okno bizmutowe II )

2.40 - 2.80 MeV ( okno talowe III )

Położenia okien zależą od zdolności rozdzielczej detektora i tak zostały wybrane dla naszej sondy scyntylicyjnej. Zależność między zarejestrowanymi w tych trzech oknach liczbami zliczeń  $N_I$ ,  $N_{II}$ ,  $N_{III}$  od badanej próbki a liczbami zliczeń pochodzącymi od  $^{40}\text{K}$  ( $N_K$ ),  $^{214}\text{Bi}$  ( $N_{Ra}$ ),  $^{208}\text{Tl}$  ( $N_{Th}$ ) opisuje układ 3 równań:

$$N_I = a_1 N_K + b_1 N_{Ra} + c_1 N_{Th}$$



$$N_{II} = a_2 N_K + b_2 N_{Ra} + c_2 N_{Th} \quad (1)$$

$$N_{III} = a_3 N_K + b_3 N_{Ra} + c_3 N_{Th}$$

gdzie  $a_i, b_i, c_i$  - współczynniki stałe dla danego układu pomiarowego:

$$\begin{aligned} a_i &= n_{Ki} / \sum_{i=1}^3 n_{Ki} \\ b_i &= n_{Rai} / \sum_{i=1}^3 n_{Rai} \\ c_i &= n_{Thi} / \sum_{i=1}^3 n_{Thi} \end{aligned} \quad (2)$$

$$\sum_{i=1}^3 a_i = \sum_{i=1}^3 b_i = \sum_{i=1}^3 c_i = 1$$

$n_{Ki}, n_{Rai}, n_{Thi}$  są liczbami zliczeń (impulsów) w "i" oknie otrzymanymi z pomiarów kalibracyjnych z wzorcem potasowym, radowym i torowym odpowiednio.

$$n_K = \sum_{i=1}^3 n_{Ki}$$

$$n_{Ra} = \sum_{i=1}^3 n_{Rai}$$

$$n_{Th} = \sum_{i=1}^3 n_{Thi}$$

Z pomiarów kalibracyjnych wyznaczamy także czułość układu pomiarowego na detekcję promieniowania gamma od potasu, radu i toru w trzech oknach energetycznych:  $\alpha_K, \alpha_{Ra}, \alpha_{Th}$ , która wyraża się wzorem:

$$\alpha_K = A_{KW} / n_K$$

$$\alpha_{Ra} = A_{RaW} / n_{Ra} \quad (3)$$

$$\alpha_{Th} = A_{ThW}/n_{Th}$$

gdzie  $A_{KW}$ ,  $A_{RaW}$ ,  $A_{ThW}$  są aktywnościami wzorców: potasowego, radowego i torowego w jednostkach Bq. Wzorzec radowy jest w stanie bliskim równowagi wiekowej, współczynnik równowagi promieniotwórczej między  $^{238}\text{U}$  a  $^{226}\text{Ra}$  wynosi:  $C = A^{Ra}/A^U = 1.0096$ . Występujące we wzorach liczby zliczeń są zliczeniami netto uzyskanymi po odjęciu od zliczeń próbki czy wzorca odpowiednich zliczeń tła o czym dokładniej traktuje p-t "Metodyka pomiarów". W przypadku wzorca torowego odejmowano także zliczenia wynikające z udziału radu w tym wzorcu.

Układ równań (1) jest liniowy, niejednorodny i oznaczony. Jego rozwiązanie stanowi jeden zespół liczb  $N_K, N_{Ra}, N_{Th}$  którym są ilości zliczeń promieniowania gamma od potasu, radu i toru badanej próbki z trzech okien pomiarowych. Do rozwiązywania układu równań (1) stosujemy metodę wyznaczników Cramera.

Jak zaznaczono wcześniej wymienione powyżej okna energetyczne obejmują linie gamma:

1.46 MeV -  $^{40}\text{K}$

1.76 MeV -  $^{214}\text{Bi}(\text{RaC})$

2.62 MeV -  $^{208}\text{Tl}(\text{ThC}''')$

a zatem wyznaczamy faktycznie aktywność K-40, Bi-214 i Tl-208. Uszczelnianie pojemników pomiarowych i odstawianie próbki na około 4 tygodnie zabezpiecza przed ucieczką radonu Rn-222 i doprowadza do ustalenia się równowagi promieniotwórczej między Ra-226 a Bi-214 (zatem aktywność bizmutu przyjmuje się za równą aktywności radu).

Mając z rozwiązania układu równań (1)  $N_K, N_{Ra}, N_{Th}$ , z pomiarów kalibracyjnych  $\alpha_K, \alpha_{Ra}, \alpha_{Th}$  wyznaczamy aktywność właściwą: potasu K-40 ( $S_K$ ), radu Ra-226 ( $S_{Ra}$ ), toru Th-232 ( $S_{Th}$ ) w jednostkach Bq/kg:

$$S_K = \alpha_K \cdot (N_K/m_p) \cdot (t_w/t_p) \cdot k_1$$

$$S_{Ra} = \alpha_{Ra} \cdot (N_{Ra}/m_p) \cdot (t_w/t_p) \cdot k_2 \quad (4)$$

$$S_{Th} = \alpha_{Th} \cdot (N_{Th}/m_p) \cdot (t_w/t_p) \cdot k_3$$

$t_w, t_p$  - czasy pomiarów wzorca i próbki

$m_p$  - masa próbki w kg

$k_1, k_2, k_3$  - poprawki na samoabsorpcję promieniowania  $\gamma$  w próbce dla  $E_\gamma$  : 1.5 MeV, 2 MeV, 3 MeV odpowiednio (wyjaśnienie w p-cie "Metodyka pomiarów")

## UKŁAD POMIAROWY

Głównym elementem układu pomiarowego jest sonda scyntylicyjna (typ 12s12/3a) z kryształem scyntylicyjnym NaJ(Tl) o wymiarach 3"x3" firmy Harshaw. Sonda posiada dobrą zdolność rozdzielczą: 7% dla linii gamma 0.662 MeV od Cs-137.

Dzielnik i wtórnik sondy wykonane są z wysokostabilnych elementów elektronicznych, zapewniając dobrą stabilizację widma. Sonda umieszczona jest w ołowianym domku osłonnym o grubości ścianki 150 mm. Wnętrze domku wyłożono dodatkową osłoną z żelaza (3mm), miedzi (1mm) i kadmu (1.8mm) w celu absorpcji charakterystycznego promieniowania rentgenowskiego ołowiu  $K_{\alpha}$  Pb, miedzi i kadmu absorbując kolejno wzbudzone promieniowanie charakterystyczne  $K_{\alpha}$ Fe i  $K_{\alpha}$ Cu. Tło w pustym domku w kolejnych trzech oknach wynosi:

$$N_{t1} = 7.5 \text{ zliczeń/min}$$

$$N_{t2} = 4.3 \text{ "}$$

$$N_{t3} = 2.7 \text{ "}$$

nie odbiegając od wartości tła podawanych przez innych autorów np. Adams [5] podaje 10 zliczeń/min w oknie potasowym i 15 zliczeń/min sumarycznie w oknie uranowym i torowym.

Sonda zajmuje pozycję pionową co umożliwia nakładanie na nią pojemników pomiarowych. Pojemniki o objętości ok. 1.2 dcm<sup>3</sup> wykonano z blachy aluminiowej o grubości 1.5 mm metodą wyoblania, mają one kształt walca z wewnętrzną wngką na kryształ scyntylicyjny ("Marinelli hat"). Taka geometria zbliżona do  $4\pi$  jest korzystna przy pomiarach niskoaktywnych próbek gdyż znacznie polepsza wydajność detekcji.

Sygnal z sondy po wzmocnieniu poddawany jest analizie amplitudowej przy pomocy analizatora wielokanałowego typ 92X (ORTEC) z oprogramowaniem MAESTRO II [6]. Liczby zliczeń z trzech okien podawane są do dalszej analizy komputerowej na IBM PC 386.

## METODYKA POMIARÓW

### 1. Próbki

Próbki są pobierane zgodnie z normą BN-81/0623-01. Próbki przeznaczone do pomiarów są wcześniej rozdrabniane do granulacji mniejszej niż 5mm a następnie suszone do stałej masy w temperaturze 105°C. Po wysuszeniu pozostawione w temperaturze pokojowej uzyskują stan równowagi z wilgotnością otoczenia. Pojemniki pomiarowe z badaną próbką, zamknięte szczelnie i dodatkowo uszczelnione autokitem i specjalną taśmą samoprzylepną odkładamy na okres 4 tygodni by ustaliła się równowaga promieniotwórcza między radem Ra-226 a bizmutem Bi-214.

## 2. Wzorce

Wzorzec potasowy został wykonany na bazie odczynnika chemicznego KCl i zawiera 52.5%  $K_{nat}$  co odpowiada aktywności  $^{40}K$  - 16672 Bq. Błąd sporządzenia wzorca na poziomie ufności 95% wynosi 1.6%.

Wzorzec uranowy zawierający 100ppm  $U_{nat}$  sporządzono z blendy smolistej o zawartości 3.9%  $U_3O_8$  (standard 3-B z New Brunswick Laboratory) i z niskoaktywnego piasku kwarcowego (otrzymany z CELORu) jako nośnika. W standardzie 3-B stosunek masy radu do masy uranu wynosi  $3.38 \cdot 10^{-7}$  a zatem mamy tu stan bliski równowagi wiekowej ( $C = 1.0096$ ). Aktywność U-238 w naszym wzorcu wynosi 2270 Bq. Atest standardu 3-B nie podaje z jakim błędem oznaczono  $U_3O_8$  stąd błąd sporządzania naszego wzorca wynikający tylko z błędów odważania, mieszania wynosi ok.0.2% (na poz. ufności 95%). Wzorzec torowy o zawartości 100 ppm Th-232 wykonano na bazie standardu 7-A z New Brunswick Laboratory o zawartości 9.72%  $ThO_2$  i 0.39%  $U_3O_8$  oraz nośnika kwarcowego jak w przypadku wzorca uranowego. Aktywność Th-232 w tak sporządzonym wzorcu wynosi 750 Bq a aktywność Ra-226 90 Bq. Błąd sporządzenia wzorca wynosi 1.8% (poziom ufności 95%).

## 3. Poprawka na samoabsorpcję promieniowania w próbce

Wprowadzenie poprawki na różną absorbcję promieniowania gamma we wzorcu i w próbce jest konieczne ze względu na różnice gęstości nasypowej próbki i wzorca, problem różnicy  $Z_{eq}$  jest tu mniej znaczący ze względu na to, że analizujemy wysokoenergetyczne promieniowanie gamma (1.46 MeV, 1.76 MeV, 2.62 MeV). Dla tych energii  $E_\gamma$  masowe współczynniki absorpcji  $\mu_p$  różnią się między sobą niewiele, już przy  $E_\gamma = 600$  keV mamy [7], [8]:

dla $SiO_2$	$\mu_p = 0.0807$ (cm <sup>2</sup> /g)
$Fe_2O_3$	0.0778 "
$Al_2O_3$	0.0793 "
$CaO$	0.0810 "
$MgO$	0.0800 "
$K_2O$	0.0790 "

Większość surowców i materiałów budowlanych posiada w swym składzie ponad 50%  $SiO_2$  dlatego przy obliczaniu poprawki na samoabsorpcję przyjęliśmy  $\mu_p$  dla  $SiO_2$ . Stosujemy poprawkę w postaci:

$$k = exp\{(\mu_p \cdot < r > / V)(m_p - m_w)\} \quad (5)$$

gdzie  $\mu_p$  - masowy współczynnik absorpcji promieniowania gamma (przyjęty jak w  $SiO_2$ )

V - objętość próbki (wzorca) równa ok. 1.2 dcm<sup>3</sup>

$m_p$  - masa próbki w kg

$m_w$  - masa wzorca w kg

$\langle r \rangle$  - średnia "grubość" warstwy materiału otaczającego detektor (w cm), stała dla danej geometrii

Ścisłej biorąc  $\langle r \rangle$  jest średnią drogą przebywaną w próbce (wzorcu) przez kwant gamma o danej energii z dowolnego elementu objętości próbki (wzorca)  $dV$ , potencjalnego miejsca "narodzin" tego kwantu.

$$\langle r \rangle = \int_V r dV(r) / \int_V dV(r) \quad (6)$$

Całkowanie wykonane po objętości próbki "wellowej" przy założeniu, że detektor jest punktowy daje wartość  $\langle r \rangle = 1.7$  cm. Wartości masowych współczynników absorpcji dla  $E_\gamma$ : 1.5 MeV, 2MeV, 3MeV w  $\text{SiO}_2$  wzięto z pracy [8]. Otrzymane poprawki na różną absorpcję promieniowania gamma mają postać:

$$k_1 = \exp\{0.07516(m_p - m_w)\}$$

$$k_2 = \exp\{0.06490(m_p - m_w)\} \quad (7)$$

$$k_3 = \exp\{0.05278(m_p - m_w)\}$$

Masy wzorców: potasowego, uranowego, torowego wynoszą odpowiednio:

$$m_w^K = 1.048 \text{ kg}$$

$$m_w^{Ra} = 1.851 \text{ kg}$$

$$m_w^{Th} = 1.852 \text{ kg}$$

#### 4. Kalibracja, pomiary próbek

Kalibrację przeprowadza się okresowo (1 raz w tygodniu) przy pomocy wzorców objętościowych. Przed wykonaniem pomiarów na wzorcach czy próbkach określa się tzw. bieg własny mierząc tła z aluminiowym równoważnikiem średniej masy próbki, piasek kwarcowy (nośnik dla wzorców) używany jest do pomiaru tła od wzorców. Typowy czas pomiaru tła i wzorców wynosi 10000s. Otrzymywane dla tego czasu wartości biegu własnego w kolejnych oknach pomiarowych wynoszą w przeliczeniu na minutę:

$$n_{t1} \simeq 7. (\text{zlicz./min})$$

$$n_{t2} \simeq 4. \text{ ''}$$

$$n_{t3} \simeq 2.5 \text{ ''}$$

Pomiar próbki dokonywany jest w dwóch etapach po 5000s przedzielonych pomiarem tła. W przypadku różnicy liczb zliczeń w oknach mniejszej niż  $2\sigma$  (statyst.) pomiar jest przesyłany do dalszej analizy. Ze względu na dużą stabilność aparatury odrzucenie pomiaru zdarza się rzadko. Ilość zliczeń brutto od wzorca uranowego i torowego w trzech kolejnych oknach jest pomniejszana o ilość zliczeń tła od nośnika, w przypadku próbki i wzorca potasowego o ilość

zliczeń tła od  $A_1$  równoważnika masy próbki dając ilości zliczeń netto występujące w układzie równań (1). W przypadku wzorca torowego dodatkowo odejmuje się ilości zliczeń wynikające z udziału radu w tym wzorcu.

### 5. Opracowanie wyników, analiza błędów

Wyznaczone z pomiarów kalibracyjnych ilości zliczeń (netto) od wzorca potasowego, uranowego i torowego w trzech oknach energetycznych oraz znane aktywności wzorców pozwalają obliczyć współczynniki kalibracyjne:  $\{a\}$ ,  $\{b\}$ ,  $\{c\}$ ,  $\alpha_K$ ,  $\alpha_{Ra}$ ,  $\alpha_{Th}$ , a następnie rozwiązać układ równań (1). Otrzymane rozwiązanie ma postać:

$$N_K = A_1 N_I - A_2 N_{II} + A_3 N_{III}$$

$$N_U = -B_1 N_I + B_2 N_{II} - B_3 N_{III} \quad (8)$$

$$N_{Th} = C_1 N_I - C_2 N_{II} + C_3 N_{III}$$

gdzie nowe współczynniki  $\{A\}$ ,  $\{B\}$ ,  $\{C\}$  wyrażają się poprzez "stare" współczynniki  $\{a\}$ ,  $\{b\}$  i  $\{c\}$ . Następnym krokiem jest wyliczenie z wzorów (4) aktywności potasu ( $S_K$ ), radu ( $S_{Ra}$ ) i toru ( $S_{Th}$ ) w próbce. Powyższe obliczenia wykonuje się przy pomocy programu KUTH na komputer IBM PC 386.

Błędy aktywności policzono posługując się znanym prawem propagacji błędu dla  $n$  niezależnych zmiennych:

$$y = f(x_1, x_2, \dots, x_n)$$

$$\sigma_y^2 = \left(\frac{\partial f}{\partial x_1}\right)^2 \cdot \sigma_{x_1}^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial x_2}\right)^2 \cdot \sigma_{x_2}^2 + \dots + \left(\frac{\partial f}{\partial x_n}\right)^2 \cdot \sigma_{x_n}^2 \quad (9)$$

I tak z wzorów (4) i (9):

$$\sigma^2 S_K / S_K^2 = \sigma^2 \alpha_K / \alpha_K^2 + \sigma^2 N_K / N_K^2 + \sigma^2 m_p / m_p^2$$

$$\sigma^2 \alpha_K / \alpha_K^2 = \sigma^2 A_{Kw} / A_{Kw}^2 + \sigma^2 n_K / n_K^2$$

Podobnie liczą błędy  $S_{Ra}$  i  $S_{Th}$ . Błędy czasów pomiarów są do zaniechania w przypadku automatycznego sterowania pomiarami (MAESTRO II). Błąd masy próbki wynikający z klasy wagi wynosił 1g. Występujące w równaniach (4) ilości zliczeń  $N_K$ ,  $N_{Ra}$ ,  $N_{Th}$  są funkcjami zmiennych:  $\{A\}$ ,  $\{B\}$ ,  $\{C\}$ ,  $N_I$ ,  $N_{II}$ ,  $N_{III}$ . Błąd ilości zliczeń  $N_K$  ma postać:

$$\sigma^2 N_K = A_1^2(N_I + 2N_{It}) + A_2^2(N_{II} + 2N_{IIIt}) + A_3^2(N_{III} + 2N_{IIIIt}) + N_I^2 \sigma^2 A_1 + N_{II}^2 \sigma^2 A_2 + N_{III}^2 \sigma^2 A_3$$

gdzie  $N_{It}$ ,  $N_{IIIt}$ ,  $N_{IIIIt}$  są ilościami impulsów tła w obecności Al równoważnika średniej masy próbki w kolejnych trzech oknach pomiarowych. Podobnie z wzoru (8) i (9) liczono błędy  $N_{Ra}$  i  $N_{Th}$ . Współczynniki {A}, {B}, {C}, wyrażają się poprzez "stare" współczynniki {a}, {b}, {c}, najpierw zatem liczono błędy tych ostatnich stosując wzór (9), później w ten sam sposób błędy {A}, {B} i {C}. Czasy pomiarów wzorców i tła dla wzorców były jednakowe, w przypadku próbek mogły się różnić w zależności od przewidywanej aktywności. Wszystkie obliczenia wykonuje się przy pomocy programu KUTH na komputer IBM PC 386.

## Literatura:

1. UNSCEAR 1977, Sources and Effects on Ionizing Radiation Report to UN General Assembly, New York 1977.
2. F.J.Aldenkamp, R.J. de Meijer, L.W.Put and P.Stoop, "An Assessment of in situ Radon Exhalation Measurements and the Relation between Free and Bound Exhalation Rates", *Rad. Prot. Dosim.* , 45 (1992) 449.
3. Instrukcja ITB 234 Instytutu Techniki Budowlanej 1980
4. J.Koperski, M.Jasińska, "Narażenie ludności Krakowa na promieniowanie gamma materiałów budowlanych", Raport IFJ D/1082/80, 1980.
5. Adams J.A.S., Gasparini P., 1970. Gamma ray spectrometry of rocks. Elsevier Publishing Company. Amsterdam
6. EG&G ORTEC Part No.761840 Manual Revision A, Maestro II Software Operator's Manual. Software Version 1.30,
7. Kalita S.,1980. Praca doktorska (Akademia Górniczo-Hutnicza w Krakowie)
8. Storm E.,Israel H.,1973. Sprawoznik seczenia wzaimodziejstwa gamma izluczenia. Atomizdat. Moskwa
9. A.Żak, M.Biernacka, "Badania stężeń naturalnych izotopów promieniotwórczych w surowcach i materiałach budowlanych", *Bezpieczeństwo Jądrowe i Ochrona Radiologiczna* , 6 , 1991.