

## EXPRESNÉ STANOVENIE OBJEMOVEJ AKTIVITY $^{222}\text{Rn}$ POMOCOU SCINTILAČNÝCH KOMÔROK LUCASOVHO TYPU

MONIKA MÜLLEROVÁ, KAROL HOLÝ, ANNA POLÁŠKOVÁ

*Fakulta matematiky, fyziky a informatiky, Univerzita Komenského v Bratislave, Mlynská dolina F1, 842 48 Bratislava, mullerova@fmph.uniba.sk*

### ABSTRACT

This report deals with the possibility of the accurate determination of the volume radon activity using the Lucas type scintillation chamber before the radioactive equilibrium between the radon and its decay products is achieved. This method allows to obtain data about the volume activity of the sample promptly and also it offers a possibility to apply the detector for measurements more times a day. We developed a method for the determination of the detection efficiency of the scintillation chamber for varied time periods after the chamber was filled up with a sample. The volume radon activity calculated from the count rates in saturated conditions is in a good agreement with the volume radon activity calculated from our derived relation. It was shown that the scintillation chamber can be used for the express determination of the volume radon activity. The time between the individual applications of the scintillation chamber can be compressed maintaining of sufficient accuracy of the determination of the volume radon activity.

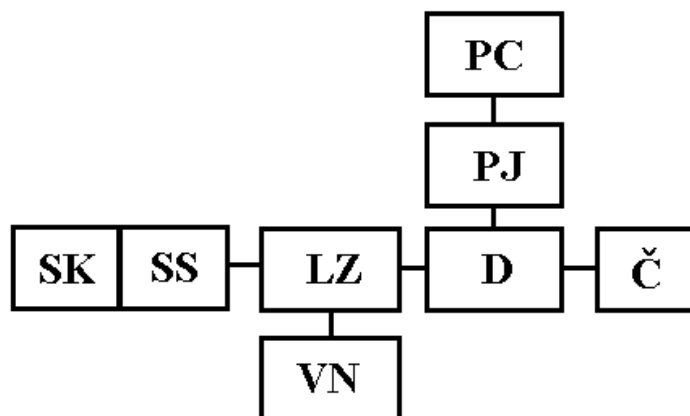
**Key words:** radon, scintillation detector, Lucas chamber, express method

### ÚVOD

Najpoužívanejším detektorom pre meranie  $^{222}\text{Rn}$  (radónu) je scintilačná komôrka Lucasovho typu [1]. Tento detektor sa používa pre meranie radónu v pôdnom vzduchu, v ovzduší pracovných a pobytových priestorov, vo vodách, ale aj v metrológii radónu [2, 3]. Nevýhodou pri štandardnej aplikácii komôrky je, že po jej naplnení radónom je meranie uskutočňované až po štyroch hodinách. To je doba, za ktorú sa v scintilačnej komôrke dosiahne rádioaktívna rovnováha medzi radónom a jeho krátkožijúcimi produktmi premeny. Po odstránení radónu z komôrky je potom potrebné čakať na pokles aktivity od produktov premeny radónu na pozadovú úroveň rádove až desiatky hodín. V našom príspevku je ukázaná možnosť presného stanovenia objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  pomocou Lucasovej komôrky ešte pred dosiahnutím rádioaktívnej rovnováhy medzi  $^{222}\text{Rn}$  a jeho krátkožijúcimi produktmi premeny. Takýto postup umožňuje rýchlejšie získať údaje o objemovej aktivite radónu vo vzorke a tiež použiť detektor pre meranie viackrát za deň.

### OPIS MERACIEHO ZARIADENIA A FYZIKÁLNYCH PROCESOV V DETEKTORE

Štúdium možnosti využitia scintilačných komôrok Lucasovho typu pre expresné stanovenie objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  bolo uskutočňované na komôrkach o objeme 125 ml, ktoré sa najčastejšie používajú pre meranie radónu. Na vnútorných valcových stenách takýchto komôrok je nanosená scintilačná látka ZnS(Ag). Okienko na dne komôrky prepúšťa svetelné záblesky, ktoré vznikajú pri interakcii alfa častíc so scintilátorom ZnS(Ag). Detektor sa plní vzorkou spravidla nasatím vyšetřovaného vzduchu do evakuovanej komôrky cez aerosólový filter po otvorení zavzdušňovacieho ventilu. Po dosiahnutí rádioaktívnej rovnováhy medzi  $^{222}\text{Rn}$  a jeho krátkožijúcimi produktmi premeny (t.j. približne po 4 hodinách) sa komôrka pripojí k scintilačnej sonde a pomocou meracieho zariadenia sa registruje početnosť od vzorky. Schéma nami používaného meracieho zariadenia je ukázaná na obr. 1. My sme pri testovaní používali scintilačné komôrky typu DS 401 M (výrobca EMPOS Praha).



Obr.1. Schéma meracieho zariadenia

(SK – scintilačná komôrka, SS – scintilačná sonda, LZ – lineárny zosilňovač, D – diskriminátor, Č – čítač, VN – zdroj vysokého napätia, PJ – pamäťová jednotka, PC – personálny počítač).

Účinnosť detekcie radónu a jeho produktov premeny je funkciou priestorového rozloženia alfa žiaričov v scintilačnej komôrke. Radón je rovnomerne rozložený vo vnútornom objeme komôrky. Produkty premeny radónu sa môžu usadzovať na stenách komôrky, preto účinnosť ich detekcie je iná ako pri radóne.

Po naplnení komôrky sa v nej radón začne premieňať podľa zákona rádioaktívnej premeny a tiež sa začnú v komôrke hromadiť jeho produkty premeny. Ak označíme: 1 –  $^{222}\text{Rn}$ , 2 –  $^{218}\text{Po}$ , 3 –  $^{214}\text{Pb}$ , 4 –  $^{214}\text{Bi}$ , 5 –  $^{214}\text{Po}$ , potom pre hromadenie atómov produktov premeny z čistého  $^{222}\text{Rn}$  môžeme písať [4]:

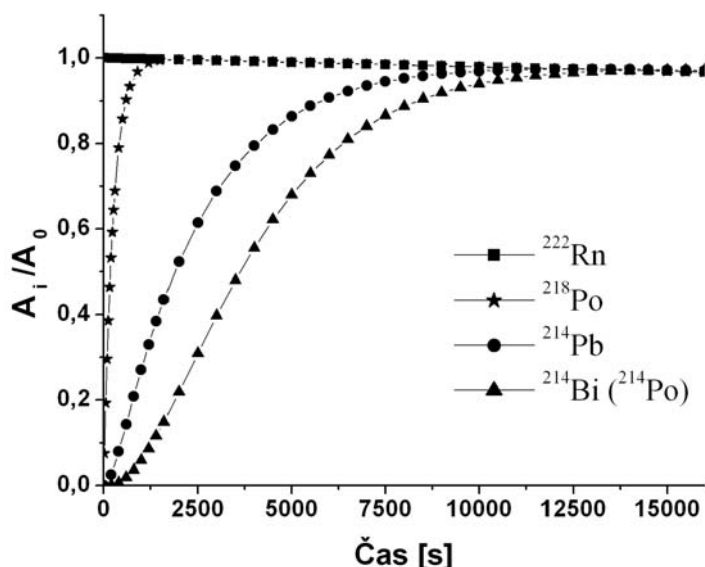
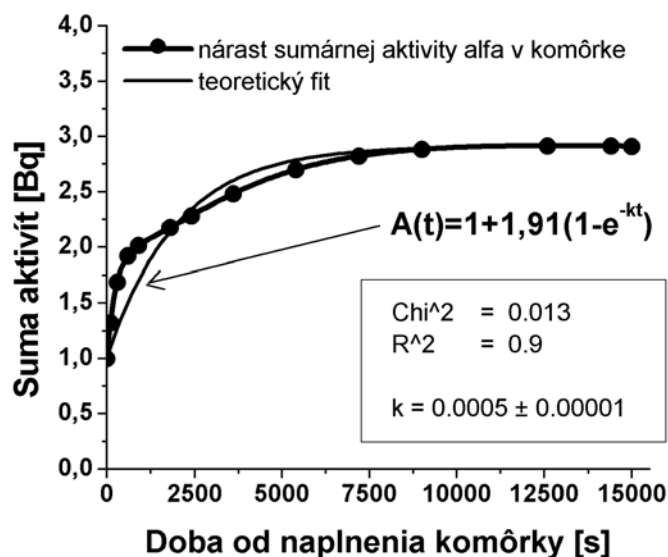
$$N_n = N_{01} \lambda_1 \dots \lambda_{n-1} \left[ \frac{\exp(-\lambda_1 t)}{(\lambda_2 - \lambda_1) \dots (\lambda_n - \lambda_1)} + \dots + \frac{\exp(-\lambda_n t)}{(\lambda_1 - \lambda_n)(\lambda_2 - \lambda_n) \dots (\lambda_{n-1} - \lambda_n)} \right] \quad (1)$$

Kde  $N_{01}$  je počiatočný počet atómov  $^{222}\text{Rn}$  a  $\lambda_i$  sú konštanty premeny  $^{222}\text{Rn}$ , resp. jeho produktov premeny.

Použitím vzťahu (1) vypočítaný nárast aktivít jednotlivých krátkožijúcich produktov premeny ilustruje obr. 2. Aktivita je vyjadrená v relatívnych jednotkách  $A_i / A_0$ , kde  $A_0$  je počiatočná aktivita čistého  $^{222}\text{Rn}$ . Vidíme, že podmienky rádioaktívnej rovnováhy sa dosiahnu približne za 4 hodiny.

Zmenu sumárnej aktivity alfa s časom v scintilačnej komôrke v dôsledku rádioaktívnej premeny  $^{222}\text{Rn}$  a hromadenia sa alfa žiaričov  $^{218}\text{Po}$  a  $^{214}\text{Po}$  ukazuje závislosť znázornená na obr. 3. Tam je tiež znázornený fit nárastu aktivity funkciou:

$$A(t) = 1 + 1,91(1 - e^{-kt}) \quad (2)$$

Obr. 2. Hromadenie krátkožijúcich produktov premeny  $^{222}\text{Rn}$ .

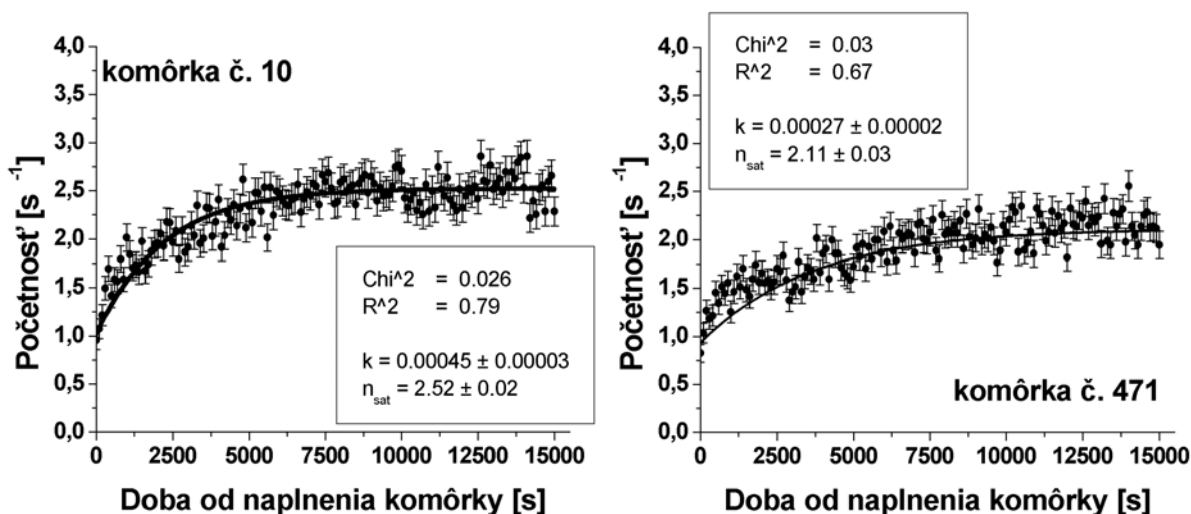
Obr. 3. Nárast sumárnej aktivity alfa s časom v scintilačnej komôrke (suma aktivít = suma aktivít jednotlivých alfa žiaričov za predpokladu jednotkovej počítateľnej aktivity radónu).

Prevýšenie sumárnej aktivity nad fitom v prvých 2000 sekundách je spôsobené rýchlym nárastom aktivity  $^{218}\text{Po}$  z premeny  $^{222}\text{Rn}$  v komôrke. Ďalej už  $^{218}\text{Po}$  k sume aktivít prispieva približne konštantnou hodnotou a tvar krivky určuje nárast aktivity  $^{214}\text{Po}$  v komôrke. V dôsledku toho je tiež sumárna aktivita v istom časovom rozsahu pod fitom nárastovej krivky. Tento efekt pozorujeme aj pri meraných hodnotách početností (obr. 4).

## VÝSLEDKY A DISKUSIA

K štúdiu možnosti stanovenia objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  pomocou Lucasovej komôrky ešte pred dosiahnutím rádioaktívnej rovnováhy medzi  $^{222}\text{Rn}$  a jeho krátkožijúcimi produktmi premeny sme najprv merali nárastové krivky početností od času. K tomu sme scintilačnú komôrku naplnili cez filter 100 ml aktívneho vzduchu. Počty premien od vzorky sme zaznamenávali v 100 sekundových

intervaloch. Týmto spôsobom sme získali závislosti nárastu početností od času pre rôzne komôrky. Niektoré z týchto závislostí sú znázornené na obr. 4.



Obr. 4. Meraný nárast početnosti v závislosti od času pre scintilačné komôrky Lucasovho typu o objeme 125 ml.

Jednotlivé experimentálne získané nárastové krivky početností sme fitovali funkciou:

$$n = n_0 + (n_{sat} - n_0)(1 - e^{-kt}) \quad (3)$$

kde:

$n$  – početnosť nameraná v čase  $t$ ,

$n_0$  – početnosť nameraná ihneď po naplnení komôrky vzorkou,

$n_{sat}$  – početnosť nameraná v saturovanom stave, t.j. po 4 hodinách od naplnenia komôrky vzorkou,

$t$  – doba od naplnenia komôrky vzorkou po meranie,

$k$  – konštanta.

Tab. 1. Zistené hodnoty  $k$  a  $n_0/n_{sat}$  pre testované komôrky.

Komôrka č.	$k$	$n_0/n_{sat}$
10	$0,00045 \pm 0,00003$	$0,4 \pm 0,03$
255	$0,00035 \pm 0,00003$	$0,43 \pm 0,06$
SK <sub>z</sub>	$0,00031 \pm 0,00002$	$0,47 \pm 0,03$
449	$0,00037 \pm 0,00003$	$0,49 \pm 0,03$
470	$0,00031 \pm 0,00003$	$0,49 \pm 0,04$
471	$0,00027 \pm 0,00002$	$0,44 \pm 0,03$
475	$0,0005 \pm 0,00004$	$0,37 \pm 0,06$
priemerná hodnota	0,00037	0,44
smerodajná odchýlka	0,00008	0,05

Fitovaním podľa vzťahu (3) zistené hodnoty parametra  $k$  a  $n_{sat}$ , resp.  $\frac{n_0}{n_{sat}}$  pre testované scintilačné

komôrky s objemom 125 ml sú uvedené v tab. 1. Pre scintilačné komôrky sme vypočítali tiež priemernú experimentálnu hodnotu  $k_{pr}$ , pre ktorú platí:  $k_{pr} = 0,00037 \pm 0,00008$  (viď tab. 1). Táto

hodnota  $k_{pr}$  sa líši od hodnoty parametra  $k$  určeného z fitovania sumárneho nárastu aktivity alfa

v scintilačnej komôrke v závislosti od času, ktorý je rovný  $k_{teor} = 0,0005 \pm 0,00001$ . Rozdiely medzi  $k_{pr}$  a  $k_{teor}$  sú spôsobené rôznou účinnosťou detekcie  $^{222}\text{Rn}$  a jeho krátkožijúcich produktov premeny.  $^{222}\text{Rn}$  voľne rozptýlený v objeme komôrky je detekovaný s inou účinnosťou ako jeho produkty premeny  $^{218}\text{Po}$  a  $^{214}\text{Po}$ , ktoré sa môžu zachytávať aj na stenách komôrky.

Na získanie teoretickej závislosti detekčnej účinnosti scintilačnej komôrky od času  $\varepsilon(t)$  sme vychádzali z predpokladu, že platí:

$$n(t) = \varepsilon(t)A \quad (4)$$

$$n_{sat} = \varepsilon_d A \quad (5)$$

kde:

$n(t)$  – početnosť zaregistrovaná v čase  $t$  od naplnenia komôrky radónom o aktivite  $A$ ,

$n_{sat}$  – početnosť nameraná od radónu a jeho produktov premeny 4 hodiny po naplnení scintilačnej komôrky radónom s účinnosťou  $\varepsilon_d$ .

Potom zo vzťahov (4) a (5) pre závislosť účinnosti od času dostaneme:

$$\varepsilon(t) = \frac{n(t)}{n_{sat}} \varepsilon_d \quad (6)$$

Teoretickú závislosť účinnosti od času pre danú komôrku môžeme potom pomocou vzťahov (3) a (6) vyjadriť v tvare:

$$\varepsilon(t) = \frac{n(t)}{n_{sat}} \varepsilon_d = \frac{n_0 + (n_{sat} - n_0)(1 - e^{-kt})}{n_{sat}} \varepsilon_d = \varepsilon_d \left[ 1 + \left( \frac{n_0}{n_{sat}} - 1 \right) e^{-kt} \right] \quad (7)$$

kde:

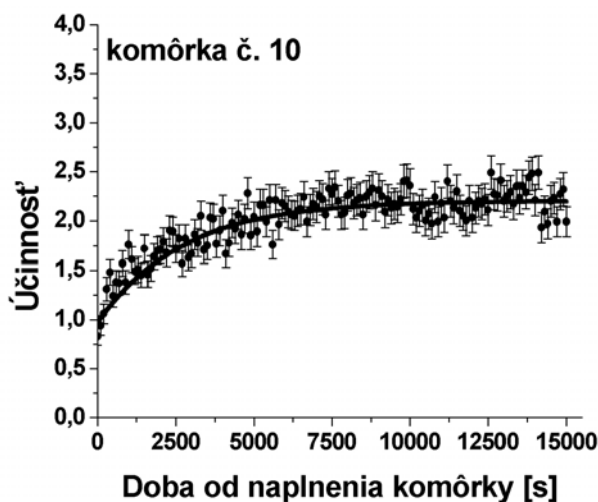
$\varepsilon_d$  – známa účinnosť scintilačnej komôrky v saturovanom stave,

$k, n_{sat}$  – konštanty získané z fitovania nárastov početností v komôrkach,

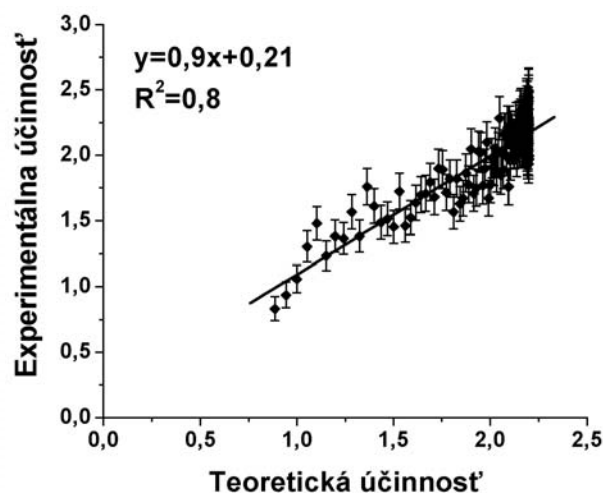
$\frac{n_0}{n_{sat}}$  – pomer početnosti prvého bodu krivky k početnosti v saturovanom stave.

Zo vzťahu (7) vyplýva, že ak teda poznáme pomer  $\frac{n_0}{n_{sat}}$ , konštantu  $k$  a detekčnú účinnosť  $\varepsilon_d$ , tak môžeme vypočítať detekčnú účinnosť scintilačnej komôrky v ľubovoľnom čase po jej naplnení vzorkou. Avšak ako vyplýva z tab. 1 vykazujú hodnoty  $\frac{n_0}{n_{sat}}$  a  $k$  pre rôzne komôrky malú variabilitu

(do 15 %) a je ich teda možné nahradiť konštantami platnými pre všetky scintilačné komôrky o objeme 125 ml. V ďalšom sme preto porovnávali experimentálne určené účinnosti (výpočet z nameraných početností podľa vzťahu (4) s teoreticky vypočítanými účinnosťami podľa vzťahu (7) za predpokladu, že  $k = 0,00037\text{s}^{-1}$  a  $n_{pr} = \frac{n_0}{n_{sat}} = 0,44$ . Ako vidieť na obr. 5 je medzi oboma časovými závislosťami detekčných účinnosti dobrý súhlas, ktorý je vyjadrený korelačným koeficientom  $R^2 = 0,81$  (obr. 6).



Obr. 5. Nárast detekčnej účinnosti scintilačnej komôrky v závislosti od času (body – experimentálne určené hodnoty, plná čiara – výpočet podľa vzťahu (7)).



Obr. 6. Korelácia medzi teoreticky a experimentálne získanou detekčnou účinnosťou.

V ďalšom sme testovali presnosť určovania objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  na základe meraní uskutočnených ešte pred dosiahnutím rádioaktívnej rovnováhy medzi radónom a jeho krátkožijúcimi produktmi premeny v scintilačnej komôrke a to s použitím detekčných účinností vypočítaných podľa vzťahu (7) a s použitím priemerných hodnôt  $k_{pr}$  a  $n_{pr}$ . Na výpočet objemovej aktivity radónu z meraní uskutočnených v rôznom časovom intervale po naplnení scintilačnej komôrky sme použili vzťah:

$$A(t) = \frac{n(t) - n_p}{\varepsilon_d V [1 + (n_{pr} - 1) \exp(-k_{pr} t)]} \exp(\lambda t_{om}) \frac{\lambda t_m}{1 - \exp(-\lambda t_m)} \quad (8)$$

kde:

$n(t)$  – početnosť od vzorky nameraná v čase  $t$  od naplnenia detektora,

$n_p$  – početnosť od pozadia,

$\varepsilon_d$  – účinnosť detektora v saturovanom stave,

$\lambda$  – konštanta premeny radónu,

$V$  – objem vzorky,

$t_{om}$  – doba od konca odberu vzorky po začiatok jej merania,

$t_m$  – doba merania vzorky,

$n_{pr}$  – priemerná hodnota pomeru  $\frac{n_0}{n_{sat}} = 0,44$ ,

$k_{pr} = 0,00037 \text{ s}^{-1}$ ,

$t$  – doba od naplnenia komôrky vzorkou po stred meracieho intervalu.

Hodnoty objemovej aktivity radónu na základe početností nameraných v saturovanom stave s účinnosťou  $\varepsilon_d$ , sme vypočítali podľa nasledovného vzťahu:

$$A(t) = \frac{n_{vz} - n_p}{\varepsilon_d V} \exp(\lambda t_{om}) \frac{\lambda t_m}{1 - \exp(-\lambda t_m)} \quad (9)$$

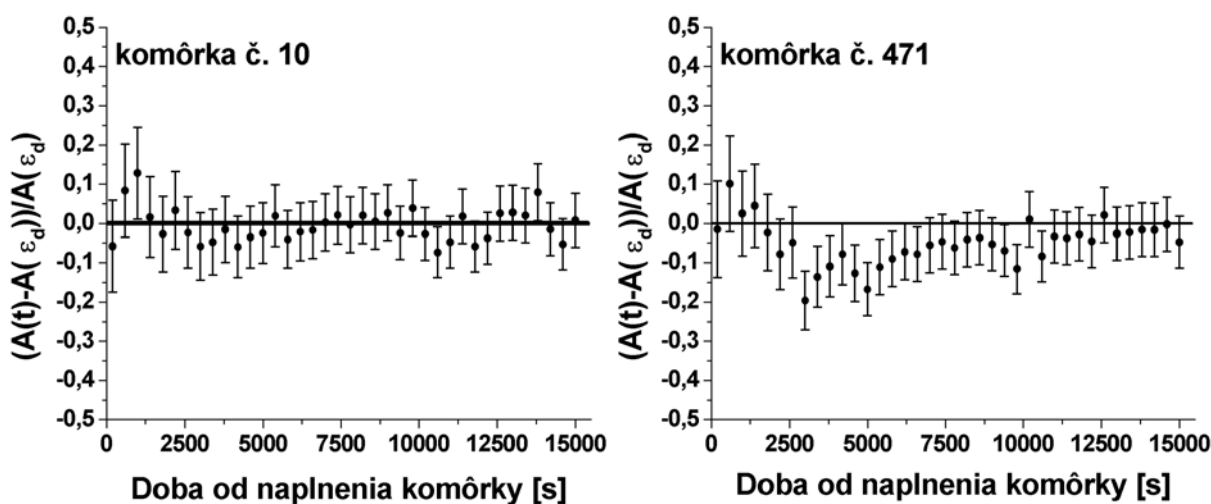
kde:

$n_{vz}$  – početnosť od vzorky meraná 4 hodiny po naplnení scintilačnej komôrky vzorkou,

$\varepsilon_d$  – účinnosť detektora v saturovanom stave.

Význam ďalších symbolov vo vzťahu (9) je ten istý ako vo vzťahu (8).

Testovanie presnosti výpočtu objemových aktivít  $^{222}\text{Rn}$  sme uskutočňovali na dvoch scintilačných komôrkach, a to takých, u ktorých sa experimentálne zistená hodnota  $k$  najviac líšila od priemernej hodnoty  $k_{pr}$ . Početnosti použité pre výpočet aktivity boli získavané na základe 400 sekundových meraní, aby bola dosiahnutá štatistická neistota meraní pod 5 %. Výsledky porovnávania metód sú uvedené na obr. 7. Tam vidíme, že v oblasti okolo 1000 sekúnd od naplnenia komôrky sú vypočítané objemové aktivity väčšie a v oblastiach okolo 4000 sekúnd nižšie ako je hodnota  $A(\varepsilon_d)$  vypočítané podľa vzťahu (9). Je to spôsobené hlavne rýchlym nárastom aktivity  $^{218}\text{Po}$  v komôrke. Teoretický fit v tejto oblasti nepopisuje presne priebeh nárastu účinnosti komôrky, preto pri použití teoretickej hodnoty  $\varepsilon(t)$  pre výpočet objemovej aktivity radónu vznikajú odchýlky. Tieto odchýlky, ako vyplýva z obr. 7, sú však na úrovni len do 15 % od objemovej aktivity určenej na základe meraní v saturovanom stave. Po vypočítaní aritmetického priemeru z objemových aktivít radónu určených podľa vzťahu (8) sme získali v rámci neistôt tiež rovnaké hodnoty ako sú objemové aktivity vypočítané štandardným spôsobom (vzťah 9) a to u oboch testovaných komôrok. Výsledky výpočtu aktivity oboma spôsobmi sú uvedené v tab. 2.



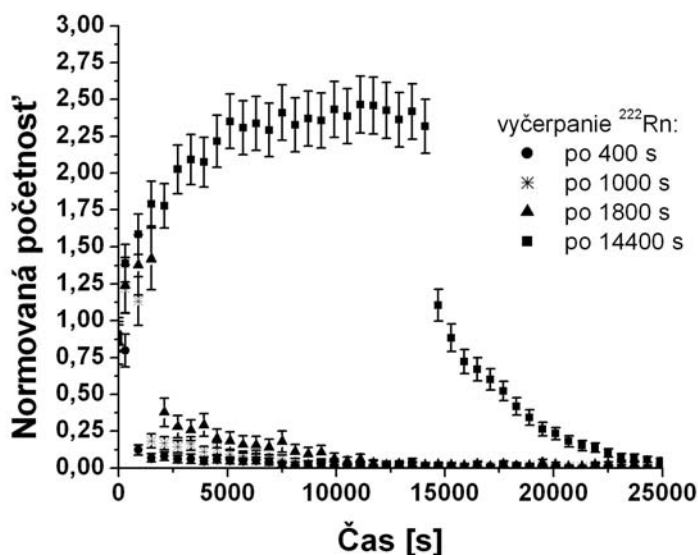
Obr. 7. Relatívne odchýlky objemových aktivít  $A(t)$  od hodnoty objemovej aktivity  $A(\varepsilon_d)$  získanej v saturovanom stave.

Tab. 2. Porovnanie aktivít pôdneho vzduchu získaného dvomi rôznymi spôsobmi

Komôrka č.	Aktivita vypočítaná štandardným spôsobom [Bq.l <sup>-1</sup> ]	Priemerná aktivita vypočítaná pomocou $\varepsilon(t)$ [Bq.l <sup>-1</sup> ]
10	11,9 ± 0,5	11,9 ± 0,5
471	10,3 ± 0,5	9,7 ± 0,6

Ako vyplýva z obr. 2 závisí úroveň aktivity jednotlivých krátkožijúcich produktov premeny  $^{222}\text{Rn}$  v scintilačnej komôrke od doby, počas ktorej meraná vzorka zotrúva v detektore. Pretože po vyčerpaní vzorky časť produktov premeny zostane zachytená na stenách komôrky, tak je potrebné čakať istú dobu, aby sa hlavne dlhšie žijúce produkty premeny ( $^{214}\text{Pb}$  a  $^{214}\text{Bi}$ ) rozpadli a pozadie sa vrátilo na normálnu úroveň. Je zrejmé, že skrátením doby od naplnenia komôrky vzorkou po merania a tiež doby merania sa dá skrátiť aj doba, ktorá je potrebná na dosiahnutie normálneho pozadia detektora. Toto dobre ilustruje obr. 8, kde sú ukázané závislosti poklesu zvyškovej aktivity produktov

premeny radónu s časom po jeho vyčerpaní z komôrky. Na obrázku je vidieť, že početnosť od produktov premeny klesne na pozad'ovú úroveň za dobu do 10000 sekúnd aj pri držaní  $^{222}\text{Rn}$  v detektore do 1800 sekúnd. Z uvedeného vyplýva, že tú istú scintilačnú komôrku je možné použiť pre meranie objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  aj dvakrát denne, samozrejme za predpoklad, že aktivita vzorky je dostatočne vysoká (napr. vzorky pôdneho vzduchu) a doba merania vzorky nemusí byť dlhšia ako niekoľko stoviek sekúnd.



Obr. 8. Ilustrácia poklesu aktivity v scintilačnej komôrke o objeme 125 ml po vyčerpaní vzorky z detektora.

## ZÁVER

V práci sme rozpracovali expresnú metódu určovania objemovej aktivity  $^{222}\text{Rn}$  na báze scintilačnej komôrky Lucasovho typu. Získali sme experimentálne závislosti nárastu početností od doby naplnenia komôrky radónom po dosiahnutie rádioaktívnej rovnováhy pre scintilačnú komôrku Lucasovho typu s objemom 125 ml. Z fitovania priebehu týchto nárastov sme určili priemerné hodnoty parametrov:  $k_{pr} = 0,00037 \pm 0,00008$  a  $n_{pr} = 0,44 \pm 0,05$  pre dané komôrky. Ďalej sme porovnali priemernú experimentálnu hodnotu  $k_{pr}$  s teoreticky získanou hodnotou  $k_{teor} = 0,0005 \pm 0,00001$ . Rozdiely medzi nimi sú spôsobené tým, že produkty premeny radónu sa zachytávajú na stenách komôrky. Preto sa  $^{222}\text{Rn}$  detekuje s inou účinnosťou ako jeho dcérske produkty  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$ . Ďalej sme rozpracovali metódu určenia detekčnej účinnosti scintilačnej komôrky pre rôzne doby uplynuté od naplnenia komôrky vzorkou. Ukázali sme, že objemové aktivity  $^{222}\text{Rn}$  vypočítané štandardným spôsobom, t.j. z početností nameraných v saturovanom stave sú v dobrom súhlase s objemovými aktivitami  $^{222}\text{Rn}$  vypočítanými na základe nameraných početností  $n(t)$  a účinností určených na základe nami odvodeného vzťahu (7). Nakoniec sme ukázali, že je možné skrátiť dobu medzi jednotlivými aplikáciami scintilačnej komôrky pre získanie dostatočne presných údajov o objemovej aktivite  $^{222}\text{Rn}$ , ak je objemová aktivita dostatočne vysoká.

## POĎAKOVANIE

Táto práca bola finančne podporovaná Vedeckou grantovou agentúrou Ministerstva školstva SR a SAV (VEGA projekt č. 1/0246/03).



**POUŽITÁ LITERATÚRA**

1. LUCAS, H. L., Improved Low-Level Alpha Scintillation Counter for Radon. In: *Rev. Sci. Instrum.* 28, 1957, p. 680
2. *Measurement of Radon and Radon Daughters in Air*, Bethesda: NCRP Report No. 97, 1988, 174 p.
3. VIČANOVÁ, M.: Overenie meradiel radónu. HYBLER, P., (Ed.): *Zborník III. Banskoštiavnické dni 2001*, ISK Senec, 2002, 200 p.
4. SERDJUKOVA, A. S., KAPITANOV, Ju. T.: *Izotopy radona i korotkoživuščije produkty ich raspada v prirode*, Moskva: Atomizdat, 1969, 312 p.