

**ДРУШТВО ЗА ЗАШТИТУ ОД ЗРАЧЕЊА
СРБИЈЕ И ЦРНЕ ГОРЕ**



**ЗБОРНИК
РАДОВА**

**XXIX СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ
Сребрно језеро
27- 29. септембар 2017. године**

**Београд
2017. године**

**SOCIETY FOR RADIATION PROTECTION OF
SERBIA AND MONTENEGRO**



PROCEEDINGS

**XXIX SYMPOSIUM DZZSCG
Srebrno jezero
27- 29. September 2017**

**Belgrade
2017**

ЗБОРНИК РАДОВА

**ХХХ СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ
27-29.09.2017.**

Издавачи:

Институт за нуклеарне науке „Винча“
Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе

За извршног издавача:

Др Борислав Грубор

Уредници:

Др Јелена Станковић Петровић
Др Гордана Пантелић

ISBN 978-86-7306-144-3

©Institut za nuklearne nauke „Vinča“

Техничка обрада:

Јелена Станковић Петровић, Гордана Пантелић

Штампа:

Институт за нуклеарне науке ”Винча”, Мише Петровића Аласа 12-14, 11351
Винча, Београд, Србија

Тираж:

150 примерака

Година издања:

Септембар 2017.

MERENJE EKSHALACIJE RADONA IZ GRAĐEVINSKIH MATERIJALA

Predrag UJIĆ¹, Igor ČELIKOVIĆ¹, Ahmed AWHIDA², Boris LONČAR², Gordana PANTELIĆ¹, Ivana VUKANAC¹, Predrag KOLARŽ³, Aleksandar KANDIĆ¹, Mirjana ĐURAŠEVIĆ¹, Miloš ŽIVANOVIĆ¹

- 1) Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija,
ujic@vin.bg.ac.rs
- 2) Univerzitet Univerzitet u Beogradu, Tehnološko-metalurški fakultet, Beograd, Srbija
- 3) Univerzitet u Beogradu, Institut za fiziku, Beograd, Srbija

SADRŽAJ

Prikazan je pregled najnovijeg gama metoda za merenje ekshalacije radona iz građevinskih materijala, koji pored ekshalacije omogućava merenje faktora emanacije i merenje difuzione dužine radona u datom materijalu, što nije moguće u standardnim merenjima ekshalacije radona. Takođe su prikazana i još tri standardna metoda merenja ekshalacije radona i dato je uporedno objašnjene prednosti i mana ovih metoda. Biće dat i pregled dosadašnjih merenja u Srbiji.

1. UVOD

Preko 50% ukupne doze koju prima stanovništvo potiče od izlaganja radonu i njegovim potomcima. Naime, radon je plemeniti gas, ali su potomci radona metali i kao takvi prianjaju na bronhije i bronhole gde destruktivnost alfa zračenja najviše dolazi do izražaja [1, 2, 3]. Zaključeno je da između 3% i 14% smrtnih ishoda raka pluća nastaje usled izlaganja radonu [2], što ukazuje na značaj proučavanja izlaganja radonu.

Kao primordijalni element, ²³⁸U je prisutan u Zemljinoj kori u manjoj ili većoj koncentraciji, a kao posledica te činjenice, prisutan je i u građevinskim materijalima. Radioaktivni niz raspada ²³⁸U uključuje i ²²⁶Ra koji je jezgro roditelj radona ²²²Rn. Dva glavna izvora radona u zatvorenim prostorijama su zemljишte na kojem je podignut stambeni objekat, a za njim po važnosti su građevinski materijali. Pored radona ²²²Rn, postoji i izotop ²²⁰Rn, koji se još kolokvijalno naziva toron jer pripada torijumskom radioaktivnom nizu i njegov direktni predak je ²²⁴Ra. Toron ima znatno kraći period poluraspada od radona (u daljem tekstu termin radon će se odnositi samo na izotop ²²²Rn) koji iznosi ~55 s, dok je period poluraspada radona ~3,8 dana. Stoga je difuziona dužina torona mnogo kraća i glavni izvor torona u zatvorenim prostorijama je skoro isključivo građevinski materijal.

Da bi se kvantifikovalo i regulisalo izlaganje radionuklidima iz građevinskih materijala uveden je takozvani gama indeks predložen od strane Evropske komisije [4]:

$$I_{\gamma} = \frac{C_{Ra}}{300(\text{Bq kg}^{-1})} + \frac{C_{Th}}{200(\text{Bq kg}^{-1})} + \frac{C_K}{3000(\text{Bq kg}^{-1})} \quad (1)$$

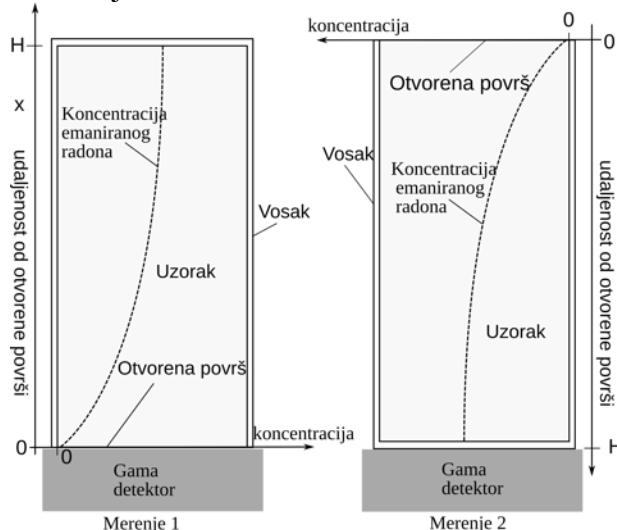
gde su C_{Ra} , C_{Th} i C_K koncentracije ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K, respektivno. Radi izlaganja radonu koji potiče od ²²⁶Ra, uveden je i takozvani alfa indeks koji bi trebalo da unese i ograničenje koje bi umanjilo verovatnoću da se u zatvorenoj prostoriji pojavi povećana koncentracija radona usled ekshalacije iz građevinskog materijala:

$$I_{\alpha} = \frac{C_{Ra}}{200(\text{Bq kg}^{-1})} \quad (2)$$

2. METODI MERENJA EKSHALACIJE RADONA

2.1 GAMA METOD

U ovom metodu se meri neekshalirana komponenta radona u uzorku, na osnovu koje se procenjuje ekshalirani ideo radona [5]. Uzorak je zatopljen izuzev jedne povrsine, pa se javlja gradijent radona i njegovih potomaka unutar uzorka. Gradijent zavisi od difuzione dužine radona, a ideo emaniranog radona od emanacionog koeficijenta. Na osnovu dva merenja kako je to prikazano na slici 1 moguće je odrediti ova dva parametra, a indirektno i brzinu ekshalacije radona iz uzorka.



Slika 1. Gama metod

Neemanirana komponenta ima konstantnu koncentraciju unutar uzorka:

$$C_{ne} = C_{Ra}(1 - \varepsilon) \quad (3)$$

Dok je koncentracija emanirane komponente opisana difuzionom jednačinom:

$$D \frac{\partial^2 C_e(x)}{\partial x^2} - \lambda C_e(x) + \frac{C_{Ra}\rho\varepsilon}{p} = 0 \quad (4)$$

Ukupna koncentracija unutar uzorka je opisana sledećom jednačinom:

$$C_{tot}(x) = C'_e(x) + C_{ne} = C_{Ra} [1 + \varepsilon \tanh(H/L) \sinh(x/L) - \varepsilon \cosh(x/L)] \quad (5)$$

gde su L – difuziona dužina radona, ε – koeficijent emanacije, H – visina uzorka i C_{Ra} – koncentracija radijuma.

Kalibracija se u gama spektrometriji vrši pomoću standarda određene dimenzije sastava, isključivo pri homogenoj distribuciji radionuklida u samom standardu. Kako uslov homogenosti nije ispunjen u ovom slučaju, neophodno je odrediti kalibracioni faktor η koji uzima u obzir i udaljenost datog sloja od detektora. Ovaj koeficijent je moguće odrediti pomoću programskog paketa EFFTRAN. Tada se za slojeve konačne debljine Δx na udaljenosti x određuje kalibracioni koeficijent datog sloja, a onda se

interpolacijom polinomijalne funkcije može odrediti i kalibraciona funkcija, koja je zavisna od debljine Δx . Da bi se izbegla ova zavisnost mora se izvršiti i normalizacija ove funkcije. Na kraju se kao brzina brojanja dobija sledećom funkcijom:

$$R_i = mI_i C_{Ra} \eta^{(H)} \frac{\int_0^H [1 + \varepsilon \tanh(H/L) \sinh(x/L) - \varepsilon \cosh(x/L)] \eta_{\Delta x}^{(i)}(H-x) dx}{\int_0^H \eta_{\Delta x}^{(i)}(x) dx} \quad (6)$$

koja ima dve nepoznate – difuzionu dužinu radona L i koeficijent emanacije ε . Na osnovu dva merenja (slika 1) moguće je odrediti ove dve veličine.

Brzina ekshalacije se određuje pomoću Fikovog zakona:

$$J(x) = -D \frac{\partial C(x)}{\partial x} \quad (7)$$

kao

$$E = J(0) = C_{Ra} \varepsilon \frac{D}{L} \rho \tanh(H/L) \quad (8)$$

gde je $D=L^2\lambda$, koeficijent difuzije radona u datom materijalu.

2.2 METOD ZATVORENE KOMORE

Ovo je relativno jednostavan i veoma rasprostranjen metod merenja ekshalacije radona iz građevinskih materijala. Zasniva se na principu gomilanja radona u komori u kojoj se nalazi uzorak. Merenje može da se vrši bilo pomoću aktivnog uređaja bilo pomoću pasivnih trag detektora.

U slučaju merenja aktivnim uređajem brzina ekshalacije se određuje na osnovu fita merenih vrednosti na sledeću funkciju:

$$C(t) = \frac{EA}{V\lambda_{eff}} \left(1 - e^{-\lambda_{eff} t} \right) + C_0 e^{-\lambda_{eff} t} \quad (9)$$

gde su E – brzina ekshalacije, A – površina uzorka, V – zapremina komore, C_0 – početna koncentracija radona u komori,

$$\lambda_{eff} = \lambda + \lambda_l + \lambda_b \quad (10)$$

gde je λ verovatnoća raspada radona, λ_l – verovatnoća uklanjanja atoma radona usled curenja iz komore i λ_b – verovatnoća vraćanja atoma radona i komore natrag u uzorak. U slučaju da se merenje vrši trag detektorima koristi se integralna verzija jednačine 9:

$$E = \frac{\rho V \lambda_{eff}}{kA} \frac{1}{t - \frac{1}{\lambda_{eff}} \left(1 - e^{-\lambda_{eff} t} \right)} \quad (11)$$

gde su ρ – gustina tragova na trag detektoru, a k je kalibracioni koeficijent detektora.

2.3 METOD KANISTRA SA AKTIVNIM UGLJEM

Detalji metoda su dati u referenci [6]. Kanistri sa aktivnim ugljem se koriste za merenje radona, a koncentracija radona se dobija po sledećoj formuli:

$$C_r = \frac{G - B}{tE_f C_f D_f} \quad (12)$$

gde je G ukupna površina područja od interesa, B je površina istog područja merenog na fon, E_f je koeficijent efikasnosti detektora, C_f je koeficijent brzine adsorpcije radona na aktivni ugalj,

$$D_f = e^{-\frac{0,693 t_s}{T_{1/2}}} \quad (13)$$

gde je t_s sredina proteklog vremena od početka izlaganja kanistra do početka merenja na gama detektoru, $T_{1/2}$ je vreme poluraspada radona.

Merenje ekshalacije je zasnovano na činjenici da ako je kanistar pripojen na mereni uzorak, tada svaki atom koji napusti uzorak biva adsorbovan od strane aktivnog uglja i tada je brzina ekshalacije E_t jednaka fluksu adsorpcije radona u kanistru koji predstavlja proizvod $C_r C_f$, odnosno:

$$E_t = \frac{G - B}{tE_f D_f} \quad (14)$$

3. REZULTATI I DISKUSIJA

U cilju poređenja metoda izvršena je i ad-hoc interkomparacija predloženih metoda. U svim metodima je korišćen cilindrični betonski uzorak dijametra 7,1 cm i visine 12 cm. Uzorak ima maseni udeo od 40% cementa, 15% peska i 45% travertina iz Niške Banje. Koncentracija ^{226}Ra u uzorku je $175 \pm 2 \text{ Bq kg}^{-1}$. Dobijeni rezultati merenja brzine ekshalacije radona različitim metodama su dati u tabeli 1.

Tabela 1: Izmerene brzine ekshalacije različitim metodama

	Brzina ekshalacije [$\text{Bq s}^{-1} \text{m}^{-2}$]	Nesigurnost merenja [$\text{Bq s}^{-1} \text{m}^{-2}$]
Aktivni ugalj	0,028	0,004
Komora (trag detektor)	0,034	0,002
Komora (aktivni instrument)	0,0311	0,0002
Gama metod	0,0326	0,0014

Metod sa aktivnim ugljem je manje osetljiv metod od ostalih, ali se ova osetljivost može povećati produženjem izlaganja i merenja. Ovaj metod ima solidan potencijal za in-situ merenja ekshalacije radona, jer za razliku od merenja aktivnim instrumentima, manje narušava komoditet stanara. Ipak aktivni metod ima veću osetljivost merenja, uključujući i in-situ merenja.

Merenje ekshalacije pomoću zatvorene komore i trag detektora nudi veću osetljivost, ali zato kod merenja trag detektorima nije moguće pratiti curenje komore ukoliko postoji. Za razliku od trag detektora, merenje aktivnim uređajem omogućava i merenje curenja komore, pa samim tim i korekciju na isto. Eventualna manja ovog metoda je što pojedini

instrumenti zahtevaju isušivanje vazduha, što onemogućava kontrolisanje vlage pri merenju ekshalacije. Gama metod je novopredloženi metod merenja ekshalacije radona i jedinstven je po tome što pored merenja ekshalacije radona kao rezultat daje i difuzionu dužinu i koeficijent emanacije radona u datom materijalu. Dobijena difuziona dužina radona u pomenutom uzorku je $(0,31 \pm 0,03)$ m, a koeficijent emanacije $0,45 \pm 0,02$. Mana ovog metoda je komplikovan proračun i duga priprema uzorka.

Zanimljivo je da dati uzorak ima veoma visoku brzinu ekshalacije radona, a da je ovakav materijal i dalje prihvatljiv kao građevinski materijal. Koncentracija radona u zatvorenoj prostoriji potekla usled ekshalacije iz građevinskog materijala se računa kao:

$$C_{Rn} = \frac{EA_r}{V_r \lambda_v} \quad (15)$$

gde su E – brzina ekshalacije, A_r – površina zidova, V_r – zapremina prostorije i λ_v – koeficijent provetrvanja prostorije koji je u intervalu $(0,2\text{--}2) \text{ h}^{-1}$ (UNSCEAR, 2000), sa geometrijskom sredinom od $0,63 \text{ h}^{-1}$. Ako se uzme da je uobičajen odnos $A_r/V_r = 1,6$, za $\lambda_v=0,2 \text{ h}^{-1}$ se dobija vrlo visoka koncentracija – $C_{Rn} = 711 \text{ Bq m}^{-3}$, a za $\lambda_v=0,63 \text{ h}^{-1}$ $C_{Rn}=226 \text{ Bq m}^{-3}$, što odgovara dozama od $\sim 18 \text{ mSv}$ i $\sim 6 \text{ mSv}$, respektivno, što je značajno više od ograničenja, koja su data i gama i alfa indeksom.

Do sada je ekshalacija radona iz komercijalnih građevinskih materijala u Srbiji merena u dva navrata [7,8] i brzine ekshalacije su kretale u intervalima od $0,039 \text{ mBq s}^{-1}$ do $0,36 \text{ mBq s}^{-1}$, odnosno od $0,0004 \text{ mBq s}^{-1}$ do $0,24 \text{ mBq s}^{-1}$.

4. ZAKLJUČAK

Prikazano je nekoliko metoda za merenje brzine ekshalacije radona. Izbor metoda zavisi od različitih faktora, prevashodno od raspoloživosti sredstava. Svakako je metod merenja zatvorenom komorom i aktivnim instrumentom najjednostavniji i najpouzdaniji. Merenje kanistrima sa aktivnim ugljem nudi jednostavno i jeftino rešenje za in-situ merenja. Gama metod je računski komplikovan, ali jedini nudi mogućnost merenja koeficijenta emanacije i difuzione dužine radona u datom materijalu.

Ukazano je da postojeće regulisanje sadržaja radionuklida u građevinskim materijalima nije dovoljno u pojedinim slučajevima da sa sigurnošću smanjilo mogućnost izlaganja stanovništva dozama većim od 1 mSv .

5. LITERATURA

- [1] Health Effects of Exposure to Radon: BEIR VI (Free Executive Summary) National Research Council. Izdavac, grad, godina
- [2] WHO Handbook on Indoor Radon: a Public Health Perspective. WHO press, Geneva, 2009.
- [3] J. Ferlay, P. Autier, M. Boniol, M. Heanue, M. Colombet, P. Boyle. Estimates of the cancer incidence and mortality in Europe in 2006. *Ann. Oncol.* 18, 2007, 581–592.
- [4] Radiation protection 112 – Radiological Protection Principles Concerning the Natural Radioactivity of Building Materials. Directorate-General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection. EC (European Commission), 1999.
- [5] A. Awhida, P. Ujić, I. Vukanac, M. Đurašević, A. Kandić, I. Čeliković, B. Lončar, P. Kolarž. Novel method of measurement of radon exhalation from building materials. *Journal of Environmental Radioactivity*. 164, 2016, 337–343.

- [6] G. Pantelić, M. Eremić Savković, M. Živanović, J.Nikolić, M.Rajačić, D.Todorović. Uncertainty evaluation in radon concentration measurement using charcoal canister. *Applied Radiation and Isotopes*. 87, 2014, 452–455.

MEASUREMENT OF RADON EXHALATION FROM BUILDING MATERIALS

Predrag UJIĆ¹, Igor ČELIKOVIĆ¹, Ahmed AWHIDA², Boris LONČAR², Gordana PANTELIĆ¹, Ivana VUKANAC¹, Predrag KOLARŽ³, Aleksandar KANDIĆ¹, Mirjana ĐURAŠEVIĆ¹, Miloš ŽIVANOVIĆ¹

- 1) Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija,
ujic@vin.bg.ac.rs
2) Univerzitet Univerzitet u Beogradu, Tehnološko-metalurški fakultet, Beograd, Srbija
3) Univerzitet u Beogradu, Institut za fiziku, Beograd, Srbija

ABSTRACT

A review of a new radon exhalation measurement method is presented. This method provides also a measurement of the radon diffusion length and the radon emanation coefficient, which is not possible by standard radon exhalation measurement methods. Besides, three standard radon exhalation measurements are presented: closed chamber with an active instrument, closed chamber with a solid state nuclear track detector and a charcoal canister method. An intercomparison of advantages and disadvantages is also given. A short review of previous measurements of radon exhalation from comercial building materials in Serbia will be given in the presentation.