

PACS: 07.60.Dq, 23.60.+e, 23.40.-s, 89.40.Dd

RADON-222 DETECTION USING BETA-DECAY PRODUCTS**I.I. Yakimenko, N.G. Styervoyedov, A.F. Shchus, G.M. Onyshchenko***V.N. Karazin Kharkiv National University**Svobody Sq. 4, 61022, Kharkiv, Ukraine**e-mail: shchus@karazin.ua, onyshchenko.gm@karazin.ua*

Received September 23, 2015

The paper shows the possibility of determining of the radon by the radiometer on a base of multi-channel time analyzer of beta – decay products of radon. The radiometer consist of an electrostatic aerosol collector combined with the air intake, Geiger-Muller counter for detection of beta particles and multi-channel time analyzer. Accumulation time of aerosol sample takes up to 20 min, the time data processing is done by the radiometer about 5 hours. The data processing is at off-line mode using the computer decomposition process of decay spectrum.

KEYWORDS: beta activity; radiometer; Radon-222; multi-channel time analyzer

ДЕТЕКТИРОВАНИЕ РАДОНА-222 С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ БЕТА-АКТИВНЫХ ПРОДУКТОВ РАСПАДА**И.И. Якименко, Н.Г. Стервояедов, А.Ф. Щусь, Г.М. Онищенко***Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина**пл. Свободы 4, 61022, Харьков, Украина*

В работе показана возможность определения радона по его бета-радиоактивным продуктам распада с помощью радиометра на основе многоканального временного анализатора. В состав радиометра входит комбинированный электростатический сборщик аэрозолей, совмещенный с воздухозаборником, счетчик Гейгера-Мюллера для детектирования бета-частиц и многоканальный временной анализатор. Время забора пробы ~ 20 мин, измерение временных спектров распада бета-активности накопленных на фильтре аэрозолей выполняется в течение ~ 5 ч. Данные обрабатываются в режиме off-line с применением компьютерной процедуры разложения временного спектра на составные компоненты.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: бета-активность; радиометр; радон-222; многоканальный временной анализатор

ДЕТЕКТУВАННЯ РАДОНУ-222 З ВИКОРИСТАННЯМ БЕТА-АКТИВНИХ ПРОДУКТІВ РОЗПАДУ**І.І. Якименко, М.Г. Стервояедов, О.П. Щусь, Г.М. Онищенко***Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна**м. Свободи 4, 61022, Харків, Україна*

В роботі показана можливість визначення радону по його бета-радиоактивним продуктам розпаду за допомогою радіометра на основі багатоканального часового аналізатора. До складу радіометра входить комбінований електростатичний накопичувач аерозолів, поєднаний з повітрозабірником, лічильник Гейгера-Мюллера для детектування бета-частинок і багатоканальний часовий аналізатор. Час забору проби ~ 20 хв, виміри часових спектрів розпаду бета-активності накопленої на фільтрі аерозолів виконується протягом ~ 5 г. Дані обробляються в режимі офф-лайн із застосуванням комп'ютерної процедури розв'язання часового спектра на складові компоненти.

Радиоактивные аэрозоли, представляющие собой взвешенные частицы в воздухе – одна из форм радиоактивных веществ, попадающих в организм человека через его дыхательную систему. Генераторами радиоактивности атмосферного воздуха являются такие радиоактивные газы, как: Rn-222, $T_{1/2} = 3,823$ сут; Rn-220, $T_{1/2} = 55,6$ с; Rn-219, $T_{1/2} = 3,96$ с; Rn-218, $T_{1/2} = 35$ мс. Радон постоянно поступает в атмосферу из земных пород: Rn-222, Rn-218 – при альфа-распаде ядер Ra-226 и бета-распаде ядер At-218, соответственно (семейство урана-радия), Rn-220 – при альфа-распаде ядер Ra-224 (семейство тория), Rn-219 – при альфа-распаде ядер Ra-223 (семейство актиния) [1, 10-14].

При распаде радона выделяются альфа-частицы, особенно опасные при попадании в легкие человека. Не менее опасны и другие продукты распада радона – радиоактивные изотопы свинца, висмута, полония, поскольку они образуют аэрозоли, которые могут вызвать у человека поражения легких. Именно поэтому анализ изотопов радона и продуктов его распада особенно важен для медицины (радоновая терапия, радоновые ванны). Анализ также важен для радиозкологии, разведки полезных ископаемых.

Также радиоактивными являются дочерние продукты распада наиболее долгоживущего изотопа радон-222, обладающие свойством осаждаться на аэрозольных частицах, делая их радиоактивными: Po-218 (3,10 мин), Pb-214 (26,8 мин), Bi-214 (19,9 мин), Po-214 (0,164 мс), Pb-210 (22,3 года), Bi-210 (5,013 сут), Po-210 (138,38 сут). Такие аэрозоли эквивалентны “горячим частицам” радиоактивной пыли черномыльских осадков [1]. Иногда эти негазообразные продукты называют «активным налётом». Концентрация радона (Rn-222) в воздухе составляет около $10 \cdot 10^{-3}$ Бк/л; торона (Rn-220) – около $27 \cdot 10^{-4}$ Бк/л, а концентрация их продуктов распада составляет в среднем $5 \cdot 10^{-3}$ Бк/л [2]. Изотоп Rn-222 дает примерно 50-55% дозы облучения, которую ежегодно получает каждый житель Земли, изотоп Rn-220 прибавляет к этому еще ~5-10%.

Завышенные концентрации радона обнаруживаются не только в подземных выработках, но и в жилых

домах, в офисах. Концентрация радона в закрытых помещениях в среднем примерно в 5 - 8 раз выше, чем в наружном воздухе. Поскольку плотность радона ($9,81 \text{ мг/см}^3$) почти в 8 раз выше плотности воздуха ($1,293 \text{ мг/см}^3$), он накапливается в больших количествах в цокольных помещениях, подвалах и на первых этажах зданий. Относительный вклад в формирование "радоновой нагрузки" в зданиях следующий: грунт под зданием и стройматериалы – 78%; наружный воздух – 13%; вода, используемая в доме – 5%; природный газ – 4% [2-4].

Достоверная регистрация изотопов радона в смеси газов – сложная и до сих пор до конца не решённая задача [5]. Особенно значительные трудности возникают в связи с невысокой адсорбцией радона воздушными фильтрами, самопоглощением альфа-частиц в фильтрах. Для количественного определения изотопов радона также необходимо иметь объёмные эталоны радиоактивных газов, однако создание их необычайно трудно даже для сравнительно долгоживущего изотопа – радона-222.

К наиболее известным методам регистрации радона и продуктов его распада можно отнести трековые, термолюминесцентные методы, а также методы с использованием поверхностно-барьерных детекторов. Чаще всего они используются для регистрации альфа-частиц, испускаемых как радон, так и продуктами его распада. Следует заметить, что трековые методы требуют больших времен экспозиций (от нескольких дней до нескольких недель), альфа-спектрометрия – требует полупроводниковых детекторов большой площади.

Также в литературе известны методики оценки радиоактивности аэрозолей воздуха по измерению гамма и бета-излучения продуктов распада [6-8]. В этих работах регистрация продуктов распада радона осуществляется, как правило, с применением как временного, так и амплитудного анализа. Однако рассмотренные методики преследуют, в основном, учебные цели, и не обладают, на наш взгляд, достаточной надёжностью анализа именно радона.

Следует заметить, что повышение надёжности и чувствительности методик определения радона возможно за счет применения более эффективных пробоотборников, содержащих многослойные фильтры для регистрации бета-аэрозолей – продуктов распада радона. Также повышению надёжности способствует применение временного анализа с последующей многокомпонентной обработкой.

В настоящей работе рассматривается радиометр для регистрации радона-222 и бета-активных аэрозолей – продуктов распада радона-222. В качестве детектора бета-частиц применялся счетчик Гейгера-Мюллера СТС-5. Особенностью радиометра является воздухозаборник аэрозолей, совмещенный конструктивно с электростатическим ионизационным узлом. Продукты распада, будучи положительно заряженными, могут быть подвергнуты электростатическому осаждению. Положительный заряд иона дочернего продукта обусловлен ионизацией оболочки вылетающей альфа-частицей, также возможна ионизация за счет кинетической энергии ядра отдачи. Кроме того, также возможна ионизация радона-222 в коронном разряде электростатического ионизирующего накопителя. Известно, что радон, будучи нейтральным газом, обладает заметной сорбцией только на поверхности активированного угля [9], поэтому использование электростатического накопителя будет способствовать накоплению ионов радона-222 на фильтре.

Пробоподготовка осуществляется воздухозаборником, совмещенным с электростатическим накопителем, расположенным вдоль продольной оси воздухозаборника. Система воздушной продувки производительностью $30 \text{ дм}^3/\text{мин}$ имеет автономное питание. Коллектор ионов радона-222 и "активного налёта" площадью $\sim 500 \text{ см}^2$ размещается на внутренней стенке трубки диаметром 70 мм и длиной 300 мм. По оси трубки закреплена металлическая струна, на которую подается высокий положительный потенциал $U = 2 \text{ кВ}$, который отталкивает ионы на внутреннюю стенку коллектора. На струне закреплена проволочная игольчатая "шуба" для эффективной ионизации воздушного потока.

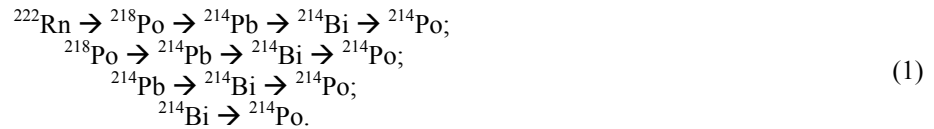
Также отличительной особенностью данного радиометра является использование временного анализатора для измерения бета-активности продуктов, находящихся в помещении в равновесии до начала накопления и попавших на фильтр из воздуха (это Po-218, Pb-214, Bi-214), а также продуктов распада радона-222, попавшего на фильтр из воздуха и генерирующих те же продукты (Po-218, Pb-214, Bi-214) в течение времени измерения ($\sim 5 \text{ ч}$).

Многокомпонентная подгонка экспериментального распадного спектра экспоненциальными функциями позволяет проводить идентификацию зарегистрированных составных продуктов по периоду полураспада и, в конечном счете, идентификацию радона-222. Временной анализатор выполнен на микроконтроллере AVR MSP430, усилитель-формирователь с цепью гашения вторичных (паразитных) сигналов, регулируемый источник высокого напряжения (260-600 В). Также имеется модуль памяти, жидкокристаллический дисплей, USB-порт вывода данных, контроллер батареи. Программное обеспечение создано в среде Energia IDE и включает в себя библиотеки контроля вывода информации на дисплей, модуль счета импульсов, контроль клавиатуры, счетный код, USB-библиотеку. Общая масса прибора с аккумуляторной батареей – около 1 кг.

Цель работы - показать возможность идентификации радона Rn-222 при использовании созданного бета-радиометра на основе многоканального временного анализатора, комбинированного накопителя аэрозолей и методики обработки распадных кривых альфа- и бета-активных аэрозолей – продуктов распада радона-222.

МЕТОДИКА ОБРАБОТКИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ

В работе предполагается, что активность фильтра определяется, в основном, накопленными воздухозаборником продуктами распада наиболее распространенного изотопа радона Rn-222 – ^{218}Po ($T_{1/2} = 3,17$ мин), ^{214}Pb ($T_{1/2} = 26$ мин) и ^{214}Bi ($T_{1/2} = 19,8$ мин), которые находятся в равновесном состоянии в воздухе. Также учитывались продукты распада радона-222, который также накапливается в воздухозаборнике в течение времени накопления пробы и распадаясь, увеличивает конечную активность:



Изотопы, находящиеся в цепочке распада правее ^{214}Po , в расчет не принимались в связи с тем, что ^{214}Po – альфа-излучатель, а продукт его распада ^{210}Pb имеет значительный период полураспада – $T_{1/2} = 22,3$ г.

Распад изотопов, накопленных на фильтре, можно описать следующей системой уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1 \\ \frac{dN_2}{dt} &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ \frac{dN_3}{dt} &= \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3, \\ \frac{dN_4}{dt} &= \lambda_3 N_3 - \lambda_4 N_4 \end{aligned} \quad (2)$$

где N_1, N_2, N_3, N_4 – число радиоактивных ядер $^{222}\text{Rn}, ^{218}\text{Po}, ^{214}\text{Pb}, ^{214}\text{Bi}$ соответственно.

Решение системы уравнений (2) дает следующие выражения:

$$N_1(t) = N_1(0)e^{-\lambda_1 t}, \quad (3)$$

где $N_1(0)$ – находившийся в аэрозоле и собранный на фильтре изотоп ^{222}Rn ;

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1 N_1(0)}{(\lambda_2 - \lambda_1)} [e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}] + N_2(0)e^{-\lambda_2 t}, \quad (4)$$

где $N_2(0)$ – находившийся в аэрозоле и собранный на фильтре изотоп ^{218}Po , $N_2(t)$ – полное количество ядер изотопа ^{218}Po с учетом подпитки при распаде ^{222}Rn , попавшего на фильтр;

$$N_3(t) = \frac{\lambda_2 \lambda_1 N_1(0)}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \left[\frac{e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_3 - \lambda_1)} - \frac{e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_3 - \lambda_2)} \right] + \frac{\lambda_2 N_2(0)}{(\lambda_3 - \lambda_2)} (e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_3 t}) + N_3(0)e^{-\lambda_3 t}, \quad (5)$$

где $N_3(0)$ – находившийся в аэрозоле и собранный на фильтре изотоп ^{214}Pb , $N_3(t)$ – полное количество ядер изотопа ^{214}Pb с учетом подпитки при распаде ^{222}Rn и ^{218}Po , попавших на фильтр;

$$\begin{aligned} N_4(t) = & \frac{\lambda_2 \lambda_1 \lambda_3 N_1(0)}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \left[\frac{1}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \left(\frac{e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_1)} - \frac{e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_2)} \right) - \frac{1}{(\lambda_2 - \lambda_3)} \left(\frac{e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_2)} - \frac{e^{-\lambda_3 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_3)} \right) \right] + \\ & + \frac{\lambda_2 \lambda_3 N_2(0)}{(\lambda_2 - \lambda_3)} \left[\frac{e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_2)} - \frac{e^{-\lambda_3 t} - e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_4 - \lambda_3)} \right] + \frac{\lambda_2 N_3(0)}{(\lambda_4 - \lambda_3)} (e^{-\lambda_3 t} - e^{-\lambda_4 t}) + N_4(0)e^{-\lambda_4 t}, \end{aligned} \quad (6)$$

где $N_4(0)$ – накопленный в аэрозоле и собранный на фильтре изотоп ^{214}Bi , $N_4(t)$ – полное количество ядер изотопа ^{214}Bi с учетом подпитки при распаде ядер $^{222}\text{Rn}, ^{218}\text{Po}$ и ^{214}Pb , попавших на фильтр.

На рис. 1 приведены результаты измерения и анализа активной пробы, накопленной на фильтре за интервал времени 20 мин. Активность источника A связана с количеством радиоактивных ядер N , временем жизни $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$ следующим образом: $A = -dN/dt = \lambda N$. Определив эффективность установки k , которая включает в себя эффективность детектирования, квантовый выход частиц на распад, геометрию эксперимента (телесный угол), вероятность поглощения и рассеяния в толще образца, мертвое время установки (просчеты) и вычислив параметры распадной кривой N_{10}, N_{20}, N_{30} и N_{40} , можно определить активности ядер $^{222}\text{Rn}, ^{218}\text{Po}, ^{214}\text{Pb}, ^{214}\text{Bi}$ в пробе в начальный момент времени, т.е. в момент начала забора пробы. Зная производительность воздухозаборника, можно оценить активность аэрозолей в помещении: $A_{0i} = kN_{0i} \ln 2 / T_{1/2}$.

Анализ компонент и определение начальных количеств ядер N_{0i} выполнялся подгонкой модельной кривой, являющейся суммой расчетных количеств ядер на фильтре ($N_1(t), ^{222}\text{Rn}$) + ($N_2(t), ^{218}\text{Po}$) + ($N_3(t), ^{214}\text{Pb}$) + ($N_4(t), ^{214}\text{Bi}$), к экспериментальным данным. В качестве критерия качества подгонки использовалось выражение:

$$\chi^2/n = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left(\frac{N_{i,exp} - N_{i,th}}{\delta(N_{i,exp})} \right)^2, \quad (7)$$

где n – число экспериментальных точек; N_{exp} – зарегистрированные импульсы; $\delta(N_{exp})$ – абсолютная погрешность отдельного измерения, $\delta_i = \sqrt{N_{i,exp}}$.

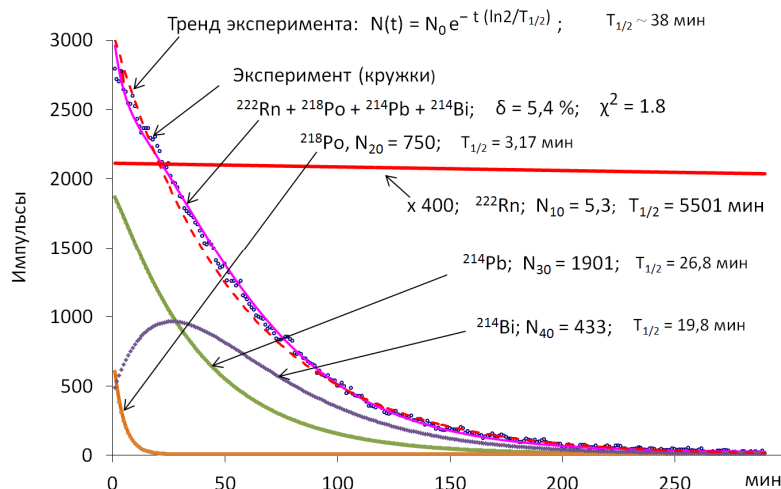


Рис. 1. Результаты измерения фильтра радиометром и обработка.

По вертикальной оси отложено число зарегистрированных детектором событий, ось абсцисс – время обработки радиометром аэрозольной пробы. N_{i0} – расчетные начальные количества событий. $T_{1/2} \sim 38$ мин – эффективный период полураспада суммарной активности фильтра.

В процессе подгонки варьировались коэффициенты при экспоненте N_1, N_2, N_3 и N_4 , т.е. начальные количества радиоактивных ядер на фильтре. При этом постоянные распада $\lambda_1 \div \lambda_4$ изотопов $^{222}\text{Rn}, ^{218}\text{Po}, ^{214}\text{Pb}$ и ^{214}Bi оставались фиксированными. В результате подгонки были получены следующие значения начальных количеств радиоактивных ядер компонент (амплитуды) на фильтре: $N_{10}=N_1(0)$ (^{222}Rn) = 5,3; $N_{20} = N_2(0)$ (^{218}Po) = 750; $N_{30} = N_3(0)$ (^{214}Pb) = 1901; $N_{40} = N_4(0)$ (^{214}Bi) = 433. Отношение начальных количеств ядер $^{214}\text{Pb} / ^{214}\text{Bi}$ для исследуемого помещения составило 4,4:1. Относительная погрешность подгонки, оцененная на основе среднеквадратичной погрешности по спектру (СКО) выражением

$$\delta_x = \frac{1}{\sqrt{\sum_{i=1}^n N_{i,exp}}} \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (N_{i,exp} - N_{i,th})^2}, \quad (8)$$

составила 5,4%, нормированный $\chi^2/n = 1,8$.

Анализ результатов измерений и кривых распада указывает на присутствие в фильтре (а значит, в аэрозолях) бета-активных изотопов радона Pb-214 : $N_{30} = N_3(0) = 1901$; ($T_{1/2} = 26,8$ мин) и Bi-214 : $N_{40} = N_4(0) = 433$ ($T_{1/2} = 19,8$ мин). Кроме того, расчеты подтверждают присутствие на фильтре аэрозолей альфа-излучателей Rn-222 ($T_{1/2} = 3,83$ д) и Po-218 ($T_{1/2} = 3,17$ мин), содержащихся в аэрозолях помещения. Учет этих изотопов, которые испытывают распад уже после окончания забора пробы, т.е. в течение времени измерений, приводит к заметному улучшению согласия модельной и экспериментальной кривой. Исключение из анализа изотопа ^{222}Rn приводит к ухудшению качества подгонки, при этом значение СКО возрастает до 6,7%, а $\chi^2/n = 6,5$, что указывает на заметную чувствительность радиометра к присутствию аэрозолей альфа-излучателя Rn-222 на фильтре.

ВЫВОДЫ

Результаты представленной работы указывают на возможность измерения радиометром рассмотренной конструкции загрязненности закрытых помещений Rn-222 по бета-активным аэрозолям, образующихся в процессе его распада. Совместное измерение и анализ распадных кривых бета-аэрозолей ($\text{Bi-214}, \text{Pb-214}$) и альфа-аэрозолей ($\text{Rn-222}, \text{Po-218}$) повышает надежность идентификации радона Rn-222 в помещении.

Применение в составе радиометра комбинированного накопителя аэрозолей, многоканального временного анализатора, представленной методики разложения накопленного временного спектра на составные компоненты позволило за время накопления аэрозольной пробы ~ 20 мин и интервал измерений $\sim 5-6$ часов уверенно выделить основные компоненты кривой распада альфа- и бета-аэрозолей Rn-222 , получить статистическую погрешность δ суммарного количества импульсов детектора от бета-активных аэрозолей менее 0,3% :

$$\delta = 1 / \sqrt{N_{\text{exp}} \cdot n \cdot N_{\text{exp}}} = (\sum N_{i, \text{exp}}) / n.$$

В заключение выражаем глубокую благодарность профессору ХНУ имени В.Н. Каразина Егоренкову В. Д. за проявленный интерес к данной работе и полезные обсуждения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Grigoriev I., Meilikhov E., Radzig A. Handbook of Physical Quantities, 1996. – 1568 P.
2. Malahovskij V.N. Radon i toron v pomeshhenijah. Ocenka opasnosti i radiacionnaja zashhita personala i naselenija. - Sankt-Peterburg, 1999. (in Russian)
3. Skolotnev B.N. Radon v kvartire - problema dlja zdorov'ja, <http://ipulsar.net/newsnew-239.html>. (in Russian)
4. Rakov Je.G. Radioaktivnost' u nas doma: problema radona // Himija.– 1999.– No 16. (in Russian)
5. Djurrani S., Ball R. Tverdotel'nye jadernye detektory. – Moskva: Energoatomizdat, 1990. – 264s. (in Russian)
6. Jovanovic P. Radon exhalation rate measurements on and around the premises of a former coal mine. Radon in the Living // Environment, 19-23 April 1999, Athens, Greece. P.429-432.
7. Jakovleva V.S., Vukolov A.V. Sposob izmerenija plotnosti potoka radona s poverhnosti grunta po beta- i gamma-izlucheniju (RU 2428715). (in Russian)
8. Austen D., Brouwer W. Radioactive balloons: experiments on radon concentration in schools or homes // Phys. Educ.– 1997.– Vol. 32.– P.97. doi:10.1088/0031-9120/32/2/0161997.
9. Vdovenko V.M. Sovremennaja radiohimija. – Moskva: Atomizdat, 1969. – 544 s. (in Russian)
10. Barsukov O.A. Osnovy fiziki atomnogo jadra. Jadernye tehnologii. - M.: Fizmatlit, 2011. - 560 s. (in Russian)
11. Zashhita ot radona-222 v zhilyh zdaniyah i na rabochih mestah: Publikacija 65 MKRZ / Per. s angl. - M.: Energoatomizdat, 1995. – 78s. (in Russian)
12. Ruzer L.S. Radioaktivnye aerizoli. - M.: Energoatomizdat, 2001. - 232 s. (in Russian)
13. Serdjukova A.S., Kapitanov Ju.T. Izotopy radona i korotkozshivushhie produkty ih raspada v prirode. - 2-e izd., dop. i pererab. - M.: Atomizdat, 1975. - 295 s. (in Russian)
14. Sidel'nikova O.P., Stefanenko I.V., Sokolov P.Je. Radiacionnaja bezopasnost' v zdaniyah: spravochnik. - M.: Energoatomizdat, 2006. - 328 s. (in Russian)