



**INSTYTUT FIZYKI JĄDROWEJ
IM. HENRYKA NIEWODNICZAŃSKIEGO
POLSKIEJ AKADEMII NAUK**

Karolina Danyłec

**Wyznaczanie współczynnika emanacji toronu i badanie
wpływu różnych czynników na jego wartość**

Praca doktorska

Promotor: dr hab. Krzysztof Kozak

Promotor pomocniczy: dr Jadwiga Mazur

Kraków, 2020

Pragnę serdecznie podziękować wszystkim, którzy przyczynili się do powstania niniejszej pracy. W szczególności składam najszczerze podziękowania promotorom: Krzysztofowi Kozakowi i Jadwidze Mazur, za opiekę naukową, poświęcony mi czas i życzliwość. Praca ta nie powstałaby również bez wsparcia moich rodziców oraz dziadka, największego kibica. Dziękuję również przyjaciołom, a w szczególności Karolinie za nieocenione wsparcie mentalne w całym przedsięwzięciu. W tym miejscu nie mogę również pominąć towarzyszy z pokoju 3201: Mariusza, Dominika i Szymona, bez ich pomocy i podpowiedzi, nierzadko okraszonych dobrym humorem, pisanie tej pracy byłoby zdecydowanie nudniejsze.

Streszczenie

Radon (^{222}Rn) pochodzący z szeregu rozpadu uranu (^{238}U) i toron (^{220}Rn) pochodzący z szeregu rozpadu toru (^{232}Th) są naturalnie występującymi w środowisku izotopami radonu. Oba te gazy zaliczane są do czynników kancerogennych, dlatego istotne jest badanie procesów uwalniania się tych izotopów z gruntu do atmosfery. Pierwszym elementem tego mechanizmu jest proces emanacji, czyli uwalnianie się atomów toronu / radonu z ziaren gleby czy skał do przestrzeni międzyziarnowej. Zjawisko emanacji opisywane jest poprzez współczynnik emanacji, czyli stosunek ilości atomów radonu / toronu, które wydostały się z ziarna, do wszystkich atomów radonu / toronu powstałych w ziarnie.

Praca dotyczy badania zjawiska emanacji toronu. Przedstawiona została technika pomiarowa pozwalająca określić współczynnik emanacji toronu z różnych materiałów, a także wyniki badania zależności tego współczynnika od różnych parametrów próbki. Istnieje wiele technik pomiarowych pozwalających określić współczynnik emanacji radonu (^{222}Rn), lecz tylko kilka umożliwiających określenie współczynnika emanacji toronu (^{220}Rn).

Celem pracy było określenie współczynnika emanacji toronu (^{220}Rn) oraz zbadanie jego zależności od wybranych parametrów badanych próbek z zastosowaniem nowej techniki pomiarowej tzw. „powder sandwich”. Metoda ta została zaproponowana przez S. D. Kanse i przystosowana w ramach pracy doktorskiej do aparatury pomiarowej będącej na wyposażeniu Laboratorium Ekspertyz Radiometrycznych Instytutu Fizyki Jądrowej PAN w Krakowie (LER IFJ PAN).

W zastosowanej technice pomiarowej badane próbki miały bardzo małą masę i w związku z tym małą grubość. Zastosowana technika pomiarowa z wymuszonym przepływem powietrza przez ciekłą próbkę pozwoliła na zarejestrowanie w mierniku większości uwolnionych w procesie emanacji do przestrzeni międzyziarnowej atomów toronu. Detektor rejestruje cząstki alfa emitowane w trakcie rozpadu toronu w komorze miernika i na tej podstawie można określić stężenie toronu.

Dla sprawdzenia uniwersalności zastosowanej techniki pomiarowej i porównania wyników wykorzystano trzy różne mierniki stężenia toronu: AlphaGUARD DF2000 (Bertin Technologies SAS, Francja), EQF3220 (SARAD GmbH, Niemcy) i RAD7 (DURRIDGE Company, Inc., USA). Urządzenia te różniły się rodzajem detektora, objętością czynną miernika, wartością szybkości przepływu, stosowanym czasem pomiaru, a przede wszystkim

metodą wyznaczania stężenia toronu. Pozwoliło to na udoskonalenie techniki „powder sandwich”.

W ramach pracy został określony współczynnik emanacji toronu dla różnych materiałów. Zbadano też zależność współczynnika emanacji toronu od wilgotności próbki oraz wielkości ziaren.

Summary

Radon (^{222}Rn) from the uranium decay series (^{238}U), and thoron (^{220}Rn) from the thorium decay series (^{232}Th) are naturally occurring radon isotopes in the environment. Both of these gases are classified as carcinogens, therefore it is important to study the processes of release of these isotopes from the ground into the atmosphere. The first element of this mechanism is the emanation process, i.e. the release of thoron / radon atoms from soil grains or rocks into the intergranular space. The emanation phenomenon is described by the emanation coefficient, i.e. the ratio of the number of radon / thoron atoms that have escaped from the grain to all the radon / thoron atoms formed in the grain.

The PhD thesis concerns the study of thoron emanation. A measuring technique allowing to determine the thoron emanation coefficient from various materials, as well as the results of testing the dependence of this coefficient on various sample parameters was presented. There are many measurement techniques to determine the radon (^{222}Rn), emanation coefficient but only a few to determine the thoron (^{220}Rn) emanation coefficient.

The purpose of the PhD thesis was to determine the thoron (^{220}Rn) emanation coefficient and to examine its dependence on selected parameters of the tested samples using a new measurement technique, the so-called "powder sandwich". This method was proposed by S. D. Kanse and adapted as part of the doctoral dissertation to the measuring equipment provided by Laboratory of Radiometric Expertise Institute of Nuclear Physics PAN (LER IFJ PAN).

In the measuring technique used, the tested samples had a very small mass and therefore a small thickness. The applied measuring technique with forced air flow through a thin sample allowed to register in gauge, most of the thoron atoms released in the emanation process into intergranular space. The detector registers alpha particles emitted during the decay of the thoron in the gauge chamber and on this basis the thoron concentration can be determined.

To check the universality of the measurement technique used and to compare the results three different thoron concentration gauges were used: AlphaGUARD DF2000 (Bertin Technologies SAS, France), EQF3220 (SARAD GmbH, Germany) and RAD7 (DURRIDGE Company, Inc., USA). These devices differed in the type of detector, gauge active volume, flow rate value, measurement time used, and above all the method of determining thoron concentration. This allowed improving the powder sandwich technique.

As part of the work, thoron emanation coefficient for various materials was determined. The dependence of the thoron emanation coefficient on sample moisture and grain size was also investigated

Spis treści

Spis rysunków	9
Spis Tabel.....	13
Lista ważniejszych symboli stosowanych w pracy	14
Wstęp.....	15
1. Izotopy radonu w środowisku	17
1.1. Zarys historyczny	17
1.2 Izotopy radonu - informacje ogólne	18
1.3 Aspekt zdrowotny	21
1.4 Izotopy radonu w glebie.....	22
1.4.1 Transport	23
1.4.2 Ekshalacja.....	24
2. Emanacja – mechanizm uwalniania się izotopów radonu (^{222}Rn , ^{220}Rn) do przestrzeni międzyziarnowej	27
2.1 Zjawisko emanacji.....	27
2.2 Model matematyczny procesu emanacji	28
2.3 Czynniki zewnętrzne wpływające na proces emanacji izotopów radonu (^{222}Rn , ^{220}Rn).....	30
2.3.1 Rozkład radu, wielkość i kształt ziaren	31
2.3.2 Wilgotność materiału	32
3. Metody określania współczynnika emanacji.....	34
3.1 Układ pomiarowy otwarty.....	34
3.2 Układ pomiarowy zamknięty	35
4. Metoda pomiarowa wyznaczania współczynnika emanacji toronu i stosowana aparatura pomiarowa.....	41
4.1 Opis badanych próbek i określenie stężenia aktywności toru (^{232}Th) w próbce.....	41
4.2 Opis metody „powder sandwich”	43
4.3 Wykorzystany w pracy układ pomiarowy.....	45
4.4 Stosowane mierniki stężenia toronu (^{220}Rn)	47
4.4.1 Miernik AlphaGUARD DF 2000	47
4.4.2 Miernik EQF 3220 (Sarad, Niemcy)	50
4.4.3 Miernik RAD7.....	52
4.5 Wyznaczenie współczynników korekcji stężenia toronu (^{220}Rn)	54
4.6 Niepewności pomiarowe stężenia toronu.....	55
5. Analiza wyników.....	57

5.1 Wpływ elementów układu pomiarowego na wyznaczanie wartości współczynnika emanacji	57
5.1.1 Filtr utrzymujący próbkę i filtr zabezpieczający	57
5.1.2 Długość rurek połączeniowych	60
5.1.3 Orientacja próbki w układzie pomiarowym	63
5.1.4 Czas i cykle pomiarowe miernika EQF 3220.....	65
5.2 Wartości współczynnika emanacji toronu dla próbek w układach z różnymi miernikami stężenia toronu.	68
5.3 Badanie wpływu rozmiaru ziaren na wartość współczynnika emanacji toronu.....	81
5.4 Badanie wpływu wilgotności na współczynnik emanacji toronu	89
6. Podsumowanie i wnioski.....	95
Bibliografia:	99

Spis rysunków

Rys. 1.1 Łańcuch rozpadu ^{232}Th	18
Rys. 1.2 Proces wydostawania się $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ z gleby lub materiałów budowlanych do atmosfery.....	23
Rys. 1.3 Zależność współczynnika dyfuzji ^{222}Rn w glebie od wilgotności.....	24
Rys. 1.4 Zależność szybkości ekshalacji $^{222}\text{Rn} / ^{220}\text{Rn}$ z gleby od wilgotności.....	26
Rys. 2.1 Schemat zjawiska emanacji - (strzałki następujące po końcowych punktach odrzutu reprezentują proces dyfuzji molekularnej).....	27
Rys. 2.2 Nanopor płaski o równomiernym rozkładzie radu na powierzchni ziarna.....	29
Rys. 2.3 Współczynnik emanacji ^{222}Rn w modelu pojedynczego ziarna. Przyjmuje się, że rad jest rozłożony (a) równomiernie w kulistym ziarnie i (b) na powierzchni kulistego ziarna. Model ten nie uwzględnia osadzania radonu w drugim ziarnie.....	31
Rys. 2.4 Wpływ wilgotności na współczynnik emanacji ^{222}Rn dla odpadów z kopalni uranowej.....	33
Rys. 3.1 Schemat układu pomiarowego.....	34
Rys. 3.2 Schemat aparatury stosowanej do określenia współczynnika emanacji toronu.....	36
Rys. 3.3 Schemat systemu pomiarowego do określenia współczynnika emanacji toronu i radonu.....	37
Rys. 3.4 Schemat układu pomiarowego.....	38
Rys. 3.5 Detektor SSNTD o promieniu 2cm umieszczony na pojemniku zawierającym próbkę materiału o wysokości 1cm.....	39
Rys. 3.6 Detektor SSNTD o promieniu 2cm umieszczony w odległości 11cm od próbki materiału o wysokości 1cm.....	40
Rys. 4.1 Układ pomiarowy techniki „powder sandwich”.....	43
Rys. 4.2 Schemat układu pomiarowego z wykorzystaniem miernika AlphaGUARD DF2000.....	45
Rys. 4.3 Uchwyty na próbki (duży i mały).....	46
Rys. 4.4 Widok układu pomiarowego z wykorzystaniem miernika AlphaGUARD DF 2000.....	48
Rys. 4.5 Sekwencje trybu pomiarowego „radon/toron”.....	48
Rys. 4.6 Przykładowy ekran programu DataView.....	49
Rys. 4.7 Dane eksportowane z miernika AlphaGUARD DF 2000.....	50
Rys. 4.8 Widok układu pomiarowego z wykorzystaniem miernika EQF 3220.....	51
Rys. 4.9 Okno programu Radon Vision 4 v.10/2009.....	51

Rys. 4.10 Dane eksportowane z miernika EQF 3220.	52
Rys. 4.11 Widok układu pomiarowego z wykorzystaniem miernika RAD7.	53
Rys. 4.12 Przykładowy wydruk z pomiarów miernikiem RAD7.	53
Rys. 4.13 Dane eksportowane z miernika RAD7.....	54
Rys. 5.1 Średnie stężenie toronu w funkcji masy piasku monacytowego PC1. Pomiary wykonane miernikiem AlphaGUARD DF2000.....	59
Rys. 5.2 Siatka żarowa do lampy gazowej.....	60
Rys. 5.3 Średnie stężenie toronu w funkcji masy piasku monacytowego (PC1) dla różnych długości rurek (miernik EQF 3220).	61
Rys. 5.4 Średnie stężenie toronu w funkcji masy azotanu toru (AP1) dla różnych długości rurek (miernik EQF 3220).....	61
Rys. 5.5 Średnie stężenie toronu w funkcji masy źródła toru (KP1) dla różnych długości rurek (miernik EQF 3220).....	62
Rys. 5.6 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału GI1 dla uchwytu w pozycji pionowej i poziomej zmierzone za pomocą miernika EQF 3220.	63
Rys. 5.7 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału GJ1 dla uchwytu w pozycji pionowej i poziomej zmierzone za pomocą miernika EQF 3220.	64
Rys. 5.8 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PC1 dla uchwytu w pozycji pionowej i poziomej zmierzone za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000.....	64
Rys. 5.9 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PJ2 w zależności od czasu pomiaru zmierzone za pomocą miernika EQF 3220.....	66
Rys. 5.10 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PB1 w zależności od czasu pomiaru zmierzone za pomocą miernika EQF 3220.....	66
Rys. 5.11 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PJ1 w zależności od czasu pomiaru zmierzone za pomocą miernika EQF 3220.....	67
Rys. 5.12 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PC1 w zależności od czasu pomiaru zmierzone za pomocą miernika EQF 3220.....	67
Rys. 5.13 Średnie stężenie toronu w funkcji masy piasku monacytowego (PC1) zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000, EQF 3220 i RAD7.....	69
Rys. 5.14 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PJ2 zmierzone za pomocą miernika AlphaGUARD DF2000.....	71
Rys. 5.15 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PJ2 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220 (większy uchwyt na próbkę).	71

Rys. 5.16 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału GJ1 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.....	72
Rys. 5.17 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PJ1 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.....	72
Rys. 5.18 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału GI1 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.....	73
Rys. 5.19 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PB1 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.....	74
Rys. 5.20 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału TW1 zmierzone za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000, EQF 3220 i RAD7.	75
Rys. 5.21 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału TW2 zmierzone za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000, EQF 3220 i RAD7.	75
Rys. 5.22 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału AP1 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.....	76
Rys. 5.23 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału KP1 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.....	77
Rys. 5.24 Średnie stężenie toronu w funkcji masy dla materiału PM3 zmierzone za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000 i EQF 3220.....	78
Rys. 5.25 Zależność współczynnika emanacji toronu od wartości stężenia aktywności ²²⁴ Ra w próbce.....	80
Rys. 5.26 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PM6 przed i po rozdrobieniu.	81
Rys. 5.27 Zależność współczynnika emanacji toronu od wartości stężenia aktywności ²²⁴ Ra dla próbek PM1- PM6 po rozdrobieniu.....	83
Rys. 5.28 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału dla frakcji ziaren o średnicy poniżej 0,18mm.....	84
Rys. 5.29 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału dla frakcji ziaren o średnicy od 0,18mm do 0,355mm.	84
Rys. 5.30 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału dla frakcji ziaren o średnicy od 0,355mm do 0,5mm.	85
Rys. 5.31 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału dla frakcji ziaren o średnicy powyżej 0,5mm.	85
Rys. 5.32 Zależność współczynnika emanacji toronu <i>f</i> od rozmiaru ziaren materiału PC1. ...	86
Rys. 5.33 Średnie stężenie toronu dla wszystkich frakcji ziaren (AlphaGUARD DF2000). ..	87

Rys. 5.34 Średnie stężenie toronu dla wszystkich frakcji ziaren (EQF 3220).....	88
Rys. 5.35 Średnie stężenie toronu dla wszystkich frakcji ziaren (RAD7).	88
Rys. 5.36 Zależność współczynnika emanacji toronu od wartości stężenia aktywności ^{224}Ra dla różnych frakcji ziaren materiału PC1.....	89
Rys. 5.37 Schemat układu pomiarowego z dodatkowym osuszaczem.	90
Rys. 5.38 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PC1 dla wysuszonej próbki z osuszaczem i bez niego (AlphaGUARD DF 2000).	91
Rys. 5.39 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PC1 dla wysuszonej razem z filtrami próbki i dla niewysuszonej próbki (AlphaGUARD DF 2000 i EQF 3220).....	92

Spis Tabel

Tabela 1.1 Właściwości toronu ^{220}Rn	19
Tabela 1.2 Właściwości naturalnych izotopów radonu.....	21
Tabela 2.1 Zasięg odrzutu alfa ^{222}Rn i ^{220}Rn w różnych ośrodkach.	32
Tabela 4. 1 Opis badanych materiałów oraz stężenie aktywności ^{224}Ra Q w próbce	41
Tabela 4.2 Przybliżone wartości współczynników korekcji dla mierników wykorzystanych w eksperymencie.....	55
Tabela 5.1 Parametry zastosowanych filtrów oraz współczynniki emanacji toronu f próbka PC1.....	57
Tabela 5.2 Średnie stężenie toronu z siatki żarowej zmierzone przy pomocy mierników Alphaguard DF 2000 oraz EQF 3220 z filtrem i bez filtra zabezpieczającego.....	60
Tabela 5.3 Objętość układu pomiarowego V oraz współczynnik emanacji toronu f dla materiałów PC1, KP1 i AP1 obliczony przy wykorzystaniu miernika EQF 3220 dla różnych długości rurek.....	62
Tabela 5.4 Współczynnik emanacji toronu f w zależności od położenia uchwytu dla materiałów GI1, GJ1 obliczony na podstawie wyników otrzymanych z miernika EQF 3220 oraz dla materiału PC1 obliczony na podstawie wyników otrzymanych z miernika AlphaGUARD DF 2000.....	65
Tabela 5.5 Współczynnik emanacji toronu f w zależności od czasu pomiaru dla materiałów PB1, PC1, PJ1 i PJ2 obliczony na podstawie wyników z miernika EQF 3220	68
Tabela 5.6 Współczynnik emanacji toronu f obliczony ze współczynnikiem korekcji w oraz bez niego dla materiału PC1 na podstawie pomiarów miernikami: AlphaGUARD DF2000, EQF 3220 i RAD7.....	70
Tabela 5.7 Współczynnik emanacji toronu f oraz stężenie aktywności ^{224}Ra Q dla badanych materiałów.....	78
Tabela 5.8 Współczynnik emanacji toronu f oraz stężenie aktywności ^{224}Ra Q dla materiałów PM1 - PM6 przed i po rozdrobnieniu.....	82
Tabela 5.9 Współczynnik emanacji toronu f oraz stężenie aktywności ^{224}Ra Q dla różnych frakcji materiału PC1.	86
Tabela 5.10 Współczynnik emanacji toronu f dla wysuszonej próbki przy zastosowaniu osuszacza i bez niego.	91
Tabela 5.11 Współczynnik emanacji toronu materiału PC1 dla wysuszonej i niewysuszonej próbki otrzymane za pomocą mierników AlphaGUARD DF 2000 i EQF 3220.....	93

Lista ważniejszych symboli stosowanych w pracy

C	średnie stężenie toronu w materiale [Bqm^{-3}]
C^*	średnie stężenie toronu uzyskane z zarejestrowanych przez detektor stężeń toronu [Bqm^{-3}]
D	czułość miernika [$\text{cpm kBq}^{-1}\text{m}^{-3}$]
f	współczynnik emanacji [-]
J_M	szybkość masowej emanacji toronu [$\text{Bqg}^{-1}\text{s}^{-1}$]
k	poziom rozszerzenia [-]
λ	stała rozpadu ^{220}Rn [s^{-1}]
M	masa materiału [g]
Q	stężenie aktywności ^{224}Ra , który jest w równowadze promieniotwórczej z ^{232}Th w próbce [Bqg^{-1}]
q	prędkość przepływu [m^3s^{-1}]
S	nachylenie prostej, dopasowanej metodą najmniejszych kwadratów do punktów pomiarowych średniego stężenia toronu w funkcji masy badanego materiału [$\text{Bqm}^{-3}\text{g}^{-1}$]
t	przedział czasowy pomiaru [s], [min], [h]
V	objętość układu pomiarowego [m^3]
w	współczynnik korekcji [-]

Wstęp

Toron (^{220}Rn) jest naturalnie występującym w środowisku izotopem pochodzącym z szeregu promieniotwórczego toru ^{232}Th . Zalicza się do czynników kancerogennych. Jednakże, ze względu na krótki okres półrozpadu (55,8 s) oraz niewielkie stężenie w środowisku, jego wpływ na zdrowie człowieka często jest zaniewany. Istnieją, jednak miejsca, gdzie występują duże stężenia toru w gruncie, a tym samym często także w materiałach budowlanych. W tych miejscach dawka pochłonięta od toronu jest dość znaczna i może przyczyniać się do zwiększonej zachorowalności na nowotwory dróg oddechowych. Istotne jest, więc badanie procesów uwalniania się tego gazu z gruntu do atmosfery. Pierwszym elementem tego mechanizmu jest proces emanacji. Szybkość emanacji toronu jest wyrażona poprzez współczynnik emanacji. Współczynnik emanacji radonu / toronu jest to stosunek ilości atomów radonu / toronu, które wydostały się z ziarna minerału, do wszystkich atomów radonu / toronu powstałych w ziarnie.

Ze względu na krótki okres półrozpadu toronu istnieje niewiele technik stosowanych do pomiaru stężenia toronu, który jest niezbędny w celu określenia współczynnika emanacji z badanych materiałów. Proces uwalniania się toronu do atmosfery (zjawisko ekshalacji) również nie jest dokładnie zbadany. W literaturze naukowej spotyka się prace opisujące proces emanacji oraz techniki pomiarowe głównie dla izotopu radonu (^{222}Rn). Bardzo niewiele prac dotyczy badania tego zjawiska dla izotopu toronu (^{220}Rn). Ze względu na podobieństwo w mechanizmach uwalniania się izotopów ^{222}Rn i ^{220}Rn do środowiska oraz na dość ograniczony zasób literatury dotyczącej zagadnień związanych z emanacją toronu, autorka przedstawiła także niektóre pozycje literaturowe dotyczące izotopu ^{222}Rn .

Celem pracy było określenie współczynnika emanacji toronu oraz zbadanie jego zależności od wybranych parametrów badanych próbek z zastosowaniem techniki pomiarowej „powder sandwich”. Metoda ta została zaproponowana przez S. D. Kanse i przystosowana w ramach pracy doktorskiej do aparatury pomiarowej będącej na wyposażeniu Laboratorium Ekspertyz Radiometrycznych Instytutu Fizyki Jądrowej PAN (LER IFJ PAN). Wykorzystując miernik stężenia toronu w powietrzu zbadano efektywność zastosowanej techniki pomiarowej w zależności od różnych czynników. Zbadano też zależność współczynnika emanacji toronu od wilgotności próbki oraz wielkości ziaren. W ramach pracy został także zbadany wpływ stosowania różnych rodzajów filtrów, między którymi umieszczana jest badana próbka oraz wpływ innych elementów układu pomiarowego na otrzymane wyniki.

W zastosowanej technice pomiarowej badane próbki miały bardzo małą masę i w związku z tym małą grubość. Zastosowana technika pomiarowa z wymuszonym przepływem powietrza przez ciekłą próbkę pozwoliła na zarejestrowanie w mierniku większości uwolnionych w procesie emanacji do przestrzeni międzyziarnowej atomów toronu. Detektor rejestruje cząstki alfa emitowane w trakcie rozpadu toronu w komorze miernika i na tej podstawie można określić stężenie toronu.

Dla sprawdzenia uniwersalności zastosowanej techniki pomiarowej i porównania wyników wykorzystano trzy różne mierniki stężenia toronu: AlphaGUARD DF2000 (Bertin Technologies SAS, Francja), EQF3220 (SARAD GmbH, Niemcy) i RAD7 (DURRIDGE Company, Inc., USA). Urządzenia te różniły się rodzajem detektora, objętością czynną miernika, wartością szybkości przepływu, stosowanym czasem pomiaru, a przede wszystkim metodą wyznaczania stężenia toronu.

Pierwsze dwa rozdziały pracy poświęcono na omówienie własności izotopów radonu (^{220}Rn , ^{222}Rn) oraz opis procesów, jakim podlegają w środowisku. W szczególności skupiono się na czynnikach, które wpływają na wartość współczynnika emanacji. W rozdziale 3 pracy przedstawiono wybrane metody stosowane do określenia współczynnika emanacji radonu i toronu. Zastosowana w tej pracy technika pomiarowa oraz metody obliczeniowe zostały omówione w rozdziale 4. Rozdział 5 zawiera analizę uzyskanych wyników pomiarów współczynnika emanacji toronu dla różnych materiałów. Omówiony został także wpływ elementów układu pomiarowego, jak również wpływ rozmiaru ziaren oraz wilgotności próbki na otrzymane wyniki. W rozdziale 6 przedstawiono podsumowanie i wnioski. Pracę uzupełnia spis symboli, rysunków, tabel i literatury.

1. Izotopy radonu w środowisku

1.1. Zarys historyczny

Radon (^{222}Rn) został odkryty w 1898r. przez Ernesta Rutherforda i Roberta B. Owensa wkrótce po odkryciu radu w 1898 r. przez Marię Skłodowską Curie i Piotra Curie. W 1900 r. Dorn po przeprowadzeniu kilku eksperymentów potwierdził, iż związki radu emitują radioaktywny gaz, który nazwał „emanacją radu”. Taka emanacja została również odnotowana dla związków toru przez Rutherforda i nazwana „emanacją toru”. W 1903 roku podobną emanację zaobserwowano w przypadku aktynu przez André-Louisa Debierne'a i nazwano ją "emanacją aktynu". Wkrótce zaproponowano kilka skróconych nazw dla tych gazów, ale dopiero w 1923r. Międzynarodowy Komitet ds. Pierwiastków Chemicznych oficjalnie przyjął nazwy „radon” (Rn), „toron” (Tn) i „aktynon” (An). Później, gdy izotopy te zostały dogłębniej zbadane, zamiast nazw zaczęto stosować liczby masowe dla danego izotopu. Pierwiastek Rn przybrał nazwę najbardziej stabilnego izotopu ^{222}Rn , podczas gdy Tn przemianowano na ^{220}Rn , a An przemianowano na ^{219}Rn , co spowodowało pewne zamieszanie w literaturze. Do dzisiaj słowo „radon” może odnosić się do pierwiastka lub jego izotopu ^{222}Rn , przy czym toron pozostaje w użyciu jako nazwa dla izotopu ^{220}Rn , aby uniknąć tej niejednoznaczności.

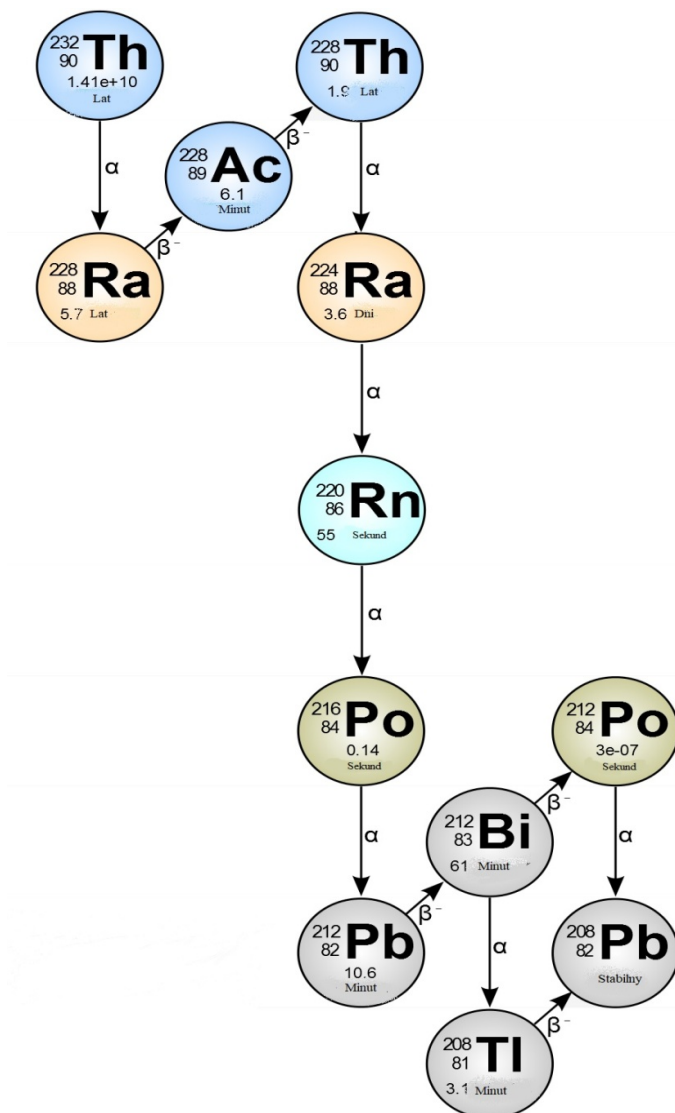
Obecność izotopów radonu w atmosferze została zauważona po raz pierwszy przez Elstera i Geitaela, a później przez Gisha. Niektóre obserwacje wskazywały również, że zawartość materii radioaktywnej w powietrzu nad lądem podlegała sezonowym zmianom i była spowodowana emisją tych gazów radioaktywnych (^{222}Rn , ^{220}Rn) z gleby [Sah13].

Radon (^{222}Rn) dopiero w roku 1980 został uznany za czynnik kancerogenny, ale niebezpieczeństwo związane z narażeniem na jego wysoką ekspozycję było znane już w 1530 roku, kiedy to Paracelsus opisał wyniszczającą chorobę górników, a Georg Agricola zalecił wentylację w kopalniach, aby uniknąć tzw. „choroby górskiej” (Bergsucht). W 1879 r. choroba ta została zidentyfikowana jako nowotwór płuc przez Hartunga i Hesse [Cot87]. Pierwsze poważne badania nad radonem (^{222}Rn) i jego wpływem na zdrowie pojawiły się w kontekście wydobywania uranu w regionie Joachimsthal w Czechach [Pro00]. Obecność radonu w powietrzu w pomieszczeniach została udokumentowana w 1950 roku [WHO09].

Począwszy od lat siedemdziesiątych XX wieku rozpoczęto badania mające na celu zidentyfikowanie źródeł radonu oraz toronu w pomieszczeniach, określenie wyznaczników koncentracji, skutków zdrowotnych oraz metod ich łagodzenia i zapobiegania.

1.2 Izotopy radonu - informacje ogólne

Obecnie znanych jest 37 izotopów radonu ($^{193}\text{Rn} - ^{229}\text{Rn}$), wszystkie są niestabilne i tylko cztery występują naturalnie w przyrodzie: ^{222}Rn , ^{220}Rn , ^{219}Rn , ^{218}Rn . Toron (^{220}Rn) pochodzi z szeregu torowego (^{232}Th), radon ^{222}Rn oraz ^{218}Rn tworzą się w szeregu uranowym (^{238}U), a aktynon powstaje w szeregu uranu ^{235}U [NUGI18]. Szereg promieniotwórczy toru (^{232}Th) przedstawia Rys. 1.1. Gazowy radon jest bezbarwny, nie ma zapachu ani smaku, jako gaz szlachetny jest bardzo słabo aktywny chemicznie. Wybrane fizyczne właściwości toronu (^{220}Rn) zostały przedstawione w w Tabeli 1.1.



Rys. 1.1 Łańcuch rozpadu ^{232}Th , [Źródło: <http://metadata.berkeley.edu>].

Tabela 1.1 Właściwości toronu ^{220}Rn [Ram10].

Temperatura wrzenia	- 61.8 °C
Temperatura topnienia	- 71 °C
Rozpuszczalność w wodzie w:	
0 °C	0.51
20 °C	0.25
50 °C	0.14
Rozpuszczalność w acetonie	8.0 w 0 °C
Współczynnik dyfuzji w powietrzu	0.1 cm ² s ⁻¹
Współczynnik dyfuzji w wodzie	10 ⁻⁵ cm ² s ⁻¹ w 18 °C

Obecność izotopów radonu w środowisku człowieka wynika ze źródeł naturalnych, a ich zwiększony poziom także z działania człowieka. Głównym źródłem tych gazów są skały, gleby oraz rudy znajdujące się w skorupie ziemskiej, ale także materiały budowlane takie jak cegły, płytki, cementy itp. [Naz88, UNS00]. Materiały te są często nazywane naturalnie występującymi materiałami radioaktywnymi (Naturally Occurring Radioactive Materials - NORM). Podobnie, niektóre z ważnych antropogenicznych źródeł tych radioaktywnych gazów stanowią produkty odpadowe wytwarzane w kopalniach uranu, wytwórniach cyrkonu oraz przez przemysł węglowy i fosfo-gipsowy. Źródła te są powszechnie znane jako pozostałości NORM lub często określane jako technologicznie wzbogacone naturalnie występujące materiały promieniotwórcze (Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials- TENORM).

Tor (^{232}Th) jest protoplastą toronu ^{220}Rn . Śladowa ilość ^{232}Th znajduje się prawie we wszystkich glebach i skałach, częściowo z powodu wpływu wód gruntowych. Choć ^{232}Th , nie jest aż tak dobrze rozpuszczalny w wodzie jak ^{238}U , istnieje pewne podobieństwo w ich geochemii, a gleby o wysokiej zawartości ^{238}U często zawierają również ^{232}Th . W skałach magmowych (powstałych w skutek zakrzepnięcia lub krystalizacji magmy) i twardych (granit, marmur, gnejs, bazalt) istnieje jeszcze silniejsza korelacja między ^{232}Th i ^{238}U , ponieważ tutaj odpowiednie procesy geochemiczne są jeszcze bardziej do siebie podobne. Tor jest szeroko rozpowszechniony w przyrodzie ze średnim stężeniem 10 ppm w skorupie ziemskiej w wielu fosforanach, krzemianach, węglanach i minerałach tlenkowych [Ram10].

Średnie stężenie toru ^{232}Th w glebie szacuje się na 25 Bqkg⁻¹, jednak w przypadku niektórych materiałów takich jak monacyt, toryt, cyrkon i alanit, stężenie ^{232}Th może być zdecydowanie większe. Skały składające się z granitu lub czarnego łupka mogą mieć wysoką

zawartość toru. Piaski monacytowe i cyrkonowe mają szczególnie wysokie stężenie toru, natomiast bazalty, wapienie i piaskowce mają zazwyczaj stężenie poniżej średniej [Ram10].

Naturalny tor występuje prawie w 100% w postaci izotopu toru ^{232}Th . Na ogół tor występuje w połączeniu z uranem i pierwiastkami ziem rzadkich (REE) w różnych typach skał jak na przykład: żyły torianitowe, uranotorytowe i jako monacyt w granitach, sjenitach. Monacyt obecny jest również w kwarcowo-żwirowych zlepkach piaskowców oraz w osadach rzecznych [Ram10].

Najbardziej znane miejsca o wysokich zawartościach toru ^{232}Th to piaski monacytowe wzdłuż południowego wybrzeża Brazylii, na Sri Lance (Cejlon) i na południowym krańcu Indii. W Stanach Zjednoczonych graniczny trias Conway z północnego Hampshire i obszar przybrzeżny na południowym wschodzie mają duże złoża ^{232}Th . Zawartość ^{232}Th w glebie wokół tych obszarów wysokiego tła promieniowania zawiera się od 0,5 do 1000 Bqkg^{-1} . Natomiast zawartość ^{232}Th w oceanach z dala od źródeł słodkiej wody jest dość niska, poniżej 10^{-4} Bqkg^{-1} [Ram10].

Tor nie ma bardzo szerokiego zastosowania. Oprócz głównego zastosowania w energetyce jądrowej, tor znajduje ograniczone zastosowanie w innych obszarach, na przykład jako ogniotrwały tlenek toru, katalizator (do syntezy metanu lub mieszanin nasyconych i nienasyconych węglowodorów z gazami CO i H₂), drążonych wolframowych prętów uzbrojonych i stopów na bazie magnezu [Ram10].

Znacząca różnica w okresach półrozpadu radonu ^{222}Rn (3,8 dni) i toronu ^{220}Rn (55,8 s) odgrywa ważną rolę w ich emanacji, transporcie i ekshalacji z gleby do atmosfery. Pochodne radonu ^{222}Rn i toronu ^{220}Rn to izotopy polonu, bizmutu, ołowiu i talu, które rozpadają się poprzez emisję promieniowania α lub β . Produkty rozpadu ^{222}Rn są podzielone na dwie grupy: „krótkożyciowe pochodne” z okresem półrozpadu poniżej 30 minut; oraz „długożyciowe” produkty rozpadu.

Nie występują długożyciowe produkty rozpadu toronu ^{220}Rn , ale jego krótkożyciowe produkty rozpadu w porównaniu do radonu ^{222}Rn mają dłuższy okres połowicznego zaniku. Podstawowe właściwości naturalnych izotopów radonu zostały przedstawione w Tabeli 1.2

Tabela 1.2 Właściwości naturalnych izotopów radonu [NUG118].

Izotop	Radon ^{222}Rn	Toron ^{220}Rn	Aktynon ^{219}Rn
Liczba atomowa	86	86	86
Gęstość	9,73 g/l	9,73 g/l	9,73 g/l
Masa atomowa	222,02 u	220,01 u	219,01 u
Okres półrozpadu	3,8235d	55,8 s	3,96 s
Energia wiązania	7,69 MeV/nukleon	7,72 MeV/nukleon	7,72 MeV/nukleon
Energia foton	0,388 keV	0,627 keV	58,442 keV
cząstki alfa	5,59 MeV	6,4 MeV	6,95 MeV
Produkt rozpadu	$^{218}_{84}\text{Po}$	$^{216}_{84}\text{Po}$	$^{215}_{84}\text{Po}$
Izotopy macierzyste	$^{226}_{88}\text{Ra}$	$^{224}_{88}\text{Ra}$	$^{223}_{88}\text{Ra}$
Typ rozpadu	α	α	α

Pod względem zdrowotnym największe znaczenie ma izotop ^{222}Rn , ze względu na najdłuższy okres półrozpadu. Toron również stanowi potencjalne zagrożenie zdrowotne, pomimo swojego znacznie krótszego okresu półrozpadu, szczególnie w miejscach bogatych w tor. Ze względu na bardzo krótki okres półrozpadu izotopów ^{219}Rn oraz ^{218}Rn (3,96 s i 35 ms) ich stężenie w środowisku jest znikome, a wpływ na zdrowie zaniedbywalny [Ram10].

1.3 Aspekt zdrowotny

W zależności od położenia geograficznego radon ^{222}Rn oraz toron ^{220}Rn mają od 30% do 60% wkładu w roczną pochłoniętą dawkę pochodzącą od promieniowania naturalnego. Zagrożenie zdrowotne związane z radonem i toronem nie pochodzi przede wszystkim od samych tych gazów, a od izotopów promieniotwórczych powstających w wyniku ich rozpadu. Krótkożyciowe pochodne rozpadu radonu i toronu łączą się z aerozolami w powietrzu i podczas oddychania dostają się do układu oddechowego gdzie mogą stać się przyczyną zmian nowotworowych [Den13]. Aerozole z pochodnymi ^{222}Rn i ^{220}Rn nie deponują się jednolicie w układzie oddechowym. Głębokość wnikania zależy od rozmiarów cząstki. Aerozole, które znajdują się we wdychanym powietrzu są najczęściej odkładane w nabłonku płucnym (mogą być usunięte w przeciągu kilku godzin) oraz w górnych drogach oddechowych. Jedynie najmniejsze cząstki trafiają do pęcherzyków płucnych. Mogą tam pozostać miesiące lub lata. Część cząsteczek aerozoli dostaje się do krwioobiegu, natomiast pozostałe deponowane są w ściankach pęcherzyków, następnie leukocyty je fagocytują i zostają przeniesione przez śródbłonek naczyń włosowatych do naczyń limfatycznych, którymi przemieszczane są do węzłów chłonnych. Czas przebywania aerozoli promieniotwórczych w płucach jest dość długi i dlatego to płuca są najbardziej narażone na oddziaływanie ^{222}Rn / ^{220}Rn , zwłaszcza przy ich wysokich stężeniach i długiej ekspozycji na

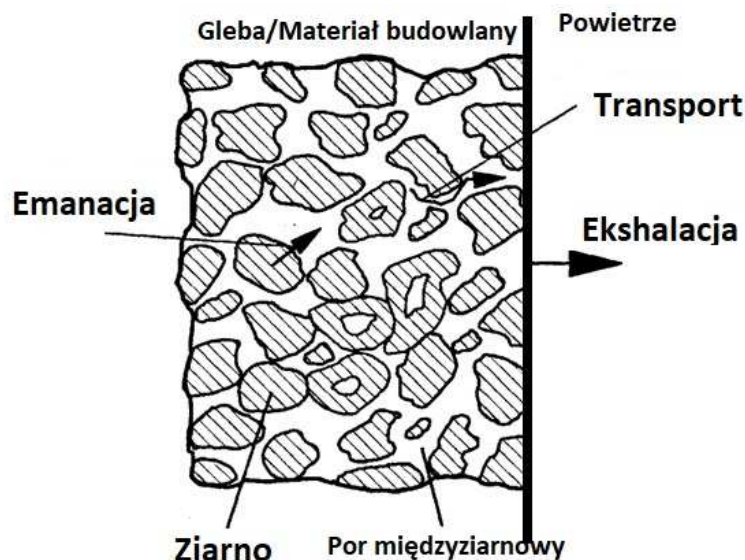
te czynniki [Dar05]. Ryzyko wystąpienia nowotworu płuc wzrasta wraz ze wzrostem stężenia radonu / toronu. Przeprowadzone badania wykazują, iż wzrost stężenia radonu (^{222}Rn) o 100 Bqm^{-3} zwiększa ryzyko zachorowania na nowotwory płuc o 10,6% [Dar05]. Dodatkowo podwyższone stężenie radonu lub toronu oraz palenie wyrobów tytoniowych daje efekt synergistyczny. Połączony efekt tych czynników przekracza sumę ich niezależnych skutków i dla palaczy ryzyko wystąpienia nowotworu płuc przy wysokim stężeniu radonu lub toronu jest znacznie wyższe niż dla osób niepalących [Bie95]. Światowa organizacja zdrowia WHO zaleca by średnie stężenie radonu (^{222}Rn) w budynku nie przekraczało 100 Bqm^{-3} [WHO09]. Znowelizowana ustawa Prawo Atomowe (Dz. U. 2019 poz. 1792) wprowadza w Polsce tzw. poziom referencyjny średniorocznego stężenia ^{222}Rn w miejscach pracy wewnątrz pomieszczeń oraz w pomieszczeniach przeznaczonych na pobyt ludzi, który wynosi 300 Bqm^{-3} .

Zarówno ^{222}Rn jak i ^{220}Rn zwiększają ryzyko wystąpienia nowotworów dróg oddechowych, jednak obecność toronu w środowisku często jest ignorowana ze względu na krótki okres półrozpadu. Jego udział w pochłoniętej dawce nie powinien być pomijany, zwłaszcza na obszarach, gdzie występują wysokie stężenia toru w podłożu, takich jak Indie lub Chiny [May12, Ram12]. W Indiach rozpoczęto kilka programów badawczych mających na celu zapoznanie się z problemem i wdrożenie odpowiednich działań by zapobiec narażeniu ludności na toron. Wynika to także z planów rozwoju w Indiach energetyki jądrowej opartej o paliwa na bazie toru [May12, Ram12].

1.4 Izotopy radonu w glebie

Proces uwalniania się izotopów radonu ze skorupy ziemskiej został przedstawiony na Rys. 1.2. Można go podzielić na trzy etapy:

- emanacja - proces uwalniania się atomów radonu ^{222}Rn lub toronu ^{220}Rn z ziaren minerałów do przestrzeni międzyziarnowej (szerzej opisany w rozdziale 2),
- transport – migracja uwolnionego gazu w przestrzeni międzyziarnowej odbywająca się w drodze dyfuzji i konwekcji,
- ekshalacja – wydostanie się gazu z gruntu do przyziemnej warstwy powietrza.



Rys. 1.2 Proces wydostawania się $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ z gleby lub materiałów budowlanych do atmosfery [Maz08].

1.4.1 Transport

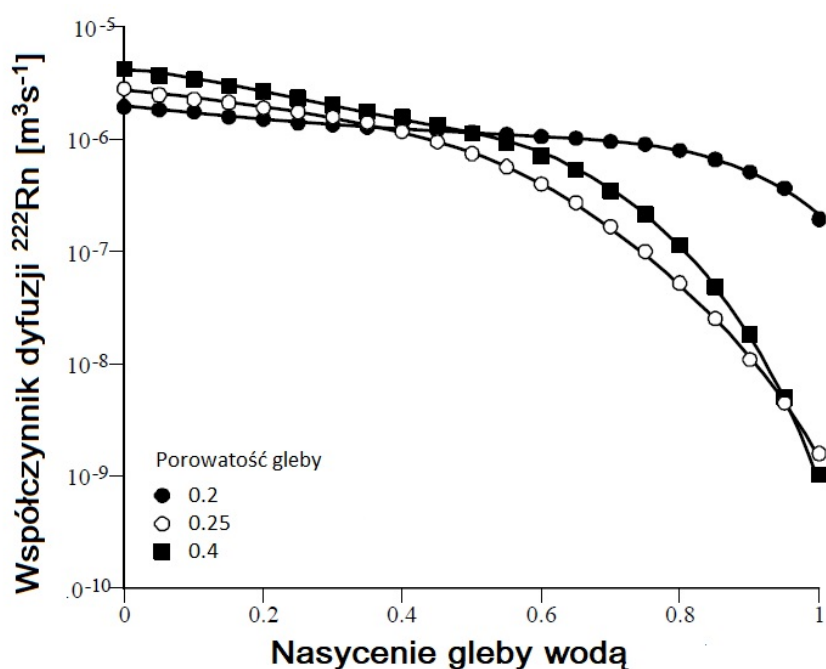
Procesem następującym po emanacji odpowiadającym za uwolnienie się izotopów radonu do atmosfery jest transport. Jego dwa główne mechanizmy to:

- dyfuzja spowodowana gradientem koncentracji,
- konwekcja wywołana różnicą ciśnienia lub temperatury.

Transport dyfuzyjny jest uważany za jeden z głównych mechanizmów wydostawania się radonu oraz toronu z materiałów budowlanych, gleb oraz innych materiałów porowatych do otwartego powietrza. Mechanizm ten opisany jest prawem Fick'a, które łączy gradient stężenia z gęstością strumienia gazu. Proces konwekcji opisany jest za pomocą prawa Darcy'ego i nabiera większego znaczenia w transporcie tych gazów z gleby do budynku, ze względu na różnicę ciśnień i temperatur pomiędzy nimi. Zależność tę widać szczególnie w zimnych klimatach, gdzie budynki są cieplejsze niż powietrze na zewnątrz, co powoduje powstanie tzw. „efektu kominowego” i zasysanie ^{222}Rn oraz ^{220}Rn do pomieszczeń poprzez między innymi pęknięcia w betonowej podłodze lub ścianach piwnic.

Parametrami mającymi wpływ na transport izotopów radonu są: przepuszczalność gleby, jej porowatość, wilgotność i temperatura jak również ukształtowanie terenu w postaci nieciągłości tektonicznych, takich jak, sieć spękań i szczelin, czy uskoki. Również same ruchy płyt tektonicznych w formie ściskania i rozciągania oraz gatunki zwierząt żyjące pod ziemią i korzenie roślin mają wpływ na transport tych gazów. Głównym parametrem jest

jednak przepuszczalność, od której zależy gradient ciśnienia oraz prędkość, z jaką przepływa gaz w przestrzeni porowej gleby. Różne typy gleby mają różny zakres przepuszczalności np. drobnoziarniste gleby takie jak gliny czy ropy mają znacznie mniejszą przepuszczalność w porównaniu z piaskami czy żwirami. Przepuszczalność ośrodka silnie zależy od jego wilgotności. Do pewnego poziomu wilgotności ilość atomów ^{222}Rn lub ^{220}Rn uwolnionych do przestrzeni międzyziarnowych rośnie. Wynika to z tego, że woda znajdująca się w przestrzeni międzyziarnowej zmniejsza zasięg odrzutu bezpośredniego atomów radonu i toronu, przez co nie zostają one „wchłonięte” przez sąsiednie ziarno. Od pewnego poziomu wilgotności jednak, atomy ^{222}Rn lub ^{220}Rn zostają skutecznie zatrzymane w przestrzeni międzyziarnowej wypełnionej całkowicie wodą (Rys. 1.3) [Jan05].



Rys. 1.3 Zależność współczynnika dyfuzji ^{222}Rn w glebie od wilgotności [Jan05].

Długość drogi dyfuzji izotopów radonu zależy głównie od ich okresów półrozpadu. Dla ^{222}Rn w powietrzu wynosi około 2,3 m natomiast dla ^{220}Rn tylko około 2,9 cm [Uji08].

1.4.2 Ekshalacja

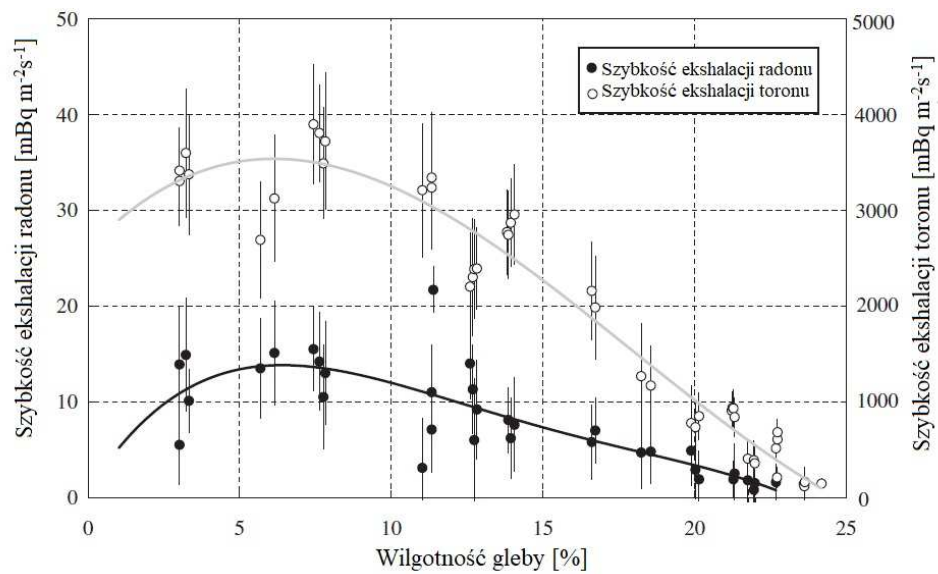
Ostatnim etapem uwalniania się izotopów radonu do atmosfery jest ekshalacja. Zjawisko to określane jest przez tzw. szybkość ekshalacji podawana w jednostkach $\text{Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$. Definiuje się ją jako aktywność radonu lub toronu uwalnianą z jednostkowej powierzchni w jednostce czasu. Wielkość ta zależy w głównej mierze od emanacji i transportu oraz od:

- temperatury i wilgotności materiału,
- ciśnienia i temperatury powietrza,
- opadów,
- prędkości wiatru.

Zwykle czas zmian ciśnienia atmosferycznego jest znacznie krótszy niż okres półrozpadu ^{222}Rn . Można spodziewać się, że ilość uwolnionego gazu wzrośnie wraz ze spadkiem ciśnienie atmosferycznego. Ponieważ zmiany ciśnienia są cykliczne, wzrosty i spadki strumienia ^{222}Rn mają tendencję do kompensowania siebie nawzajem, zatem długookresowe strumienie radonu nie są silnie zależne od ciśnienia atmosferycznego [Sah13].

Pokrywa śnieżna i zamrożona ziemia mogą zmniejszyć szybkość ekshalacji. Opady deszczu bezpośrednio wpływają na zawartość wilgoci w glebie. Zależność ekshalacji od wilgotności była wielokrotnie badana i stwierdzono, że do pewnej wartości wilgotności gleby szybkość ekshalacji rośnie natomiast powyżej pewnego punktu spada do wartości, jak dla suchej gleby, co przedstawia Rys. 1.4. Jest to związane z częściowym wypełnieniem przestrzeni porowej wodą, przez co atom ^{222}Rn lub ^{220}Rn zostaje zatrzymany w wodzie. Atomy toronu lub radonu zamiast wnikać w sąsiadujące ziarno są zatrzymywane w wodzie, co również ułatwia ich transport. Przy zbyt dużej wilgotności, jednak zmniejsza się współczynnik dyfuzji radonu [Maz08]. Najbardziej optymalna wartość wilgotności jest różna w zależności od materiału i jego właściwości fizykochemicznych. [Sah13].

W przeciwieństwie do emanacji toronu, jego ekshalacja jest szerzej zbadanym procesem. Istnieje wiele prac dotyczących tego zagadnienia, jak również powstaje coraz więcej różnego rodzaju aparatury pozwalającej precyzyjnie mierzyć stężenie tego gazu w atmosferze [Chi18, Jan15, Mag18].



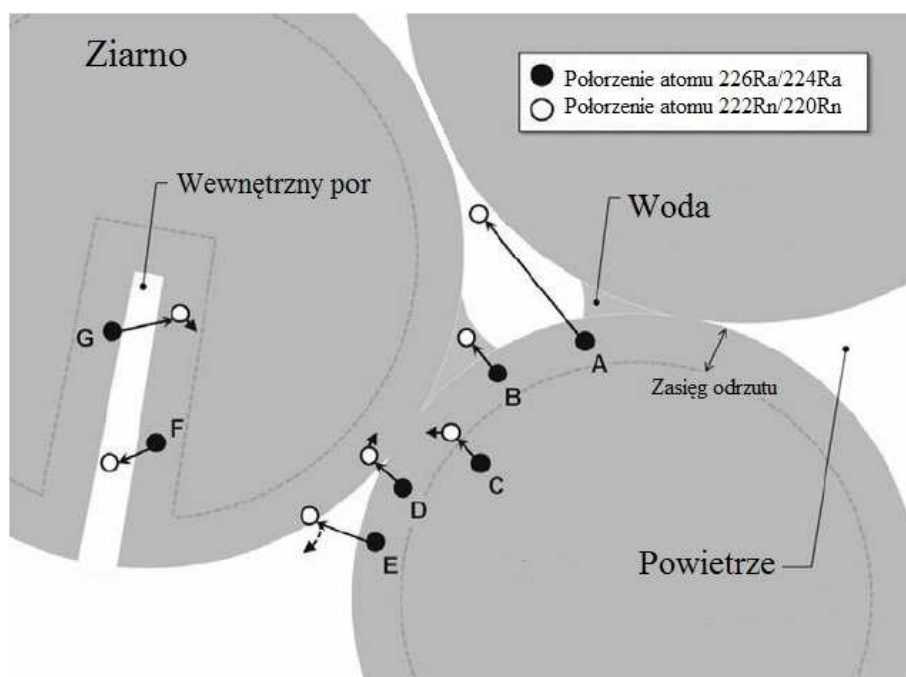
Rys. 1.4 Zależność szybkości ekshalacji ²²²Rn / ²²⁰Rn z gleby od wilgotności [Hos07].

2. Emanacja – mechanizm uwalniania się izotopów radonu (^{222}Rn , ^{220}Rn) do przestrzeni międzyziarnowej

2.1 Zjawisko emanacji

Atomy izotopów radonu powstają podczas rozpadu izotopów radu znajdującego się w ziarnie. Atomy ^{222}Rn oraz ^{220}Rn powstałe w tym rozpadzie posiadają energię odpowiednio 86 keV i 123 keV, dlatego też mogą migrować w ziarnie i wydostawać się z niego. Odległość, jaką atom radonu lub toronu może pokonać podczas odrzutu (po emisji cząstki alfa) zależy od gęstości i składu materiału i waha się od 20 do 70 nm [Cot87, Jan05]. Ruch powstałego atomu po odrzucie cząstki alfa (odrzut alfa) ma duże znaczenie, gdyż rozrywa wiązania chemiczne, zmienia pozycję atomu w ziarnie i uszkadza strukturę krystaliczną.

Różne przypadki odrzutu alfa powodujące emanację atomu toronu lub radonu zostały przedstawione na Rys. 2.1.



Rys. 2.1 Schemat zjawiska emanacji - (strzałki następujące po końcowych punktach odrzutu reprezentują proces dyfuzji molekularnej) [Sak11].

Proces emanacji izotopów radonu składa się z odrzutu alfa (pośredniego lub bezpośredniego) oraz dyfuzji molekularnej atomu w ziarnie. Odrzut bezpośredni występuje w przypadku, gdy atom po odrzucie znajduje się w przestrzeni międzyziarnowej (Rys. 2.1, A, B, F). W momencie, gdy atom po rozpadzie dostanie się do innego ziarna jest to odrzut pośredni (Rys. 2.1, D, E, G). W sytuacji, gdy atom nie wydostanie się z ziarna migruje on do

porów wewnątrz ziarna poprzez dyfuzję molekularną (Rys. 2.1, C). Ze względu na bardzo mały współczynnik dyfuzji za główny czynnik odpowiadający za emanację uważa się odrzut atomu [Sem91, Sak11]. Rozpad A (Rys. 2.1) prezentuje idealną sytuację, w której rozpad atomu radu następuje w odpowiedniej odległości od powierzchni ziarna, dzięki czemu energia odrzutu wystarczy na wydostanie się atomu radonu lub toronu do przestrzeni międzyziarnowej wypełnionej powietrzem. Podobna sytuacja (Rys. 2.1, B) występuje, gdy atom jest absorbowany przez wodę w przestrzeni międzyziarnowej. Sytuacja C opisuje rozpad radu znajdującego się w ziarnie w obszarze poza zasięgiem odrzutu alfa, co powoduje, że atom radonu lub toronu zostaje zatrzymany w ziarnie, a następnie migruje (dyfuzja molekularna). W sytuacjach D i G rozpad radu miał miejsce blisko powierzchni ziarna i atom radonu lub toronu wydostał się z niego, ale wniknął do porów tego samego ziarna lub sąsiadującego z nim. Sytuacja E przedstawia podobne zdarzenie jak punkty D i G, ale po osadzeniu atomu w sąsiednim ziarnie radon/toron może dyfundować przez strefę uszkodzoną przez odrzut alfa. W przypadku, gdy atomowi w sytuacji F uda się wydostać z przestrzeni pora wewnętrznego do zewnętrznej części międzyziarnowej, uznaje się tę sytuację za odrzut bezpośredni. W momencie, gdy atom nie wydostanie się z pora wewnętrznego, jest to odrzut pośredni [Sak11].

Odległość atomu radu od powierzchni ziarna ma istotne znaczenie przy odrzucie alfa radonu/toronu i wpływa na wielkość współczynnika emanacji. Proces emanacji opisuje się poprzez współczynnik emanacji f , który jest stosunkiem liczby atomów ^{222}Rn lub ^{220}Rn , które wydostają się z ziarna do przestrzeni międzyziarnowej, do całkowitej liczby atomów ^{222}Rn lub ^{220}Rn , które powstały w ziarnie w wyniku rozpadu radu. W sytuacji, gdy duża ilość atomów radu nie znajduje się przy powierzchni, a w głębi ziarna, nie można lekceważyć zjawiska dyfuzji molekularnej. Współczynnik dyfuzji molekularnej radonu / toronu w ciałach stałych jest bardzo niski [Ram10]. Wydostanie się atomu radonu z ziarna poprzez dyfuzję molekularną dla dużych ziaren materiału jest praktycznie niemożliwe, ale w przypadku małych ziaren może mieć większe znaczenie.

2.2 Model matematyczny procesu emanacji

Istnieją dwa rodzaje opisu zjawiska emanacji radonu / toronu. Jeden z nich to model matematyczny, a drugi polega na jakościowej interpretacji wyników eksperymentalnych.

W modelach matematycznych uwzględnia się niejednorodne rozmieszczenie radu w ziarnie. W metodach eksperymentalnych nie da się określić dokładnie, ile atomów radonu

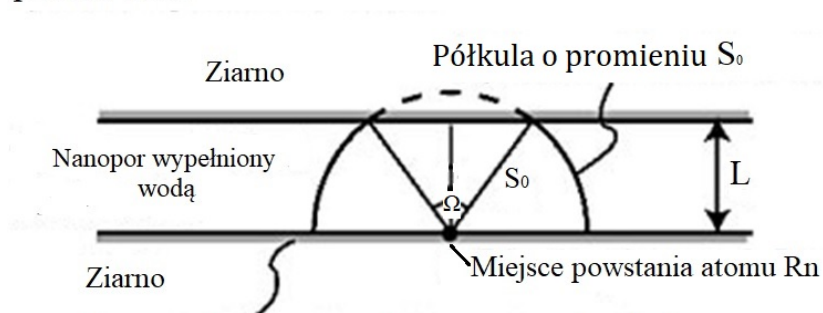
lub toronu rzeczywiście wydostało się z ziarna, a ile zostało uwięzionych w innych ziarnach lub rozpadło się zanim dotarło do detektora.

Podstawowe założenia w modelu matematycznym dotyczące zachowania się atomów radonu są następujące [Sas04]:

- założenie 1: Wszystkie nowo powstałe atomy radonu zachowują się w sposób izotropowy. Ilość atomów radonu w jednostkowym kącie bryłowym jest taka sama we wszystkich kierunkach w miejscu powstania i niezależna od położenia w ziarnie.
- założenie 2: Ziarno jest jednorodne i nie ma anizotropii w odniesieniu do rozprzestrzeniania się atomów radonu. Ilość atomów radonu przemieszczających się w pewnej odległości od powierzchni ziarna w jednostkowym kącie bryłowym jest stała we wszystkich kierunkach, jeśli nie ma żadnego innego ziarna zakłócającego ruch emitowanych atomów radonu w obszarze porów.
- założenie 3: Każdy nanopor jest wypełniony wodą. Współczynniki emanacji radonu przy wysokiej wilgotności są większe niż w suchym materiale.

Poniżej opisano jeden z modeli matematycznych (Rys. 2.2).

Nanopor jest otoczony przez ziarno o płaskiej powierzchni



Atomy radu rozprowadzone na powierzchni ziarna (bez uwzględnienia grubości)

Rys. 2.2 Nanopor płaski o równomiernym rozkładzie radu na powierzchni ziarna [Sas04].

Rad jest rozmieszczony równomiernie na powierzchni ziarna. Wszystkie wyemitowane atomy radonu mają taki sam zakres odrzutu 100 nm w porach wypełnionych wodą. Założono, że radon jest emitowany w środku półkuli pokazanej na Rys. 2.2. Kąt bryłowy otaczający atom radonu uwolniony do nanoporu wynosi 2π . Stosunek ilości atomów radonu, które wydostały się z ziarna do wszystkich powstałych atomów radonu w ziarnie wynosi 0,5, ponieważ zakłada się emisję izotropową. Stosunek ζ ilości zaabsorbowanych

atomów radonu w sąsiednim ziarnie do wszystkich wyemitowanych atomów radonu można obliczyć jako stosunek kąta bryłowego Ω odpowiadającego promieniowi S_0 do kąta bryłowego 2π odpowiadającemu wszystkim wyemitowanym atomom radonu (Rys 2.2). Wartość ζ oblicza się wg. wzoru [Sas04]:

$$\zeta = \frac{2\pi S_0(S_0-L)}{2\pi S_0^2} = \frac{S_0-L}{S_0} \quad (2.1)$$

gdzie:

S_0 - zakres odrzutu radonu w wodzie (100 nm),

L - rozmiar nanoporu (10 nm), czyli odległość między powierzchniami dwóch sąsiednich ziaren (Rys 2.2).

Współczynnik emanacji radonu f^* oblicza się ze wzoru [Sas04]:

$$f^* = (1 - \zeta) \cdot f \quad (2.2)$$

gdzie:

f - stosunek ilości wyemitowanych atomów radonu do wszystkich powstałych i wynosi 0,5.

$(1 - \zeta)$ jest to ilość atomów radonu, która wydostała się z ziarna i nie została zaabsorbowana przez sąsiednie ziarno.

Przedstawiony model jest najprostszym ze wszystkich modeli, gdyż zakłada umiejscowienie atomu radu na powierzchni ziarna, co nie zawsze ma miejsce [Sas04]. Model ten odnosi się tylko do radonu, ale z powodzeniem może być zastosowany do toronu, gdyż mechanizmy emanacji dla tych dwóch izotopów różnią się jedynie zakresami odrzutu.

2.3 Czynniki zewnętrzne wpływające na proces emanacji izotopów radonu (^{222}Rn , ^{220}Rn)

Wartość współczynnika emanacji zależy od bardzo wielu parametrów między innymi od rodzaju odrzutu alfa i dyfuzji molekularnej, jak również od parametrów fizycznych materiału takich jak [Sak11]:

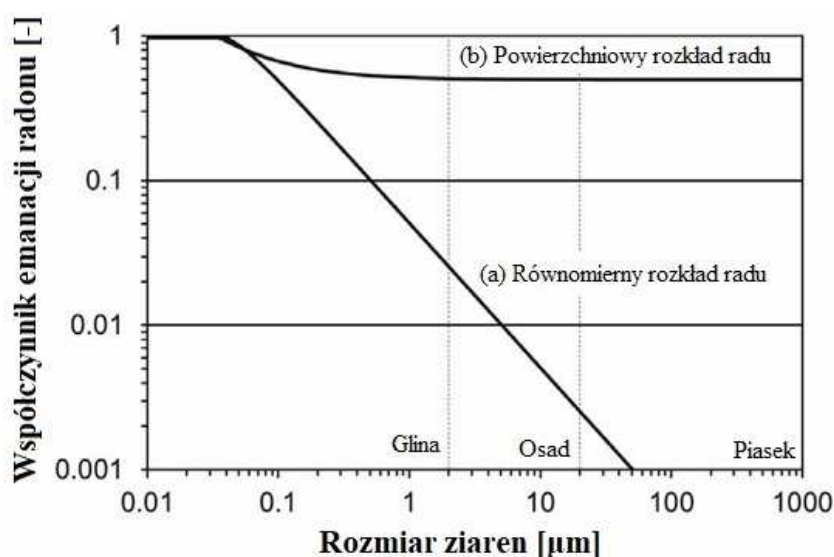
- zawartość izotopów radu i ich rozmieszczenie w ziarnie,
- rozmiar porów zewnętrznych i wewnętrznych,
- gęstość materiału (struktura krystaliczna),
- wilgotność materiału,

- porowatość materiału,
- kształt i rozmiar ziaren.

2.3.1 Rozkład radu, wielkość i kształt ziaren

Rozmiar i kształt ziaren częściowo determinuje, ile atomów radu jest wystarczająco blisko powierzchni ziarna, tak, aby po ich rozpadzie, atomy radonu lub toronu mogły wydostać się do przestrzeni międzyziarnowej. Niewiele jednak wiadomo na temat wpływu wielkości ziarna na współczynnik emanacji. Autorzy Markkanen i Arvela stwierdzili, że współczynnik emanacji radonu zmniejsza się wraz ze wzrostem wielkości ziarna, dla ziaren o rozmiarach ponad 0,5 mm [Mar92].

Przyjmuje się, że współczynnik emanacji radonu jest odwrotnie proporcjonalny do wielkości ziaren, ponieważ mniejsze ziarna mają większe sumaryczne pole powierzchni. Prace Bartona i Ziemera (1986) oraz Kalkwarf (1985) oparte na wynikach eksperymentalnych potwierdzają to założenie, jednak większość obecnych prac dotyczących wpływu wielkości ziarna na współczynnik emanacji radonu oparte są na modelowaniu komputerowym tej zależności [Sak10]. Przykład takiego modelu przedstawia Rys 2.3.



Rys. 2.3 Współczynnik emanacji ^{222}Rn w modelu pojedynczego ziarna. Przyjmuje się, że rad jest rozłożony (a) równomiernie w kulistym ziarnie i (b) na powierzchni kulistego ziarna. Model ten nie uwzględnia osadzania radonu w drugim ziarnie [Ish13].

Według modelu przedstawionego na Rys 2.3, gdyby rad był głównie rozłożony na powierzchni ziarna, współczynnik emanacji byłby stały niezależnie od średnicy ziarna. W przypadku równomiernego rozkładu radu w całym ziarnie, współczynnik emanacji radonu

zależałyby od rozmiaru ziarna (Rys 2.3). Jednolity rozkład atomów radu w ziarnie jest często cechą minerałów pierwotnych, które powstają bezpośrednio w danym środowisku np. minerały magmowe (krzemiany) lub minerały osadowe. Jednolity rozkład atomów radu na powierzchni jest charakterystyczny dla minerałów wtórnych, które powstają z minerałów pierwotnych w procesie przemian chemicznych i fizycznych. Istnieją bardziej złożone teorie wyjaśniające zjawisko emanacji radonu / toronu w przypadku innych rozkładów atomów radu w ziarnie, uwzględniających takie czynniki jak: fraktalna struktura sieci krystalicznej i wpływ sąsiadujących ziaren [Ish13].

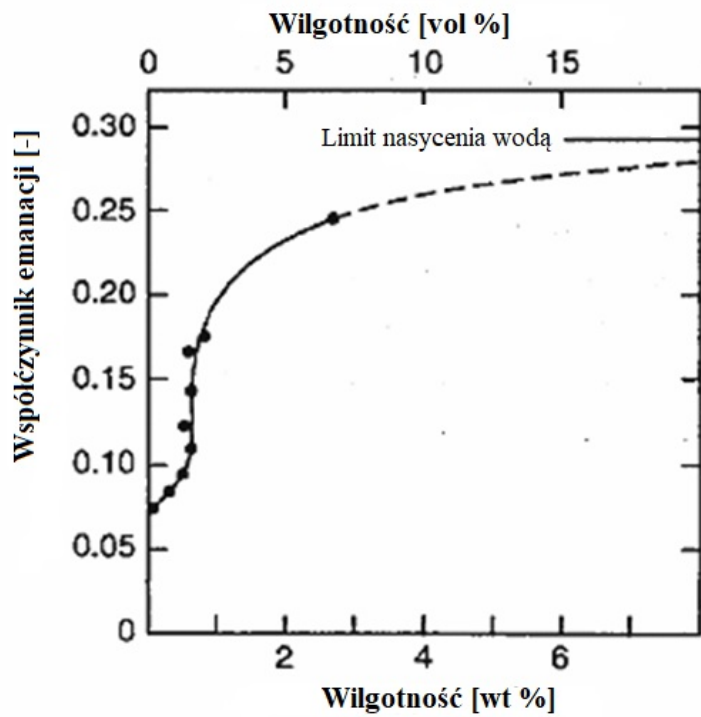
2.3.2 Wilgotność materiału

Wilgotność ma silny wpływ na współczynnik emanacji. Dzieje się tak, ponieważ typowe zakresy odrzutu w wodzie są znacznie mniejsze niż w powietrzu (Tabela 2.1), a zatem woda jest bardziej skuteczna w zatrzymywaniu atomów radonu i toronu w przestrzeni porów.

Tabela 2.1 Zasięg odrzutu alfa ^{222}Rn i ^{220}Rn w różnych ośrodkach [Ish13].

Ośrodek	Gęstość ośrodka [g/cm ³]	Zasięg [nm]	
		^{222}Rn	^{220}Rn
Powietrze	$1,58 \times 10^{-3}$	53×10^3	60×10^3
Woda	1	77	87
Kwarc (SiO ₂)	2,65	34	38

Rysunek 2.4 obrazuje zależność wzrostu współczynnika emanacji radonu od wzrostu wilgotności. W suchych materiałach współczynnik emanacji jest stosunkowo niski, ponieważ większość atomów radonu lub toronu wydostających się z ziarna zostaje pochłonięta przez sąsiadujące ziarno. Wraz ze wzrostem zawartości wilgoci pory zawierają więcej wody, co zwiększa prawdopodobieństwo, że atom po odrzucie zostanie zaabsorbowany przez wodę w przestrzeni międzyziarnowej. Przy wyższej zawartości wilgoci (powyżej 5%) niewiele atomów radonu/toronu może przenikać do sąsiedniego ziarna, a współczynnik emanacji przyjmuje stałą wartość wraz ze wzrostem wilgotności aż do nasycenia. Ogólnie, współczynnik emanacji w nasyconych wodą materiałach jest od 2 do 6 razy wyższy niż w suchych. Wyższa wartość współczynnika emanacji radonu odpowiada materiałom o mniejszych rozmiarach ziaren [Ish13].



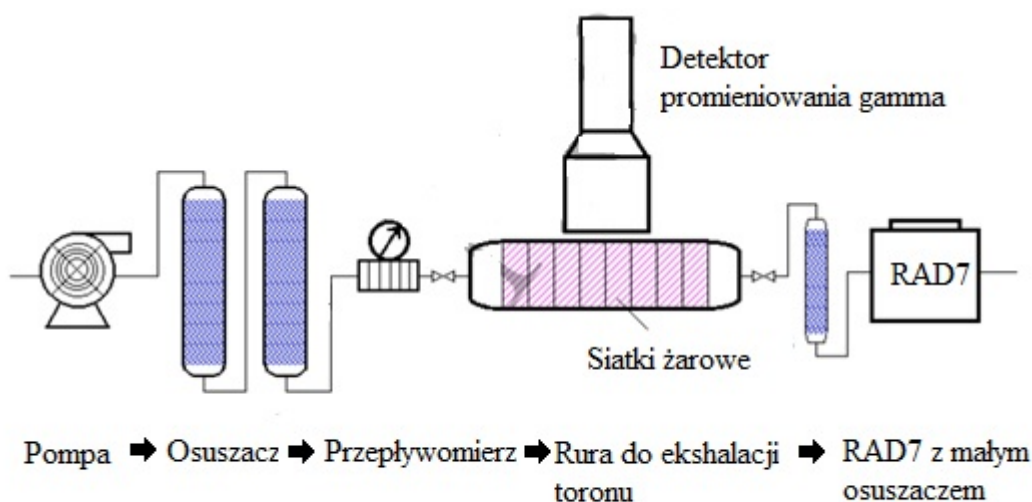
Rys. 2.4 Wpływ wilgotności na współczynnik emanacji ^{222}Rn dla odpadów z kopalni uranowej [Ish13].

3. Metody określania współczynnika emanacji

Ze względu na dość skromny zasób literatury dotyczący określenia współczynnika emanacji toronu, w stosunku do prac odnoszących się do określenia współczynnika emanacji radonu, część technik przedstawiona w tym rozdziale odnosi się głównie do badania zjawiska emanacji ^{222}Rn . Poniżej przedstawiono kilka technik pomiarowych pogrupowanych ze względu na zastosowany układ pomiarowy.

3.1 Układ pomiarowy otwarty

W pracy [Wan17] wykorzystującej układ otwarty, jako źródło toronu, zastosowano siatki do lamp gazowych zawierające duże stężenia ^{232}Th . Układ pomiarowy przedstawiony na Rys.3.1 składa się z pompy, osuszacza znajdującego się przed rurą szczelnie wypełnioną siatkami żarowymi i miernika RAD7 z osuszaczem.



Rys. 3.1 Schemat układu pomiarowego [Wan17].

W układzie zamontowany jest również przepływomierz. Prędkość przepływu powietrza wynosiła od $0,5 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$ do $3 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$. W warunkach wilgotności od 3% do 5% oraz temperatury powietrza $20 \pm 5 \text{ }^\circ\text{C}$ strumień uwalnianych z siatek żarowych atomów toronu był stały. Nad rurą z siatkami umieszczono detektor promieniowania gamma, aby określić aktywność ^{232}Th w próbce. Miernik RAD7 mierzył stężenie toronu uwalnianego z siatek żarowych. Wykorzystując poniższy wzór określono współczynnik emanacji toronu f :

$$f = \frac{c(\lambda V + q)}{\lambda A_0} \quad (3.1)$$

gdzie:

C - stężenie toronu zarejestrowane przez RAD7 [Bqm^{-3}],

A_0 - aktywność ^{232}Th w próbce określona za pomocą spektroskopii gamma [Bq],

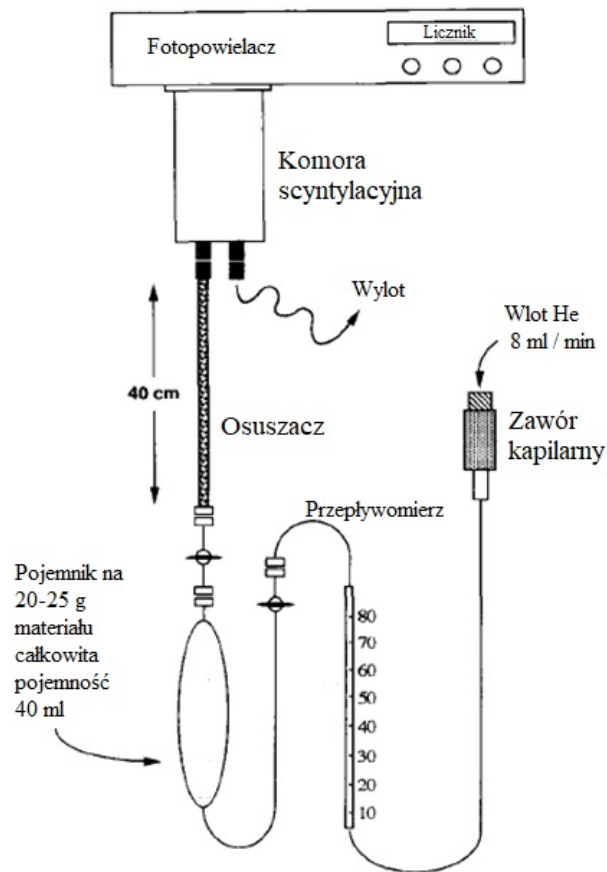
λ - stała rozpadu toronu [s^{-1}],

q - prędkość przepływu [$\text{dm}^3 \text{min}^{-1}$],

V - objętość rury z siatkami [dm^3].

3.2 Układ pomiarowy zamknięty

Jedną z technik, w której wykorzystano zamknięty układ pomiarowy przedstawiają Greeman i Rose [Gre96]. Jako miernik stężenia toronu zastosowano komorę scyntylicyjną Lukasa. Autorzy zakładają, że materiał organiczny znajdujący się w próbce gleby ma wpływ na współczynnik emanacji. W związku z tym przed pomiarem stężenia toronu uwalnianego z próbki, materiał został przesiany przez 2-milimetrowe sito i poddany ekstrakcji NaOCl, aby pozbyć się części organicznej. Do określenia współczynnika emanacji toronu, wykorzystano 20-25 gramów gleby szczelnie zamkniętej w specjalnym pojemniku uzupełnionym wodą do 40ml (Rys. 3.2). Woda, znajdująca się w pojemniku, zmniejsza ilość odrzutów pośrednich atomów toronu oraz ułatwia ich transport z przestrzeni międzyziarnowej. Wstępnie technika ta była stosowana do określenia stężenia ^{224}Ra w wodzie na podstawie stężenia toronu ^{220}Rn [Smi88].



Rys. 3.2 Schemat aparatury stosowanej do określenia współczynnika emanacji toronu [Gre96].

Do usunięcia atomów radonu i toronu z próbki zastosowano strumień helu z prędkością przepływu $0,008 \text{ dm}^3\text{min}^{-1}$. Gaz po przejściu przez rurkę z osuszaczem o długości 40-centymetrów trafił do komory scyntylacyjnej (pojemność 285 ml). Po 40 minutach, w których osiągnięto stałą szybkość zliczeń w liczniku, kontynuowano pomiar przez następne 260 minut. Współczynnik emanacji toronu obliczono jako stosunek stężenia toronu do stężenia radu ^{224}Ra w próbce, przy uwzględnieniu gęstości i porowatości próbki:

$$f = \frac{C_{Tn}\{P[F(K-1)+1]\}}{C_{Ra}D} \quad (3.2)$$

gdzie:

C_{Tn} - stężenie toronu [Bq m^{-3}],

P - całkowita porowatość gleby [$\text{m}^3_p\text{m}^{-3}_s$],

F - porowatość przy częściowym wypełnieniu wodą przestrzeni porowej [$\text{m}^3_w\text{m}^{-3}_s$],

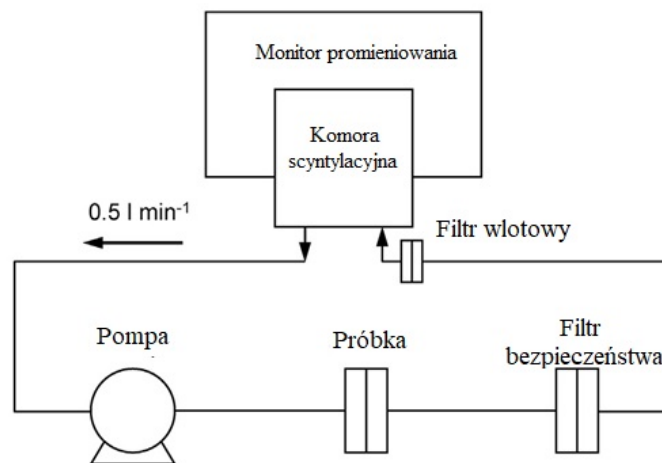
K - współczynnik rozdziału toronu między fazą powietrzną i wodną [$\text{m}^3_a\text{m}^{-3}_w$],

C_{Ra} - stężenie ^{224}Ra w próbce [Bq kg^{-1}],

D - gęstość nasypowa [kg m^{-3}_s],

a, w, s, p oznacza odpowiednio powietrze, wodę, glebę i całkowitą porowatość.

Kolejną technikę wykorzystującą układ zamknięty do określenia współczynnika emanacji przedstawił Sakoda [Sak16]. Cienką próbkę materiału zamkniętą między dwoma filtrami (średnica filtrów 4,1 cm, grubość próbki 0,25 cm) umieszczono w zamkniętym systemie pomiarowym, który składa się z filtra zabezpieczającego, filtra wlotowego, pompy z regulacją natężenia przepływu i komory scyntylacyjnej (300A, PYLON, Kanada). Schemat układu pomiarowego przedstawia Rys. 3.3. Atomy toronu i radonu zostały usunięte z próbki przez wymuszony przepływ powietrza, który wynosił $0,5 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$. Pomiar trwał przez kilka dni, a stężenie toronu ^{220}Rn określono na podstawie produktów rozpadu toronu ^{220}Rn (izotopy ^{216}Po , ^{212}Bi i ^{212}Po), natomiast stężenie radonu ^{222}Rn na podstawie produktów rozpadu radonu ^{222}Rn (^{218}Po i ^{214}Po).



Rys. 3.3 Schemat systemu pomiarowego do określenia współczynnika emanacji toronu i radonu [Sak16].

Na podstawie zarejestrowanej szybkości zliczeń R [Bqs^{-1}] określono współczynnik emanacji f ze wzoru:

$$f = \frac{R}{\lambda MK} \quad (3.3)$$

gdzie:

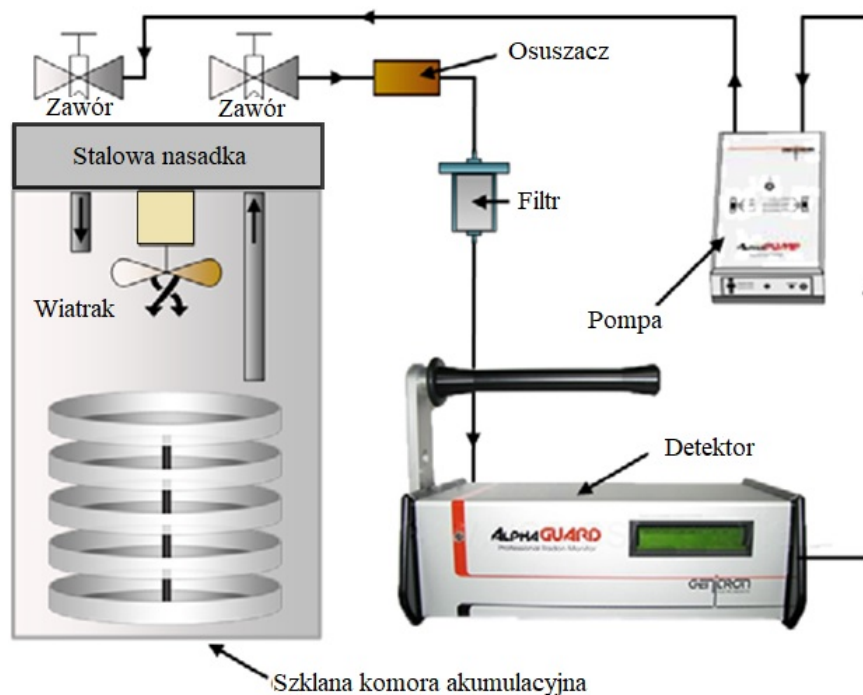
M - masa próbki [kg],

λ - stała rozpadu toronu [s^{-1}],

K - stężenie ^{224}Ra w próbce materiału [Bqkg^{-1}].

W kolejnej technice z zamkniętym układem pomiarowym wykorzystano miernik AlphaGUARD PQ2000 [Jon16]. Głównym wyzwaniem tej techniki było określenie stężenia toronu, gdyż zastosowany model miernika nie był wyposażony w specjalny moduł pomiarowy radon / toron, pozwalający na jednoczesne określenie stężenia zarówno radonu

jak i toronu. W związku z tym wykorzystano różnicę w okresach półrozpadu tych dwóch izotopów. Układ pomiarowy przedstawiony został na Rys.3.4.



Rys. 3.4 Schemat układu pomiarowego [Jon16].

Miernik stężenia toronu AlphaGUARD PQ2000 pracował w trybie przepływowym z przepływem $0,017 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$. Czas jednego cyklu pomiarowego wynosił 70 minut. Pierwsze 10 minut przeznaczono na osiągnięcie jednorodności w stężeniu gazów w układzie pomiarowym. Następnie przez 30 minut mierzono stężenie toronu i radonu. Po tym czasie zatrzymano cyrkulację powietrza. Toron zawarty w objętości miernika zaczął się rozpadać, natomiast radon dalej rejestrowano przez kolejne 30 minut. Wartość stężenia toronu uzyskano jako różnicę między wartościami stężenia toronu i radonu, a wartością stężenia samego radonu.

Ważnym elementem układu pomiarowego jest pojemnik akumulacyjny, w którym umieszczono specjalny wielowarstwowy uchwyt na próbki. Uchwyt posłużył do umieszczenia w pojemniku akumulacyjnym cienkich warstw próbek o grubości nie przekraczającej długości drogi dyfuzji toronu. Wewnątrz pojemnika akumulacyjnego zamontowano wentylator, aby zachować jednorodny przepływ gazów. Przed umieszczeniem próbki w pojemniku akumulacyjnym „przeplukano” układ parami azotu, aby początkowe stężenie radonu i toronu w pojemniku było zerowe. Próbki przed pomiarem wysuszono w temperaturze 105°C . Wartość aktywności toru ^{232}Th w próbce określono metodą spektroskopii gamma

z detektorem półprzewodnikowym HPGe. Współczynnik emanacji toronu f został obliczony ze wzoru:

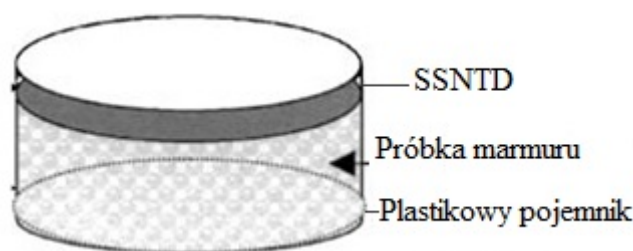
$$f = \frac{A_{thoron}}{A_{Th-232}} \quad (3.4)$$

gdzie:

A_{thoron} - aktywność toronu [Bq],

A_{Th-232} - aktywność ^{232}Th [Bq].

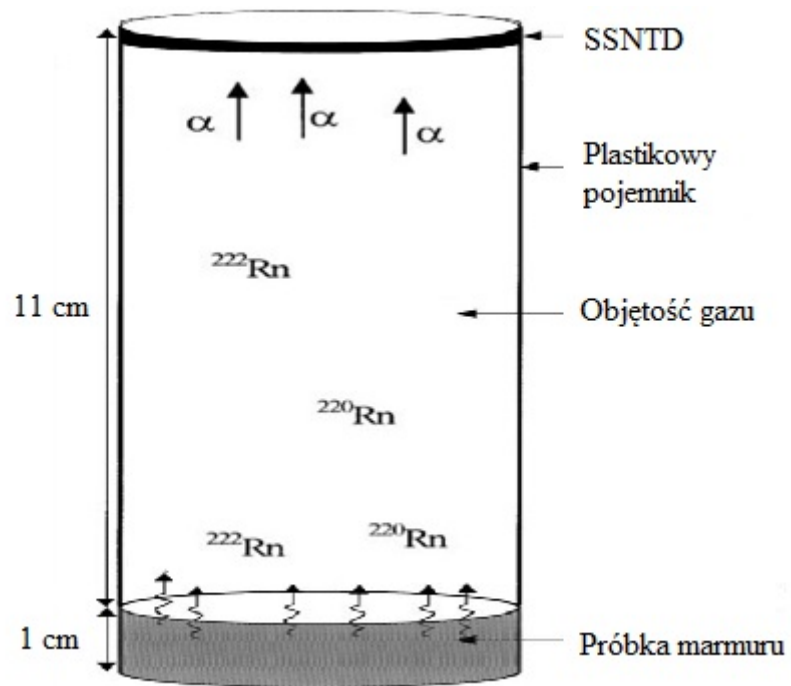
W metodzie przedstawionej przez Misquet [Mis97,Mis05] wykorzystano detektory śladowe SSNTD (Cr-39 oraz LR-115). W pracy tej autorzy określali współczynnik emanacji radonu / toronu jako stosunek stężenia radonu ($A_c^{222}(\text{out})$) lub toronu ($A_c^{220}(\text{out})$), który wydostał się z próbki do całkowitego stężenia radonu ($A_c^{222}(\text{in})$) lub toronu ($A_c^{220}(\text{in})$) w próbce. Aby określić $A_c^{222}(\text{in})$ lub $A_c^{220}(\text{in})$, pobraną próbkę materiału umieszczono w dwóch identycznych zamkniętych cylindrycznych pojemnikach o wysokości 1cm z tworzywa sztucznego, jak pokazano na Rys. 3.5.



Rys. 3.5 Detektor SSNTD o promieniu 2 cm umieszczony na pojemniku zawierającym próbkę materiału o wysokości 1cm [Mis05].

Bezpośrednio na próbce umieszczono detektor CR-39 w jednym pojemniku, a detektor LR-115 w drugim. Ekspozycja trwała przez jeden miesiąc. Po ekspozycji folie były wytrawiane i na podstawie stosunku gęstości śladów w obydwóch detektorach określono stężenie radonu i toronu w próbce: $A_c^{222}(\text{in})$ i $A_c^{220}(\text{in})$.

Analogicznie, jak w przypadku mniejszego pojemnika, do określenia stężenia radonu $A_c^{222}(\text{out})$ i toronu $A_c^{220}(\text{out})$ wydostającego się z próbki wykorzystano pojemnik przedstawiony na Rys. 3.6. Umieszczenie detektora SSNTD w odległości 11 cm od powierzchni próbki pozwoli określić na podstawie gęstości śladów z detektorów CR-39 i LR-115 dla tej samej próbki, stężenie toronu i radonu uwalniającego się z próbki: $A_c^{222}(\text{out})$ i $A_c^{220}(\text{out})$.



Rys. 3.6 Detektor SSNTD o promieniu 2cm umieszczony w odległości 11 cm od próbki materiału o wysokości 1 cm [Mis05].

4. Metoda pomiarowa wyznaczania współczynnika emanacji toronu i stosowana aparatura pomiarowa

Do wyznaczenia współczynnika emanacji toronu zastosowano technikę „powder sandwich” zaproponowaną przez S. D. Kanse [Kan13], którą ulepszono i dostosowano do sprzętu znajdującego się w Laboratorium Ekspertyz Radiometrycznych IFJ PAN.

4.1 Opis badanych próbek i określenie stężenia aktywności toru (^{232}Th) w próbce.

Próbki wykorzystywane w eksperymentach pochodzą z różnych regionów świata. Były to przede wszystkim piaski oraz gleba. Ciekawym materiałem, który udało się zbadać były tufy wulkaniczne. Wszystkie wykorzystane w pracy materiały i ich pochodzenie zostało przedstawione w Tabeli 4.1

Tabela 4. 1 Opis badanych materiałów oraz stężenie aktywności ^{224}Ra Q w próbce

Kod próbki	Rodzaj materiału	Pochodzenie materiału	Q [Bqg^{-1}]
AP1	kryształy soli (azotan toru)	Polska	1201 ± 26
GI1	gleba	Indonezja	$5,9 \pm 0,02$
GJ1	gleba	Japonia	$0,18 \pm 3 \cdot 10^{-3}$
KP1	sól torowa (źródło torowe)	Polska	$14,62 \pm 0,05$
PB1	piasek	Bangladesz	$50,03 \pm 0,4$
PC1	piasek monacytowy	Chiny	$63,01 \pm 1,57$
PJ1	piasek monacytowy	Japonia	$5 \pm 0,13$
PJ2	piasek monacytowy	Japonia	$5,8 \pm 0,2$
PM1	piasek	Madagaskar	$11,0 \pm 0,2$
PM2	piasek	Madagaskar	$12,0 \pm 0,2$
PM3	piasek	Madagaskar	$12,6 \pm 0,2$
PM4	piasek	Madagaskar	$12,4 \pm 0,2$
PM5	piasek	Madagaskar	$15,7 \pm 0,2$
PM6	piasek	Madagaskar	$24,4 \pm 0,4$
TW1	Tufy wulkaniczne	Włochy	$0,3 \pm 0,01$
TW2	Tufy wulkaniczne	Włochy	$0,2 \pm 6 \cdot 10^{-3}$

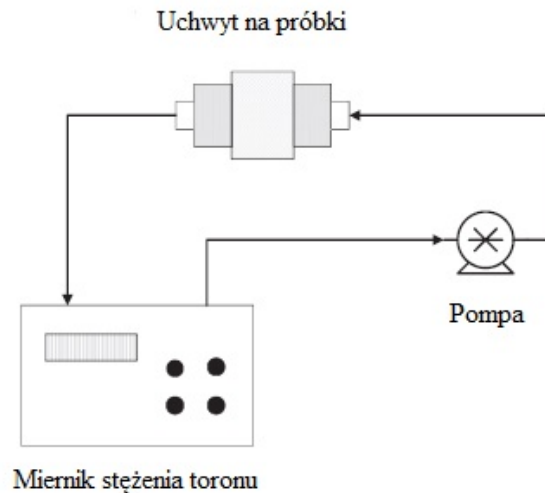
W dalszej części pracy do opisu materiałów zastosowano jedynie symbole przedstawione w pierwszej kolumnie Tabeli 4.1. Pierwsza litera symbolu oznacza rodzaj materiału (G - gleba, P - piasek, T – tufy wulkaniczne), druga litera oznacza kraj pochodzenia materiału, natomiast ostatnia cyfra to numer próbki z danego kraju.

Dostępne ilości materiału próbek do badań były niewielkie, do 40 gramów. Piasek monacytowy (PC1) był jedynym materiałem dostępnym w większej ilości (5 kg). Pozwoliło to na wykorzystanie tego piasku w badaniach wpływu wielkości ziaren na współczynnik emanacji toronu. Piaski monacytowe PJ2 i PJ1, jak również tufy wulkaniczne TW1 i TW2 zostały zmielone na proszek. Ze względu na długi okres czasu zamknięcia źródła torowego KP1 (od 1976 roku), doszło do jego rozwarstwienia. Dlatego po otwarciu pojemnika materiał został dokładnie wymieszany. Sól azotanu toru (AP1) o pełnym wzorze chemicznym $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ma silne właściwości higroskopijne, co wiązało się z łączeniem się materiału w zwarte grudy, które przed pomiarem musiały być rozdrobnione. Materiał ten ma również dużą wartość stężenia aktywności ^{224}Ra (Tabela 4.1) co dodatkowo czyniło go trudnym w przygotowaniu do pomiaru.

Stężenie aktywności ^{224}Ra (będącego w równowadze promieniotwórczej z ^{232}Th) w badanych materiałach oznaczono metodą niskotłowej spektroskopii promieniowania gamma. Wykorzystano tor spektrometryczny InSpector2000 z detektorem półprzewodnikowym HPGe (firmy Canberra). Rozdzielczość energetyczna (FWHM) detektora GX4020 wynosi 2,0 keV dla energii 1,3 MeV a względna wydajność 40%. Widma spektrometryczne analizowano za pomocą programu GENIE 2000. Krzywe wydajności toru spektrometrycznego wygenerowano z wykorzystaniem oprogramowania ISOCS (In Situ Object Counting System) dla stosowanej geometrii pomiarowej (pojemnik NW). System ISOCS umożliwia generowanie krzywych wydajności bez użycia wzorców kalibracyjnych. Każdy badany materiał został szczelnie zamknięty w naczyniu pomiarowym o geometrii NW i pozostawiony na minimum 5 dni, aby uzyskać równowagę pomiędzy ^{232}Th , a jego produktami rozpadu. Pojemnik pomiarowy NW to cylinder z polistyrenu o wysokości 40 mm, średnicy 70 mm i grubości ścianki wynoszącej 1 mm. Stężenia aktywności ^{232}Th określano na podstawie stężenia ^{228}Ac wg linii o energii 911 keV [Grz18].

4.2 Opis metody „powder sandwich”

Układ pomiarowy techniki „powder sandwich” przedstawiono na Rys 4.1.



Rys. 4.1 Układ pomiarowy techniki „powder sandwich” [Kan13].

Zamknięty układ pomiarowy składa się z miernika stężenia toronu, uchwytu na próbki i pompy. Próbkę zamkniętą jest pomiędzy dwoma filtrami w uchwycie. Dzięki jej małej grubości (~ 3 mm), wymuszony przepływ powietrza uwalnia większość atomów toronu z przestrzeni międzyziarnowej, co umożliwia ich rejestrację w mierniku.

Współczynnik emanacji toronu jest to stosunek liczby atomów ^{220}Rn , które wydostały się z ziarna do przestrzeni międzyziarnowej, do całkowitej liczby atomów ^{220}Rn , które powstały w ziarnie. Wzór na wyznaczenie współczynnika emanacji jest następujący [Ish13]:

$$f = \frac{CV}{QM} \quad (4.1)$$

gdzie:

C - stężenie aktywności toronu ^{220}Rn [Bq m^{-3}],

Q - stężenie aktywności radu ^{224}Ra , który jest w równowadze promieniotwórczej z torem ^{232}Th w próbce [Bq g^{-1}],

V - objętość układu pomiarowego [m^3],

M - masa materiału [g].

Dla zastosowanej metody pomiarowej użyto innej wersji powyższego wzoru [Kan13]:

$$f = \frac{J_M}{Q\lambda} \quad (4.2)$$

gdzie:

J_M - szybkość masowej emanacji toronu [$\text{Bqg}^{-1} \text{s}^{-1}$].

J_M definiuje się jako aktywność toronu uwalnianą w jednostce czasu z jednostkowej masy materiału. Mianownik $Q\lambda$ oznacza szybkość tworzenia się atomów toronu w ziarnach, w jednostce masy materiału w ciągu sekundy. Jeśli grubość próbki jest znacznie mniejsza (~ 10 razy) niż długość drogi dyfuzji toronu (~ 3 cm) [Uji08], to J_M oznacza szybkość masowej emanacji toronu [Chi18], również ze względu na fakt, że toron jest dodatkowo uwalniany z przestrzeni międzyziarnowej przez strumień powietrza.

Zakładając, że początkowe stężenie toronu w układzie pomiarowym wynosi zero, a układ jest w pełni szczelny, J_M dla stanu równowagi można wyrazić jako [Chi18]:

$$J_M = \frac{CV\lambda}{M} \quad (4.3)$$

Rejestrowane przez miernik stężenie toronu jest wprost proporcjonalne do wzrostu masy materiału, dzięki czemu szybkość masowej emanacji toronu można przedstawić wzorem [Kan13]:

$$J_M = S\lambda V \quad (4.4)$$

gdzie:

S - nachylenie prostej, dopasowanej metodą najmniejszych kwadratów do punktów pomiarowych średniego stężenia toronu w funkcji masy badanego materiału [$\text{Bqm}^{-3}\text{g}^{-1}$]:

$$S = \frac{n \sum_{i=1}^n M_i C_i - \sum_{i=1}^n M_i \sum_{i=1}^n C_i}{n \sum_{i=1}^n M_i^2 - (\sum_{i=1}^n M_i)^2} \quad (4.5)$$

gdzie:

n - liczba punktów

M_i - masa materiału dla i -tej próbki

Ostatecznie współczynnik emanacji toronu wyznaczano według wzoru:

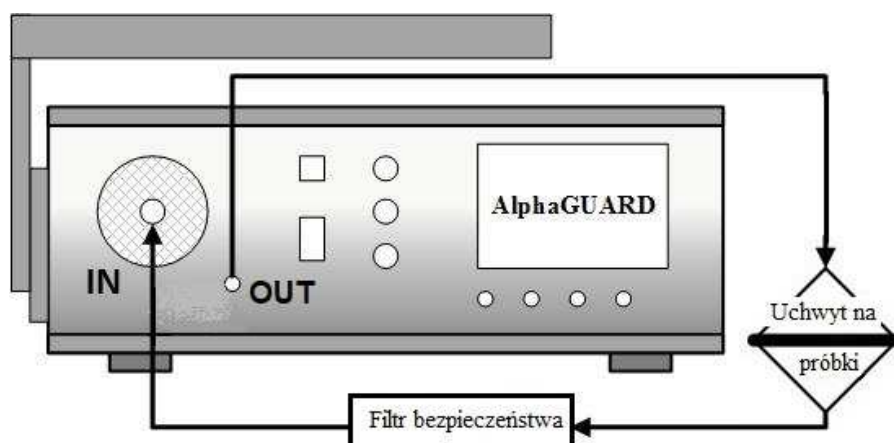
$$f = \frac{SV}{Q} \quad (4.6)$$

4.3 Wykorzystany w pracy układ pomiarowy

Technika przedstawiona przez Kanse została przystosowana do sprzętu używanego w Laboratorium Ekspertyz Radiometrycznych IFJ PAN.

Pomiary stężenia toronu wykonywano za pomocą trzech różnych mierników: AlphaGUARD DF 2000 (Saphymo), EQF 3220 (Sarad) oraz RAD7 (Durridge).

Schemat układu pomiarowego z miernikiem toronu AlphaGUARD DF 2000 pokazano na Rys. 4.2.



Rys. 4.2 Schemat układu pomiarowego z wykorzystaniem miernika AlphaGUARD DF2000.

Do połączenia wszystkich elementów układu wykorzystano rurki wykonane z materiału Tygon[®], który jest nieprzepuszczalny dla toronu. Długości rurek połączeniowych wynosiły od 25 cm do 325 cm.

W Laboratorium Ekspertyz Radiometrycznych IFJ PAN wykonano specjalne uchwyty (druk 3D) służące do utrzymywania filtrów i próbki w układzie pomiarowym. Uchwyty te składają się z dwóch stożków połączonych śrubami. Wykonano dwie wersje uchwyty dla mniejszej i większej masy próbki. Łączna wysokość uchwyty dla mniejszej próbki wynosi 7 cm, a średnica otworu w połączonych podstawach stożków to 2,4 cm. W przypadku uchwyty dla większej masy próbki, wielkości te wynoszą odpowiednio 6 cm i 6,4 cm (Rys 4.3). Do wykonania uchwyty użyto filamentu PET-G. Dodatkowo, aby uniknąć nieszczelności, każdy stożek został pokryty żywicą epoksydową, a miejsce złączenia, płynną silikonową uszczelką.



Rys. 4.3 Uchwyty na próbki (duży i mały).

Ważnym parametrem, który był niezbędny do poprawnego określenia współczynnika emanacji toronu jest całkowita objętość układu pomiarowego, czyli suma objętości miernika stężenia toronu, uchwytu na próbki, filtra bezpieczeństwa i rurek połączeniowych. Objętość ta różniła się w zależności od zastosowanego uchwytu i wykorzystywanego miernika stężenia toronu.

W Tabeli 4.2. podano te objętości dla stosowanych mierników i uchwytów oraz prędkości przepływów powietrza przez badaną próbkę.

Dokładny opis mierników i ich trybów pomiarowych znajduje się w rozdziale 4.4

Przed rozpoczęciem eksperymentu należało przygotować materiał próbki do pomiaru. Próbkę umieszczano między dwoma filtrami w uchwycie. Wykorzystano filtry z włókna szklanego i filtry membranowe w kształcie koła (własności filtrów opisano w rozdziale 5.1). Jeden z filtrów został pokryty na krawędzi cienką warstwą kleju pozostawiając mały fragment, aby przyłożony drugi filtr zupełnie nie zakleił tak przygotowanej „kieszonki”. Po wyschnięciu kleju filtry były ważone. W technice tej znajomość masy netto próbki jest niezbędna do określenia współczynnika emanacji toronu. Materiał ważony był po jego wysypaniu do sklejonych filtrów (masa brutto). Tak przygotowaną próbkę, delikatnie umieszczono na środku jednego ze stożków uchwytu. Średnica otworu stożka była odpowiednio mniejsza niż średnica filtrów. Dzięki temu próbka była dodatkowo dociskana przez drugi stożek. Próbkę szczelnie zamkniętą w uchwycie podłączano do układu pomiarowego. Ze względu na możliwość uszkodzenia próbki tzn. rozerwanie filtra w wyniku dużego przepływu powietrza w układzie (około $2 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$), przed wlotem do miernika umieszczono filtr zabezpieczający, co zapobiegało możliwości zanieczyszczenia miernika materiałem próbki.

W związku z pomiarem próbek, dla których uzyskiwano bardzo wysokie stężenia toronu, dochodzące nawet do 90 kBq m^{-3} , po każdym pomiarze mierniki były wietrzone co najmniej przez godzinę. W przypadku próbek dających stężenia toronu poniżej 1 kBq m^{-3} czas wietrzenia ograniczono do 30 minut.

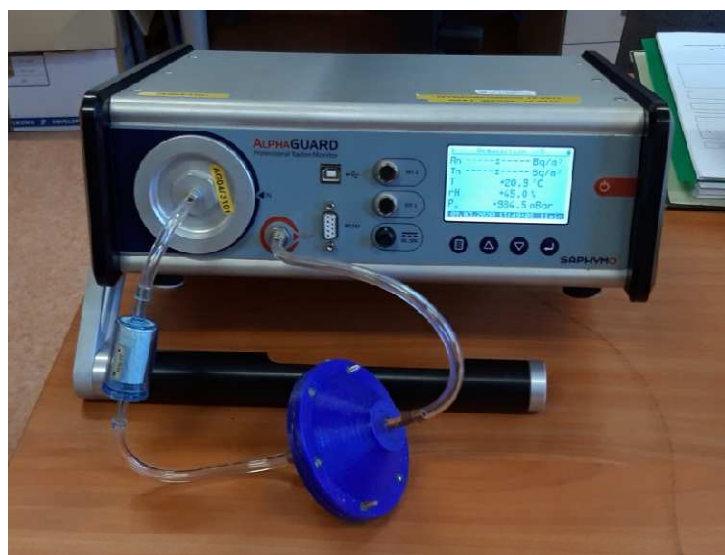
4.4 Stosowane mierniki stężenia toronu (^{220}Rn)

W pomiarach wykorzystano trzy mierniki stężenia toronu. Wykorzystane w pracy urządzenia różniły się objętością czynną miernika, wartością szybkości przepływu, stosowanym czasem pomiaru, rodzajem detektora, czy metodą wyznaczania stężenia toronu.

4.4.1 Miernik AlphaGUARD DF 2000

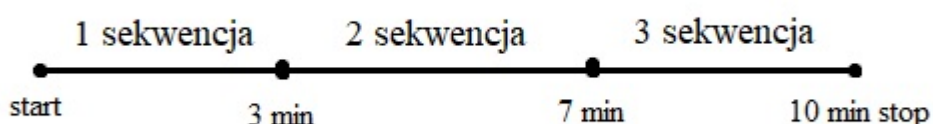
Miernik AlphaGUARD DF2000 (Rys. 4.4) wyposażony jest w komorę jonizacyjną o objętości czynnej $0,56 \text{ dm}^3$. Stałe napięcie pracy komory jonizacyjnej wynosi 750V . Cząstki alfa (α) emitowane przez radon i toron jonizują powietrze i generują w polu elektrycznym komory jonizacyjnej prąd elektryczny, którego natężenie jest proporcjonalne do liczby cząstek α , a przez to do stężenia radonu/toronu. Miernik AlphaGUARD DF2000 ma możliwość pracy w trybie dyfuzyjnym w cyklu 10- minutowym lub 60-minutowym, a także w trybie przepływowym, z wykorzystaniem wbudowanej pompki, w cyklach: 1- minutowym lub 10-minutowym. Miernik AlphaGUARD DF2000 posiada wmontowane czujniki temperatury, wilgotności względnej i ciśnienia rejestrujące te parametry równolegle z rejestracją stężenia radonu i toronu. Zakres pomiarowy miernika wynosi od 2 Bq m^{-3} do 2 MBq m^{-3} . Czułość instrumentu dla toronu przy przepływie $2 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$ wynosi $1 \text{ cpm} / 140 \text{ Bq m}^{-3}$, natomiast przy przepływie $1 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$ czułość wynosi $1 \text{ cpm} / 200 \text{ Bq m}^{-3}$ [Alp17].

Radon i toron podczas rozpadu emitują cząstkę alfa o bardzo zbliżonych energiach, w związku z tym przyrząd posiada specjalny tryb pomiarowy („radon/toron”), oparty na różnicy okresów półrozpadu tych dwóch izotopów, umożliwiającą ich rozróżnienie.



Rys. 4.4 Widok układu pomiarowego z wykorzystaniem miernika AlphaGUARD DF 2000.

Stosowany w pracy przepływowy tryb pomiarowy „radon/toron” trwa 10 minut i jest podzielony na trzy sekwencje przedstawione na Rys 4.5.



Rys. 4.5 Sekwencje trybu pomiarowego „radon/toron”.

Pierwsza sekwencja polega na ciągłym pompowaniu powietrza do komory jonizacyjnej (w układzie zamkniętym z badaną próbką) przez 3 minuty i jednoczesnej rejestracji cząstek α pochodzących z rozpadu radonu i toronu. W trybie tym istnieją dwie możliwości ustawienia przepływu $1 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$ i $2 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$. Przy pomiarze bardzo drobnych próbek z wykorzystaniem przepływu $2 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$ dochodziło do uszkodzenia próbki i zanieczyszczenia filtra zabezpieczającego. W związku z tym dla bezpieczeństwa stosowano jedynie przepływ $1 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$.

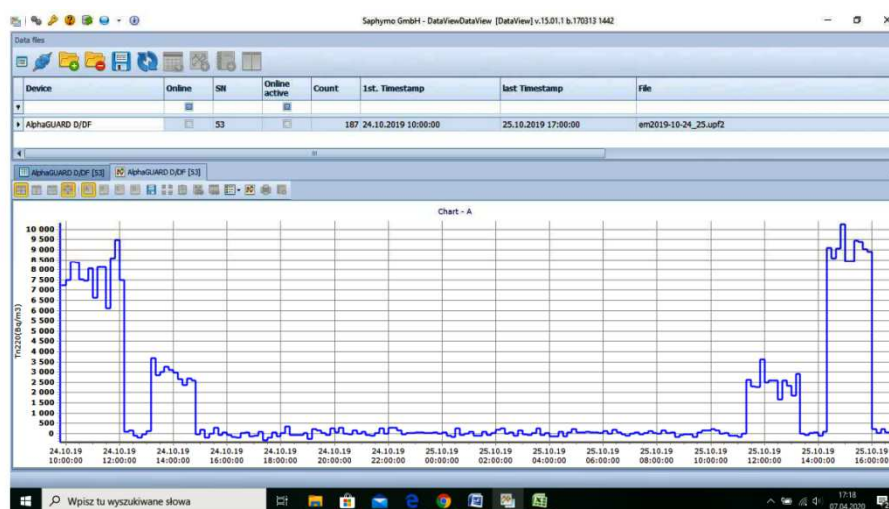
W drugiej sekwencji (4 minuty) po wyłączeniu pompy komora jonizacyjna nie rejestruje cząstek α . W tym czasie dochodzi do całkowitego rozpadu toronu znajdującego się w komorze jonizacyjnej (95%).

W kolejnej sekwencji (3 minuty) rejestrowane są jedynie cząstki α pochodzące z rozpadu radonu. Po trzech sekwencjach otrzymuje się końcowy wynik stężeń toronu i radonu wraz z niepewnościami pomiarowymi. Wartość stężenia toronu uzyskuje się w wyniku odjęcia sumy zliczeń radonu z trzeciej sekwencji od sumy zliczeń radon + toron

z pierwszej sekwencji. Niepewności pomiarowe stężenia toronu i radonu zostały określone z przedziałem ufności 68,3%, tj. 1σ .

Dane uzyskane w trakcie pomiarów miernikiem AlphaGUARD DF 2000 były opracowywane za pomocą dedykowanego oprogramowania DataView v.15.01 (Saphymo) służącego do transmisji danych z miernika i do opracowania wyników.

Przykładowy ekran programu DataView z przebiegiem zmian stężenia toronu dla próbki przedstawiono poniżej (Rys. 4.6).



Rys. 4.6 Przykładowy ekran programu DataView

Eksportowane dane z miernika zawierają następujące informacje: data pomiaru, czas pomiaru (s), stężenie i niepewność pomiaru dla radonu i toronu ($Bq\cdot m^{-3}$), ciśnienie (mbar), wilgotność względną (%), prędkość przepływu powietrza ($dm^3\cdot min^{-1}$), temperaturę ($^{\circ}C$), oraz dodatkowe dane dotyczące kontroli jakości pomiaru (System QA, Data QA, stan baterii (mV), zasilania detektora (V), czujnik zmiany położenia miernika, a także stężenie ^{212}Po ($Bq\cdot m^{-3}$), stężenie radonu (mWL), energię potencjalna alfa ($J\cdot m^{-3}$), EEC ($Bq\cdot m^{-3}$), współczynnik równowagi F, szybkość zliczeń (cpm), moc dawki promieniowania gamma $H^*(10)$ ($nSv\cdot h^{-1}$).

Przykładową tabelę z danymi dostępnymi po pomiarze i wykorzystywanymi do obliczeń przedstawiono poniżej (Rys 4.7).

AlphaGUARD D/DF 53 2019-10-24 10:00:00 - 2019-10-25 17:00:00									
Measurement time	Cycle time	Rn222 (Bq/m3)	Tn220 (Bq/m3)	Tn222 error (Bq/m3)	Air pressure (mbar)	Humidity rel. (%)	Temperature (°C)	Flow rate (l/min)	
2019-10-24 10:40:00	600	3,89	7 531,22	1 947,85	987,8	49,9	23,1	0,98	
2019-10-24 10:50:00	600	5,66	7 456,99	2 017,97	987,8	49,9	23,1	0,98	
2019-10-24 11:00:00	600	4,26	8 058,82	2 144,27	987,7	50,0	23,2	0,98	
2019-10-24 11:10:00	600	65,98	6 626,76	1 747,30	987,7	49,9	23,2	0,98	
2019-10-24 11:20:00	600	91,28	8 117,73	2 204,66	987,7	49,9	23,2	0,98	
2019-10-24 11:30:00	600	5,52	8 147,44	2 281,40	987,6	49,9	23,2	0,98	
2019-10-24 11:40:00	600	6,52	6 118,25	1 738,47	987,5	49,9	23,2	0,98	
2019-10-24 11:50:00	600	2,79	8 577,21	2 267,51	987,5	49,9	23,2	0,98	
2019-10-24 12:00:00	600	5,36	9 468,20	2 519,77	987,5	49,9	23,3	0,98	
2019-10-24 12:10:00	600	47,27	7 500,16	2 088,04	987,4	49,8	23,3	0,98	

Rys. 4.7 Dane eksportowane z miernika AlphaGUARD DF 2000.

4.4.2 Miernik EQF 3220 (Sarad, Niemcy)

Miernik EQF 3220 (Rys. 4.8) służy do pomiarów stężenia radonu oraz toronu, jak również ich produktów rozpadu [Sar12]. Przyrząd pomiarowy składa się z komory głównej oraz demontowanej głowicy do pomiaru produktów rozpadu ^{222}Rn oraz ^{220}Rn pochodzących z próbek aerozolowych. W eksperymencie nie zastosowano tej głowicy, w związku z tym dalszy opis miernika odnosi się tylko do komory głównej, która wyposażona jest w cztery wysokoczułe detektory półprzewodnikowe. Zakres pomiarowy miernika wynosi od 0 do 10 MBq m^{-3} . Czułość instrumentu dla pomiarów toronu wynosi 3 cpm / kBq m^{-3} . Podana czułość instrumentu jest niezbędna do określenia niepewności pomiarowych stężenia toronu. Czas pojedynczego pomiaru wynosił 30 minut. Dla pojedynczych zmierzonych stężeń toronu niepewności określono z przedziałem ufności 68,3% (1σ).

Stężenie toronu określane jest na podstawie spektrometrycznego pomiaru cząstek alfa pochodzących od krótkożyciowych produktów jego rozpadu. Przy pomiarze stężenia toronu brany jest pod uwagę głównie jego pierwszy produkt rozpadu, czyli ^{216}Po , ze względu na jego krótki czas połowicznego rozpadu (150 ms). Po rozpadzie ^{220}Rn jon ^{216}Po w wyniku działania sił pola elektrycznego zostaje zdeponowany na powierzchni detektora. Ze względu na szybki rozpad ^{216}Po , stan równowagi między stężeniem toronu i zebraną aktywnością jonów ^{216}Po na detektorze występuje natychmiast. Pozostałe pochodne rozpadu toronu, czyli ^{212}Pb i ^{212}Bi ze względu na zbyt długi czas połowicznego zaniku (10,6 h i 61 min) nie są wykorzystywane do określenia stężenia toronu. Parametry kalibracyjne miernika EQF 3220 dobrane zostały dla nominalnego przepływu powietrza, który wynosi 1,5 dm $^3\text{min}^{-1}$ [Sar12].



Rys. 4.8 Widok układu pomiarowego z wykorzystaniem miernika EQF 3220.

Do obsługi i komunikacji z miernikiem EQF 3220 służy firmowe oprogramowanie Radon Vision 4 v.10/2009. Program umożliwia ustalenie parametrów pomiaru (czas pomiaru, przepływ, cykle pomiarowe, a także wizualizację i eksport zebranych danych. Przykładowy widok okna programu (z przebiegiem zmian rejestrowanego stężenia) przedstawiono poniżej (Rys 4.9).



Rys. 4.9 Okno programu Radon Vision 4 v.10/2009 [Sar12].

Oprogramowanie umożliwia eksport danych zawierających m.in.: data pomiaru, stężenie toronu (Bq m^{-3}), prędkość przepływu powietrza ($\text{dm}^3 \text{min}^{-1}$), ciśnienie (mbar), temperatura ($^{\circ}\text{C}$), wilgotność względna (%), stężenie radonu w 2 trybach pomiarowych (Bq m^{-3}). Miernik rejestruje także stężenie pochodnych radonu i toronu we frakcjach wolnej i związanej.

Przykładową tabelę z danymi dostępnymi po pomiarze miernikiem EQF 3220 i wykorzystywanymi do obliczeń przedstawiono poniżej (Rys 4.10).

	A	B	C	D	E	F	G	H	I
2	Time stamp	Thoron	Flow rate	bar. Pressure	Temperature	rel. Humidity	Rn (fast)	Rn (slow)	
3		Bq/m3	l/min	mbar	deg.C	%rH	Bq/m3	Bq/m3	
4	10/29/2019 12:27:06 AM	2909,78	1,50	992,34	27,55	23,06	<430,19	<208,33	
5	10/29/2019 12:57:06 AM	3426,31	1,50	992,39	27,48	22,96	<444,07	<215,05	
6	10/29/2019 1:27:06 AM	3546,83	1,50	992,57	27,37	22,67	<416,31	<201,61	
7	10/29/2019 1:57:06 AM	3409,09	1,50	992,73	27,26	22,44	<416,31	<201,61	
8	10/29/2019 2:27:06 AM	3529,61	1,50	992,80	27,16	22,28	<416,31	<201,61	
9	10/29/2019 2:57:06 AM	3495,18	1,50	992,27	27,05	22,34	527,34	255,37	
10	10/29/2019 3:27:06 AM	3598,48	1,50	992,56	27,14	22,70	<402,44	<194,89	
11	10/29/2019 3:57:06 AM	3323,00	1,50	992,56	26,86	22,82	<430,19	<215,05	
12	10/29/2019 4:27:06 AM	3271,35	1,50	992,56	26,80	22,83	<416,31	<201,61	
13	10/29/2019 4:57:06 AM	3168,04	1,50	992,56	26,76	23,60	<416,31	<201,61	
14	10/29/2019 5:27:06 AM	3374,66	1,50	992,55	28,21	23,07	<416,31	<208,33	
15	10/29/2019 5:57:06 AM	3925,62	1,50	992,54	27,64	22,93	<402,44	<201,61	
16	10/29/2019 6:27:06 AM	3357,44	1,50	991,94	26,89	23,46	<402,44	<194,89	
17	10/29/2019 6:57:06 AM	3236,91	1,50	991,72	28,37	24,48	<430,19	<208,33	
18	10/29/2019 7:27:06 AM	3426,31	1,50	991,35	27,46	24,73	<416,31	<201,61	
19	10/29/2019 7:57:06 AM	3546,83	1,50	992,28	26,55	23,84	<402,44	<194,89	

Rys. 4.10 Dane eksportowane z miernika EQF 3220.

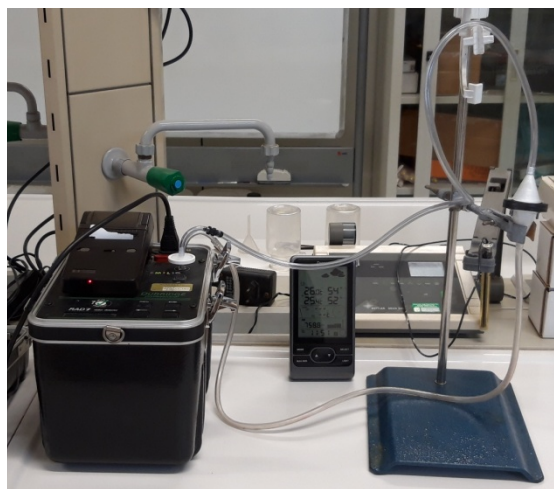
4.4.3 Miernik RAD7

Miernik RAD7 (Durridge Company, Inc., USA) (Rys 4.11) działa na zasadzie elektrostatycznego zbierania zjonizowanych atomów pierwszej pochodnej radonu/toronu ^{218}Po / ^{216}Po na powierzchni półprzewodnikowego detektora krzemowego typu PIPS zlokalizowanego w komorze pomiarowej pracującej pod wysokim napięciem (2200 V). Detektor półprzewodnikowy konwertuje energię cząstek α na impulsy elektryczne o amplitudzie proporcjonalnej do energii cząstki α . Liczba tych impulsów jest proporcjonalna do liczby cząstek α i w konsekwencji do stężenia ^{218}Po / ^{216}Po . Z uwagi na wartości półokresów rozpadu tych izotopów (3,05 min / 0,15 s) w porównaniu z macierzystymi izotopami radonu/toronu (3,82 dni / 55,6 s), są one z nimi praktycznie zawsze w pełnej równowadze promieniotwórczej.

Miernik RAD7 posiada wbudowaną pompkę zapewniającą przepływ do $1 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$ przez półsferyczną komorę pomiarową o objętości $0,750 \text{ dm}^3$ w której umieszczony jest detektor półprzewodnikowy. Zakres pomiarowy miernika dla radonu wynosi od 4 Bqm^{-3} do $750\,000 \text{ Bqm}^{-3}$. Czułość instrumentu w trybie SNIFF wynosi $0,0067 \text{ cpm} / \text{Bqm}^{-3}$ [Rad19].

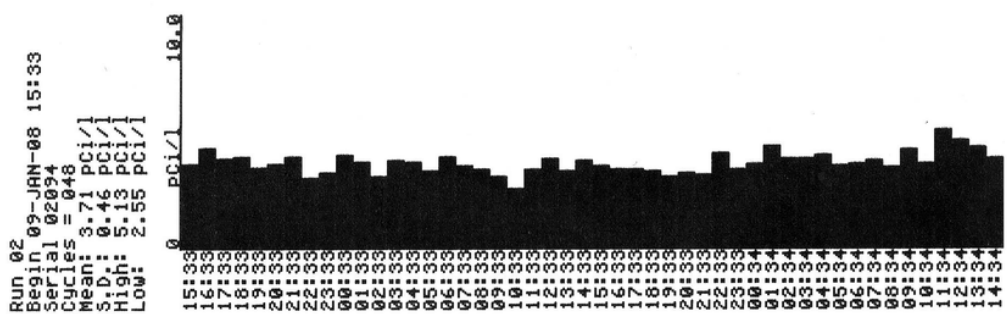
W przeprowadzonych pomiarach miernik RAD7 pracował w trybie pomiarowym SNIFF radon/toron z interwałem 3-minutowym. Przed wykonaniem rzeczywistego pomiaru próbki zmniejszono wilgotność w układzie pomiarowym za pomocą osuszacza, który następnie był usuwany z układu pomiarowego.

Osuszacz (CaSO₄) pochłania wilgość, a filtr wlotowy (wielkość porów 1 μm) blokuje przedostawanie się pyłu i pochodnych rozpadu radonu/toronu do miernika. Miernik rejestruje wewnętrzną wilgotność oraz temperaturę powietrza. [Rad19].



Rys. 4.11 Widok układu pomiarowego z wykorzystaniem miernika RAD7.

Przykładowy wydruk wyników z miernika przedstawiono poniżej (Rys 4.12).



Rys. 4.12 Przykładowy wydruk z pomiarów miernikiem RAD7 [Rad19].

Wydruk zawiera datę i czas pomiaru, średnie rejestrowane stężenia, wykres słupkowy pojedynczych pomiarów. Poniżej przedstawiono przykładową tabelę z wynikami z miernika RAD7 wykorzystywaną do obliczeń (Rys 4.13) .

	A	B	C	D	E	F	G	H	I
	Tempo	220Rn	T (°C)	RH (%)	Kg aria/m3	Kg H2O/kg aria secca	gH2O in RAD7	220Rn corr.	220Rn corr. perdita thoron
40									
41	0								
42	3	10200	24,3	15	1,1878	0,00281	0,00256	11486	
43	6	11900	24,3	16	1,1878	0,00300	0,00274	13577	
44	9	11700	24	17	1,189	0,00313	0,00286	13477	14052
45	12	14200	24,3	18	1,1878	0,00338	0,00308	16642	17353
46	15	10800	24,3	19	1,1878	0,00356	0,00325	12832	13380
47	18	11110	24,3	19	1,1878	0,00356	0,00325	13201	13764
48	21	10700	24,3	20	1,1878	0,00375	0,00342	12891	13442
49	24	11400	24,3	20	1,1878	0,00375	0,00342	13735	14321
50	27	13000	24,6	21	1,1866	0,00401	0,00366	15966	16648
51	30	12900	24,6	21	1,1866	0,00401	0,00366	15843	16520
52	33	11800	24,6	21	1,1866	0,00401	0,00366	14492	15111
53	36	11100	24,6	22	1,1866	0,00421	0,00383	13834	14424
54	39	10800	24,6	13	1,1866	0,00248	0,00226	11886	
55	42	12300	24,6	14	1,1866	0,00267	0,00243	13714	
56	45	11900	24,6	15	1,1866	0,00286	0,00261	13445	14019
57	48	11700	24,6	16	1,1866	0,00305	0,00278	13398	13970
58	51	12100	24,6	17	1,1866	0,00324	0,00296	14045	14645

Rys. 4.13 Dane eksportowane z miernika RAD7.

4.5 Wyznaczenie współczynników korekcji stężenia toronu (^{220}Rn)

Mierniki stężeń toronu wykorzystywane w pracy mają różne objętości i prędkości przepływu, co w przypadku pomiarów stężenia toronu jest bardzo istotne. Duży przepływ przez małą objętość układu pomiarowego powoduje, że część atomów toronu nie zdąży się rozpaść przed opuszczeniem komory pomiarowej, a więc nie zostanie zarejestrowana przez detektor. Atomy te ponownie przechodzą przez próbkę i powtórnie trafiają do komory pomiarowej, gdzie są rejestrowane wraz z nowymi atomami toronu, które wydostały się z badanej próbki, co powoduje zawyżenie zarejestrowanego stężenia toronu. W związku z tym, niezbędne było wprowadzenie współczynnika korekcji w opisanego wzorem [Kan13]:

$$W = \frac{1}{\left(1 + \frac{\lambda V}{q}\right)} \quad (4.7)$$

gdzie:

V - objętość układu pomiarowego [m^3],

q - prędkość przepływu [$\text{m}^3 \text{s}^{-1}$],

λ - stała rozpadu ^{220}Rn [s^{-1}].

Zastosowanie współczynnika korekcji w umożliwia porównanie wyników współczynników emanacji toronu wyznaczonych na podstawie stężeń toronu rejestrowanych za pomocą różnych mierników.

Obliczone wartości współczynników korekcji w dla układów pomiarowych z różnymi miernikami toronu i z różnymi uchwytami na próbki zostały przedstawione w Tabeli 4.2.

Tabela 4.2 Przybliżone wartości współczynników korekcji dla mierników wykorzystanych w eksperymencie.

	AlphaGUARD DF2000	EQF 3220	RAD7
Objętość układu pomiarowego V [m ³] (duży uchwyt)	$8,75 \cdot 10^{-4} \pm 8,7 \cdot 10^{-6}$	$3,75 \cdot 10^{-4} \pm 3,7 \cdot 10^{-6}$	$9,1 \cdot 10^{-4} \pm 9 \cdot 10^{-6}$
Objętość układu pomiarowego V [m ³] (mały uchwyt)	$7,797 \cdot 10^{-4} \pm 7,8 \cdot 10^{-6}$	$2,797 \cdot 10^{-4} \pm 2,8 \cdot 10^{-6}$	$8,4 \cdot 10^{-4} \pm 8 \cdot 10^{-6}$
Prędkość przepływu q [m ³ s ⁻¹]	$1,67 \cdot 10^{-5} \pm 2,83 \cdot 10^{-7}$	$2,5 \cdot 10^{-5} \pm 4,31 \cdot 10^{-8}$	$1,33 \cdot 10^{-5} \pm 1,33 \cdot 10^{-7}$
Współczynnik korekcji w (mały uchwyt)	0,63	0,88	0,56
Współczynnik korekcji w (duży uchwyt)	0,6	0,84	0,54

Dla objętości układu pomiarowego założono niepewność jej określenia na poziomie 1%. Producenci zastosowanych mierników nie podają niepewności prędkości przepływu wbudowanych pomp. W związku z tym niepewność prędkości przepływu dla miernika AlphaGUARD DF 2000 została określona jako odchylenie standardowe wartości prędkości przepływu uzyskanych przy użyciu referencyjnego cyfrowego miernika przepływu Gilibrator 2 (Gilian) podłączonego do układu pomiarowego. Dla miernika EQF 3220 jako niepewność pomiarową prędkości przepływu przyjęto odchylenie standardowe z wartości prędkości przepływu dla cyklu pomiarowego. Dla miernika RAD7 założono niepewność prędkości przepływu równą 1%.

Ze względu na duże niepewności pomiarowe stężenia toronu każda próbka badanego materiału mierzona była wielokrotnie i na podstawie otrzymanych wyników wyliczono średnią arytmetyczną stężenia toronu C^* dla danej masy próbki. Wartość ta była korygowana z wykorzystaniem odpowiedniego współczynnika korekcji w :

$$C = w \cdot C^* \quad (4.8)$$

Wartości stężeń toronu C były stosowane w dalszych etapach określania współczynnika emanacji toronu z danego materiału.

4.6 Niepewności pomiarowe stężenia toronu

Każdy z mierników używanych do pomiarów stężenia toronu miał inny algorytm określania niepewności pomiarowej tej wielkości. W przypadku miernika AlphaGUARD DF

2000 wartość stężenia i jego niepewność odczytywane są w programie do analizy wyników Data View z przedziałem ufności 68%, poziom rozszerzenia $k=1$.

W przypadku miernika EQF 3220 niepewności pomiarowe dla pojedynczego pomiaru były obliczane z wykorzystaniem wzoru podanego przez producenta:

$$u(C_i^*) = C_i^* \cdot k \cdot \frac{\sqrt{\frac{C_i^*}{1000 \cdot t \cdot D}}}{\frac{C_i^*}{1000 \cdot t \cdot D}} \quad (4.9)$$

gdzie:

C_i^* - zarejestrowane stężenie toronu dla pojedynczego pomiaru [Bqm^{-3}],

k - poziom rozszerzenia $k=1$,

t - przedział czasowy pomiaru [min],

D - czułość miernika podana przez producenta $D=3$ [$\text{cpm kBq}^{-1} \text{m}^{-3}$].

Dla obydwóch mierników, tj. AlphaGUARD DF 2000 i EQF 3220 rozszerzone niepewności średniego stężenia toronu obliczono stosując metodę różniczki zupełnej:

$$u(C) = w \cdot k \cdot \sqrt{\frac{u(C_1^*)^2 + u(C_2^*)^2 + u(C_3^*)^2 + \dots + u(C_n^*)^2}{n^2}} \quad (4.10)$$

gdzie:

$u(C_1^*)$, $u(C_2^*)$, $u(C_3^*)$, ..., $u(C_n^*)$ - niepewności pojedynczych pomiarów

n - liczba pojedynczych pomiarów brana pod uwagę przy obliczaniu średniego stężenia toronu

k - poziom rozszerzenia $k=2$,

w - współczynnik korekcji

Niepewności średniego stężenia toronu dla danej masy materiału zostały obliczone jako odchylenie standardowe. Stężeniu toronu określono uwzględniając poprawkę na temperaturę oraz wilgotność powietrza w układzie pomiarowym [Rad19].

Niepewności pomiarowe związane z masą materiału nie zostały uwzględnione z uwagi na ich bardzo małe wartości, poniżej 0,1%.

5. Analiza wyników

Pomiary wykonane przy użyciu mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220 miały miejsce w Laboratorium Ekspertyz Radiometrycznych IFJ PAN. Pomiary za pomocą miernika RAD7 autorka wykonała częściowo w Uniwersytecie Roma Tre w Rzymie. Zastosowano te same elementy układu pomiarowego (filtry i uchwyty), jakie były używane do tych pomiarów w LER IFJ PAN. Pomiary wykonane w laboratorium w Rzymie zostały przeprowadzone zgodnie z wymogami stosowanej tam techniki pomiarowej.

5.1 Wpływ elementów układu pomiarowego na wyznaczanie wartości współczynnika emanacji

Ze względu na krótki czas połowicznego rozpadu toronu elementy układu pomiarowego i ich ułożenie mogą mieć wpływ na zmierzone stężenia toronu. W związku z tym sprawdzono wpływ kilku elementów na otrzymane wyniki.

5.1.1 Filtr utrzymujący próbkę i filtr zabezpieczający

Jednym z ważnych elementów układu pomiarowego są filtry. W celu sprawdzenia, czy zastosowana metoda pomiarowa jest uniwersalna należy sprawdzić, czy wybór rodzaju filtrów, między którymi znajduje się próbka ma wpływ na otrzymane wyniki. Przeprowadzono pomiary z użyciem pięciu różnych filtrów. Ich parametry zostały przedstawione w Tabeli 5.1.

Tabela 5.1 Parametry zastosowanych filtrów oraz współczynniki emanacji toronu f próbka PC1.

Nr	Rodzaj filtra	Materiał	Rozmiar porów [μm]	Średnica filtra [mm]	Grubość filtra [mm]	f [-]
1	Włókno szklane 2,7 μm	Bezspoinowe szkło borokrzemianowe	2.7	25	0.5	0,16 \pm 0,01
2	Włókno szklane 0,7 μm	Włókno borokrzemianowe	0.7	25-30	0.42	0,13 \pm 0,01
3	Włókno szklane 0,3 μm	Bezspoinowa szklana mikrofibra	0.3	25	0.35	0,13 \pm 0,01
4	Filtr membranowy 0,7 μm	Miks estrów celulozowych	0.8	25	0.15	0,12 \pm 0,02
5	PCTE Filtr membranowy	Membrana z poliwęglanu (Track Etched Filter)	10	25	0.01	0,16 \pm 0,01

Pierwsze trzy filtry przedstawione w Tabeli 5.1 są wykonane z włókna szklanego. Jest to najpopularniejszy materiał wykorzystywany do filtrowania powietrza. Filtry z włókna

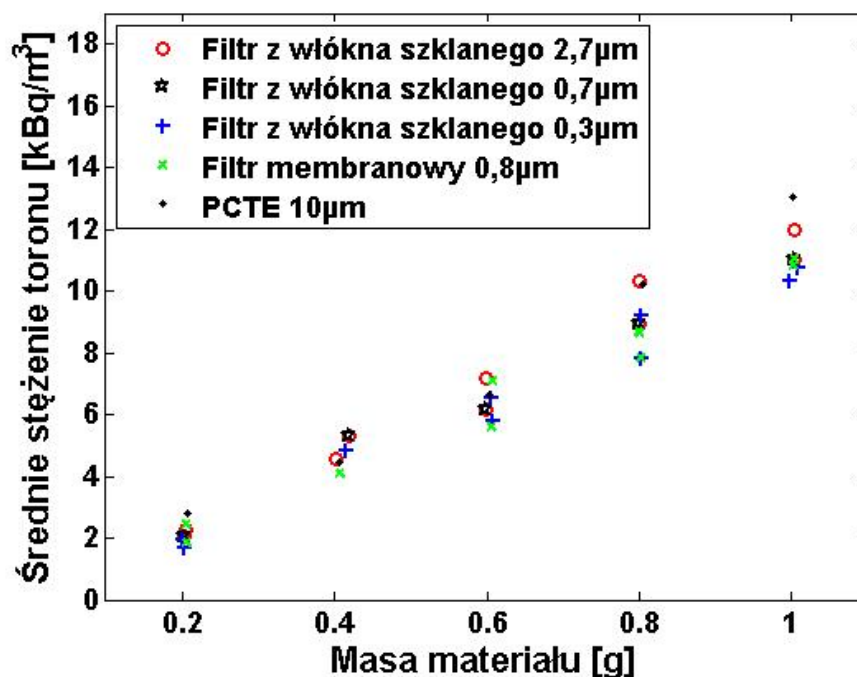
szklanego są zwykle stosowane do usuwania osadów i gruboziarnistych materiałów. Można je stosować przy dużych przepływach, powyżej $2 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$. Wielkość ich porów jest nominalna. Nominalne wielkości porów są podawane, jako ogólny wskaźnik skuteczności filtracji. Cząstki o rozmiarach powyżej nominalnej wielkości porów nie będą przechodzić przez filtr. W przypadku zastosowanych filtrów z włókna szklanego nominalna wielkość porów wynosi 2,7; 0,7 i 0,3 μm .

Filtr numer 2 z Tabeli 5.1 był wycinany ręcznie w związku z tym jego średnica wynosiła od 25 do 30 mm. Filtr ten stosowano również do próbek o większej masie powyżej 2 gramów. Pozostałe filtry zostały przycięte fabrycznie.

W przypadku pomiarów stężenia toronu nie tylko wielkość porów filtra może mieć istotne znaczenie, ale również jego grubość.

Pierwsze cztery filtry z Tabeli 5.1 są hydrofilowe. Wraz z przefiltrowywanym powietrzem wchłaniają również wilgoć z materiału. Mikropory filtra są blokowane przez wodę, co uniemożliwia szybki przepływ powietrza i innych gazów. Ostatni filtr w Tabeli 5.1 jest hydrofobowy. Jest to jedyny filtr, który nie pochłania wilgoci i nadaje się do badania wpływu wilgotności na współczynnik emanacji toronu.

Aby porównać wpływ wybranych filtrów na zmierzoną wartość stężenia toronu, dla każdego rodzaju filtra przygotowano próbki o masach od 0,2 g do 1 g. Materiałem wykorzystanym w tych pomiarach był piasek monacytowy (PC1), a miernikiem stężenia toronu był AlphaGUARD DF2000. Wyniki pomiarów stężenia toronu w funkcji masy materiału dla różnych filtrów przedstawia Rys. 5.1.



Rys. 5.1 Średnie stężenie toronu w funkcji masy piasku monacytowego PC1. Pomiary wykonane miernikiem AlphaGUARD DF2000.

Na wykresie, nie zaznaczono niepewności pomiarowych stężenia toronu w celu lepszej czytelności rysunku. Zawierały się one w granicach od $0,56 \text{ kBq m}^{-3}$ do $2,2 \text{ kBq m}^{-3}$. Jak można zauważyć otrzymane stężenia toronu dla poszczególnych filtrów różnią się od $0,2 \text{ kBq m}^{-3}$ do $3,5 \text{ kBq m}^{-3}$. Obliczone współczynniki emanacji toronu dla poszczególnych filtrów zostały przedstawione w Tabeli 5.1. Maksymalna różnica w wartościach współczynników emanacji toronu wynosi 0,04 (dla filtrów nr 1, 5 i filtra nr 4). W uniwersalnej technice rodzaj filtra nie powinien wpływać na wartość współczynnika emanacji toronu. W związku z tym sprawdzono czy istnieje liniowa zależność między wzrostem wielkości porów filtra a wzrostem wyznaczonej wartości współczynnika emanacji toronu. W tym celu obliczono współczynnik korelacji liniowej Pearsona. Współczynnik ten wynosił 0,747, co potwierdza występowanie zależności, jednak nie określa to w jakim stopniu zależność ta jest istotna statystycznie. Wykonano, więc test istotności współczynnika korelacji przy poziomie istotności 0,05. Obliczona statystyka testowa nie należała do obszaru krytycznego, co oznacza, że korelacja pomiędzy wielkością porów filtra, a wartością współczynnika emanacji toronu, nie jest istotna. Wynika z tego, iż wielkość porów filtra nie ma znaczenia przy pomiarach współczynnika emanacji toronu. W związku z tym w dalszej części badań wykorzystano tylko filtry z włókna szklanego $0,7 \mu\text{m}$. Ze względu na ich hydrofilowość, próbki były zawsze całkowicie wysuszone przed pomiarem.

Wykorzystując siatkę żarową do lampy gazowej nasyconą solami toru (Rys 5.2), sprawdzono w jakim stopniu filtr zabezpieczający wpływa na zmierzona wartość stężenia toronu.



Rys. 5.2 Siatka żarowa do lampy gazowej.

Do układu pomiarowego podłączono mały uchwyt, w którym umieszczono siatkę żarową, następnie wykonano pomiary stężenia toronu z udziałem filtra zabezpieczającego oraz bez niego miernikami EQF 3220 i AlphaGUARD DF 2000. Średnie stężenie toronu zmierzone w obu przypadkach przedstawia Tabela 5.2.

Tabela 5.2 Średnie stężenie toronu z siatki żarowej zmierzone przy pomocy mierników Alphaguard DF 2000 oraz EQF 3220 z filtrem i bez filtra zabezpieczającego.

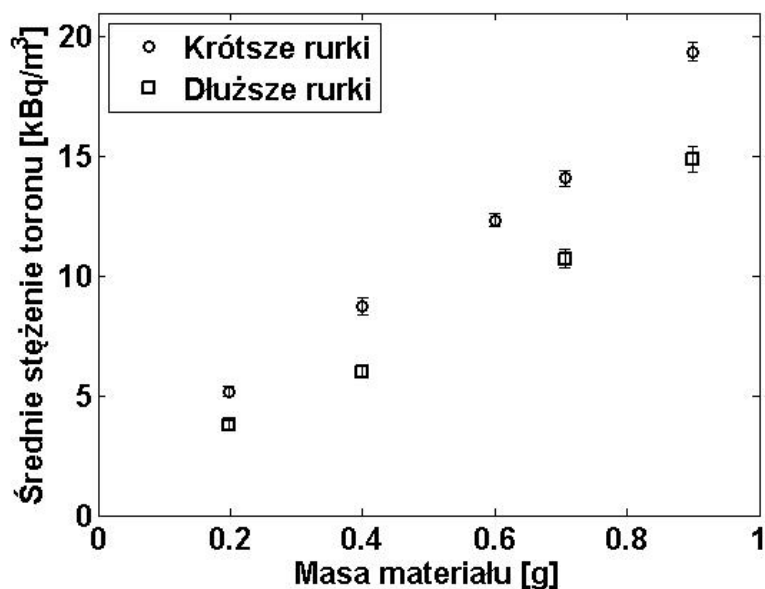
	AlphaGUARD DF 2000	EQF 3220
Stężenie toronu bez filtra zabezpieczającego [Bqm^{-3}]	55386 ± 2148	159335 ± 401
Stężenie toronu z filtrem zabezpieczającym [Bqm^{-3}]	50688 ± 3282	154031 ± 1068

Różnica w średnich stężeniach toronu w układzie bez filtra i z filtrem zabezpieczającym dla obu mierników wynosi około 5000 Bqm^{-3} . Różnica ta wynika ze zmiany objętości układu przez usunięcie z niego filtra zabezpieczającego, którego objętość wynosi $2 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3$. Ze względu na krótki czas rozpadu toronu jakiegokolwiek zmiany w objętości układu, nawet tak małe, wpływają na wartość stężenia toronu. W dalszych badaniach używano we wszystkich układach pomiarowych filtra zabezpieczającego, którego objętość uwzględniano w obliczeniach współczynnika emanacji toronu.

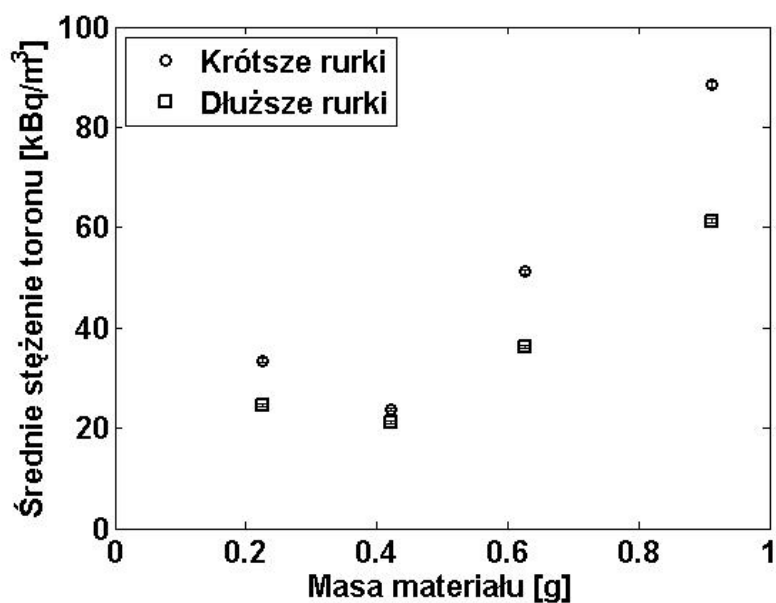
5.1.2 Długość rurek połączeniowych

Wpływ różnych długości rurek połączeniowych na zmierzone średnie stężenie toronu badano dla próbek: PC1, AP1 i KP1. Łączna długość krótszych rurek wynosiła 0,5 m, łączna

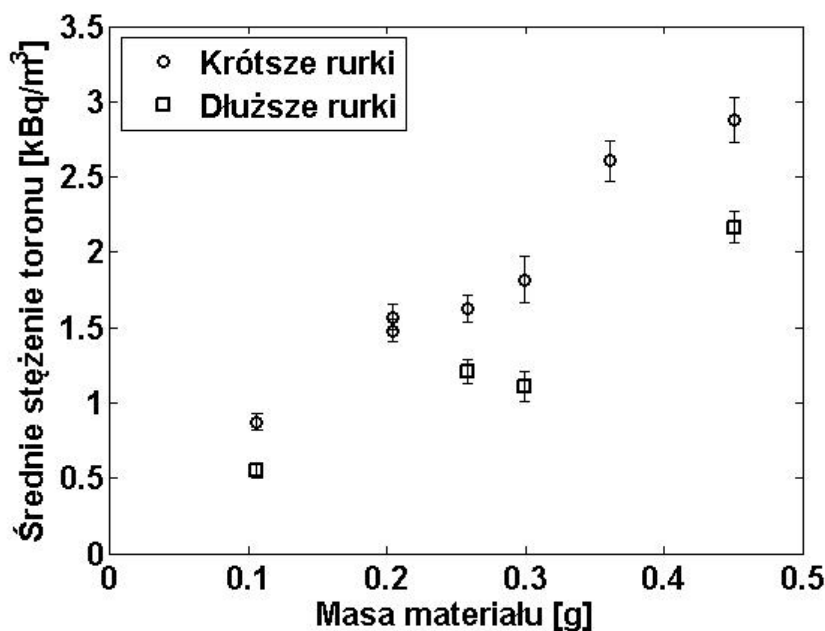
długość dłuższych rurek wynosiła 3,26 m. Pomiary wykonano za pomocą miernika EQF 3220. Wyniki przedstawiono na Rys. 5.3 - Rys. 5.5. Dla wszystkich badanych materiałów zaobserwowano znaczne różnice między średnimi stężeniami toronu zmierzonymi w układzie dla krótszych rurek, a tymi dla dłuższych. Różnice te wynosiły od $0,3 \text{ kBq m}^{-3}$ do 27 kBq m^{-3} . Niepewności pomiarowe średniego stężenia toronu zawierały się w granicach od 2% do 9%.



Rys. 5.3 Średnie stężenie toronu w funkcji masy piasku monacytowego (PC1) dla różnych długości rurek (miernik EQF 3220).



Rys. 5.4 Średnie stężenie toronu w funkcji masy azotanu toru (AP1) dla różnych długości rurek (miernik EQF 3220).



Rys. 5.5 Średnie stężenie toronu w funkcji masy źródła toru (KP1) dla różnych długości rurek (miernik EQF 3220).

W Tabeli 5.3 przedstawiono wartości współczynnika emanacji toronu wyznaczone dla próbek PC1, AP1 i KP1 z użyciem układów pomiarowych z dłuższymi i krótszymi rurekami. Dla dłuższych rurek, ze względu na zmianę objętości układu pomiarowego, obliczono współczynnik korekcji, który wyniósł w przybliżeniu $w = 0,848$. Współczynnik ten dla krótszych rurek wynosił w przybliżeniu $w = 0,877$. Różnice w wartościach współczynników emanacji toronu w zależności od długości rurek wynosiły odpowiednio: 0,0021 (PC1), 0,001 (KP1) i 0,004 (AP1). Pozwala to stwierdzić, iż długość rurek pomiarowych nie ma wielkiego znaczenia przy określeniu współczynnika emanacji toronu. W dalszych badaniach stosowano układy pomiarowe z krótszymi rurekami.

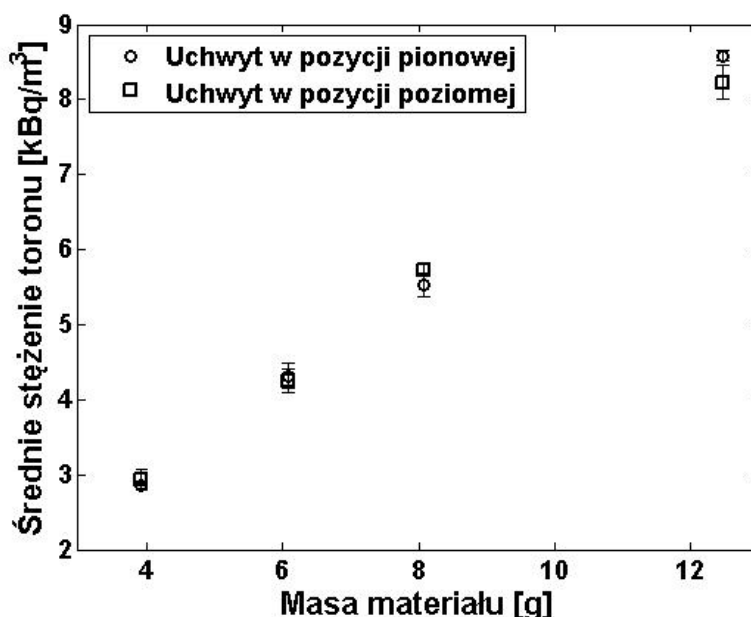
Tabela 5.3 Objętość układu pomiarowego V oraz współczynnik emanacji toronu f dla materiałów PC1, KP1 i AP1 obliczony przy wykorzystaniu miernika EQF 3220 dla różnych długości rurek.

Kod próbki	Dłuższe rurki	Krótsze rurki
	$f [-]$	$f [-]$
PC1	$0,0896 \pm 8 \cdot 10^{-3}$	$0,0875 \pm 6 \cdot 10^{-3}$
KP1	$0,112 \pm 0,02$	$0,113 \pm 0,01$
AP1	$0,017 \pm 5 \cdot 10^{-3}$	$0,021 \pm 7 \cdot 10^{-3}$
$V [m^3]$	$3,6 \cdot 10^{-4} \pm 3,6 \cdot 10^{-6}$	$2,8 \cdot 10^{-4} \pm 2,8 \cdot 10^{-6}$

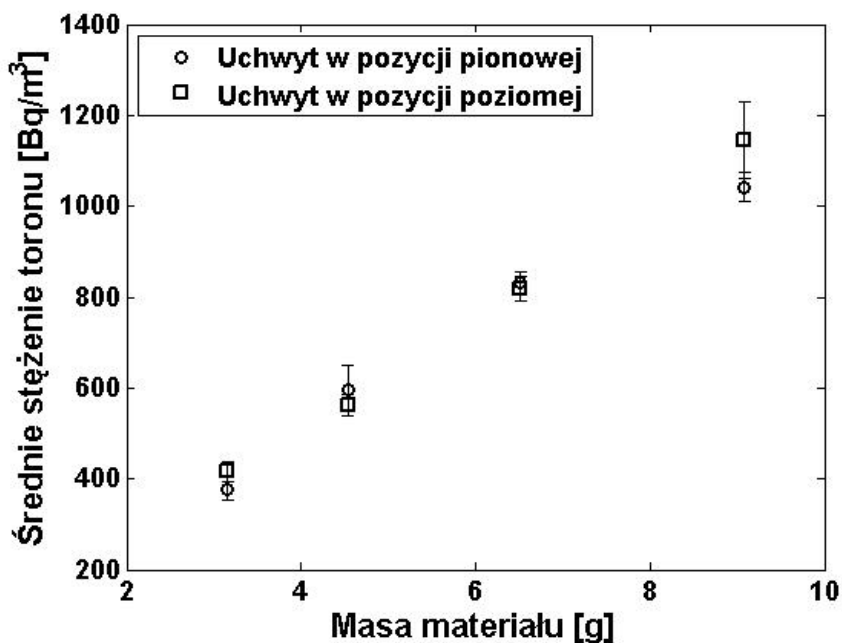
5.1.3 Orientacja próbki w układzie pomiarowym

Przy pomiarach toronu zastosowano krótkie rurki do połączenia elementów układu pomiarowego. Konsekwencją tego było ułożenie uchwytu na próbki w pozycji horyzontalnej, czyli próbka była ułożona pionowo. Materiał próbki znajdujący się pomiędzy filtrami mógł zatem rozłożyć się nierównomiernie w całej objętości. Dodatkowo nie można określić, czy we wszystkich miejscach próbki przepływ powietrza był jednorodny. W sytuacji, gdy przepływ nie jest jednorodny, rozłożenie materiału w próbce wpływa na wartość zmierzonego stężenia toronu. tym zmierzono stężenie toronu przy ułożeniu uchwytu na próbki w pozycji poziomej i pionowej dla dokładnie tych samych mas materiału. Pomiary wykonano dla materiałów GI1, GJ1 i PC1.

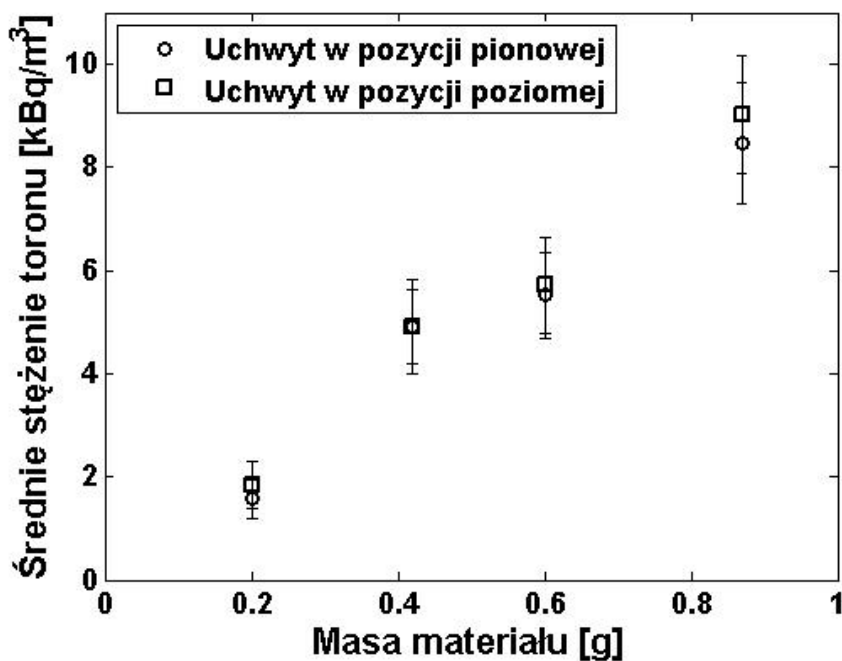
Średnie stężenie toronu w funkcji masy dla materiału GI1 przedstawia Rys. 5.6, a dla materiału GJ1 Rys. 5.7. Pomiary te zostały wykonane za pomocą miernika EQF 3220. W przypadku tych dwóch materiałów różnice w stężeniu toronu dla tej samej mierzonej próbki w zależności od pozycji uchwytu wynosiły od 13 do 350 Bqm⁻³. Różnice te mieszczą się w przedziale niepewności pomiarowych. Dla materiału PC1 pomiary wykonano za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000 (Rys. 5.8). Różnice w stężeniach toronu dla tych samych mas materiału w zależności od położenia uchwytu wynoszą od 7 do 1570 Bqm⁻³. Jak widać największe różnice w stężeniu toronu dla różnych położen uchwytu na próbkę zaobserwowano dla próbek o największej masie.



Rys. 5.6 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału GI1 dla uchwytu w pozycji pionowej i poziomej zmierzone za pomocą miernika EQF 3220.



Rys. 5.7 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału GJ1 dla uchwytu w pozycji pionowej i poziomej zmierzone za pomocą miernika EQF 3220.



Rys. 5.8 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PC1 dla uchwytu w pozycji pionowej i poziomej zmierzone za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000.

W Tabeli 5.4 przedstawiono współczynniki emanacji toronu obliczone dla materiałów GJ1, GJ1 i PC1 w zależności od położenia uchwytu. Wartości współczynnika emanacji toronu są zbliżone, maksymalna różnica wynosi 0,02 i zawiera się w granicach niepewności. Oznacza to, iż położenie uchwytu nie ma wpływu na otrzymane wyniki.

Tabela 5.4 Współczynnik emanacji toronu f w zależności od położenia uchwytu dla materiałów GI1, GJ1 obliczony na podstawie wyników otrzymanych z miernika EQF 3220 oraz dla materiału PC1 obliczony na podstawie wyników otrzymanych z miernika AlphaGUARD DF 2000.

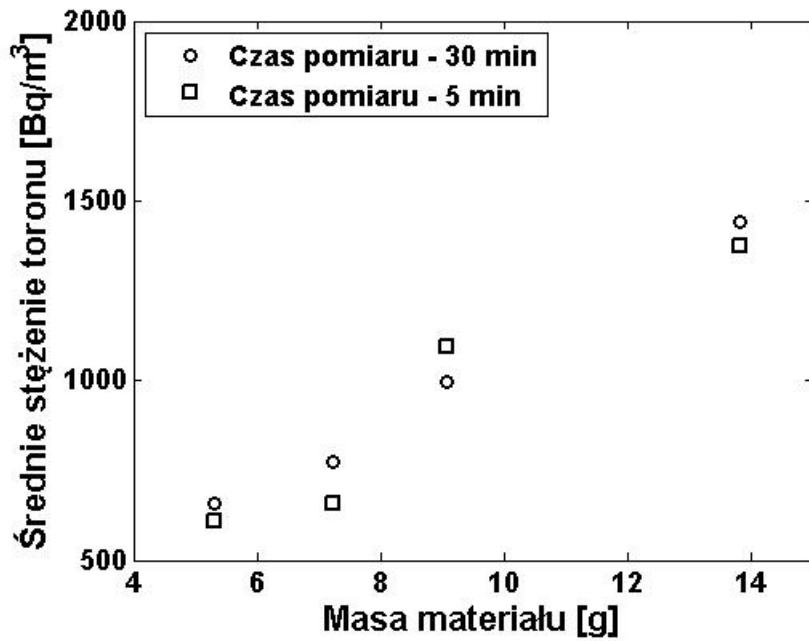
Kod próbki	Współczynnik emanacji toronu f [-] dla uchwytu w pozycji poziomej	Współczynnik emanacji toronu f [-] dla uchwytu w pozycji pionowej
GI1	$0,032 \pm 6 \cdot 10^{-4}$	$0,03 \pm 1 \cdot 10^{-3}$
GJ1	$0,17 \pm 0,02$	$0,19 \pm 0,01$
PC1	$0,12 \pm 0,01$	$0,12 \pm 0,02$

5.1.4 Czas i cykle pomiarowe miernika EQF 3220.

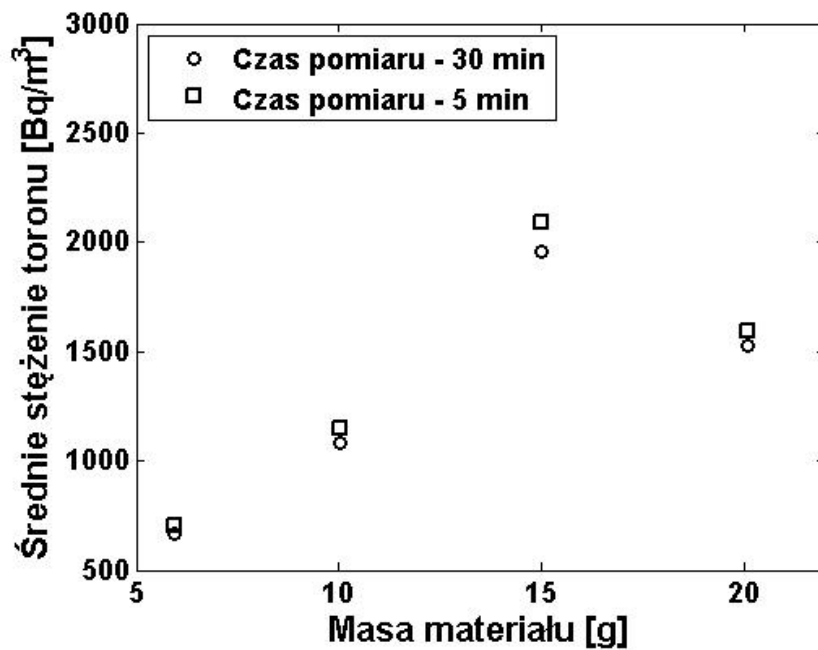
Stosowane czasy jednostkowych pomiarów dla stosowanych w układzie mierników wynosiły: dla AlphaGUARD DF 2000 – 10 min, RAD7 – 3 min i EQF – 30 min. Czas pracy pompki w trakcie pojedynczego pomiaru wynosił odpowiednio: 3 min, 3 min i 30 min.

Cykl pomiarowy dla miernika AlphaGUARD DF 2000 wynosił od 60 min do kilku godzin, dla miernika RAD7 czas ten wynosił 72 min, a dla miernika EQF 3220 od 180 min do kilkunastu godzin.

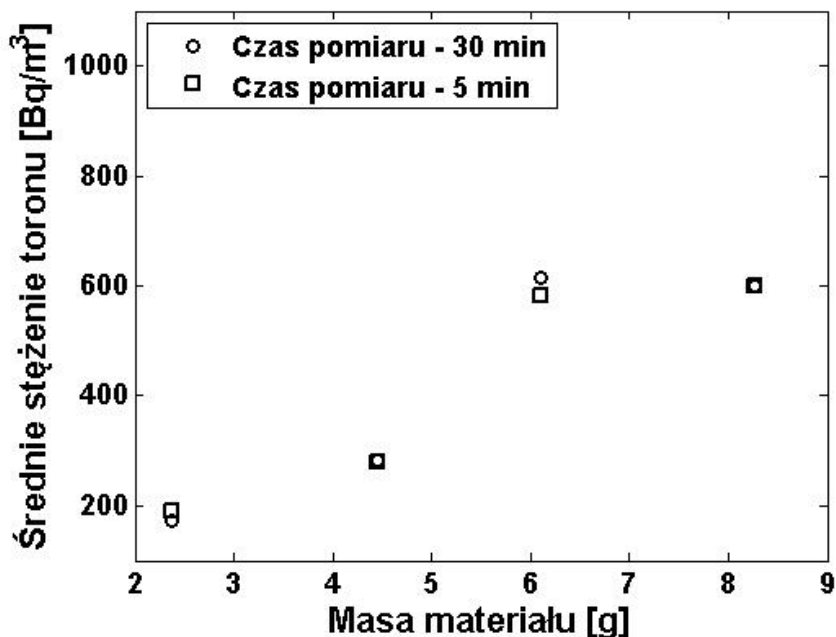
Zaobserwowano, że wyniki stężeń toronu otrzymane z wykorzystaniem mierników AlphaGUARD DF 2000 i RAD7 są dla tej samej próbki porównywalne. Czas pracy pompki w czasie pojedynczego pomiaru w tych miernikach jest taki sam. Wyniki otrzymane miernikiem EQF 3220 były kilkakrotnie większe. Praca pompki trwa przez cały czas pomiaru. W związku z tym skrócono czas pojedynczego pomiaru, jak również czas pompowania, do 5 minut w celu sprawdzenia czy czas pojedynczego pomiaru (w tym przypadku też czas pracy pompki) ma wpływ na mierzone stężenie toronu. Wyniki przedstawione są na rysunkach 5.9 – 5.12.



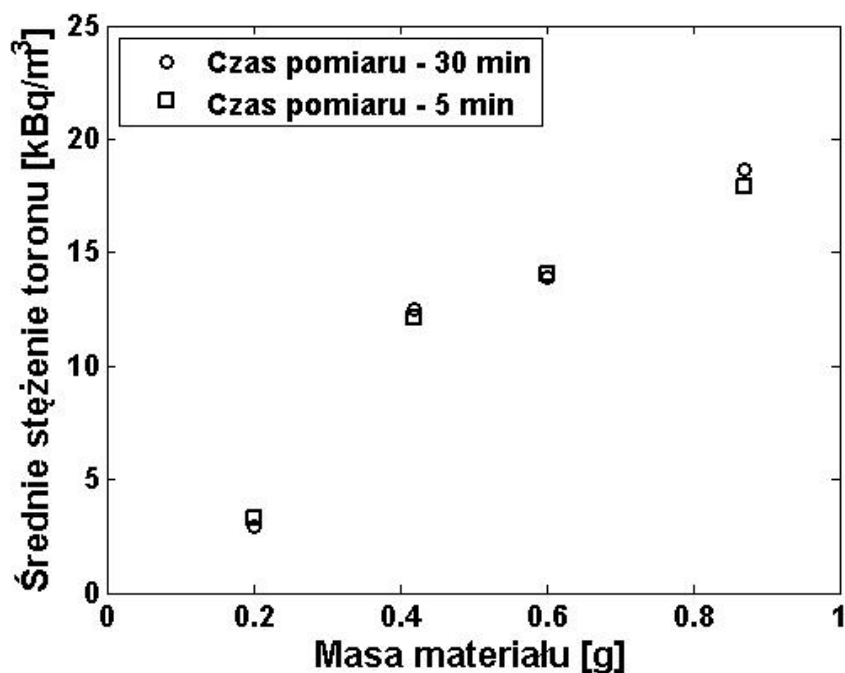
Rys. 5.9 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PJ2 w zależności od czasu pomiaru zmierzone za pomocą miernika EQF 3220.



Rys. 5.10 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PB1 w zależności od czasu pomiaru zmierzone za pomocą miernika EQF 3220.



Rys. 5.11 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PJ1 w zależności od czasu pomiaru zmierzone za pomocą miernika EQF 3220.



Rys. 5.12 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PC1 w zależności od czasu pomiaru zmierzone za pomocą miernika EQF 3220..

Niepewności pomiarowe dla średniego stężenia toronu na Rys. 5.9 – Rys. 5.12 zostały pominięte dla lepszej przejrzystości wykresu. Wynosiły one od 12 Bq m^{-3} do 177 Bq m^{-3} dla materiałów PJ2, PJ1, PB1 i od 98 do 427 Bq m^{-3} dla materiału PC1. Największe niepewności pomiarowe odnotowano dla pomiarów pięciominutowych i wynosiły maksymalnie 33%. Dla pomiarów 30-minutowych niepewności pomiarowe stężenia toronu wynosiły maksymalnie

17%. Różnice w stężeniach toronu między pomiarami 30-minutowymi a 5-minutowymi, wynoszą dla PC1 od 90 do 554 Bqm⁻³, dla PB1 od 16 do 95 Bqm⁻³, dla PJ1 od 17 do 90 Bqm⁻³, dla PJ2 od 13 do 75 Bqm⁻³. Spadek stężenia toronu dla materiału PB1 przy masie około 20 gramów (Rys. 5.10) związany jest z rozszczelnieniem się układu pomiarowego lub uszkodzeniem filtra.

W Tabeli 5.5 przedstawiono współczynniki emanacji toronu obliczone na podstawie wyników z miernika EQF 3220 w zależności od czasu pomiaru dla materiałów PJ2, PJ1, PB1 i PC1. Współczynniki emanacji toronu w zależności od czasu pomiaru (czasu pompowania) są do siebie zbliżone i zawierają się w granicach niepewności. Oznacza to, że czas pomiaru nie ma wpływu na otrzymane wyniki. W przypadku pomiarów stężenia toronu miernikiem EQF 3220 przy 30-minutowym czasie pomiaru otrzymano mniejsze niepewności pomiarowe niż przy pomiarze 5-minutowym. W związku z tym pozostałe pomiary zostały wykonane z 30-minutowym czasem pomiaru. W dalszych badaniach z miernikiem EQF 3220 stosowano 30- minutowy czas pojedynczego pomiaru.

Tabela 5.5 Współczynnik emanacji toronu f w zależności od czasu pomiaru dla materiałów PB1, PC1, PJ1 i PJ2 obliczony na podstawie wyników z miernika EQF 3220

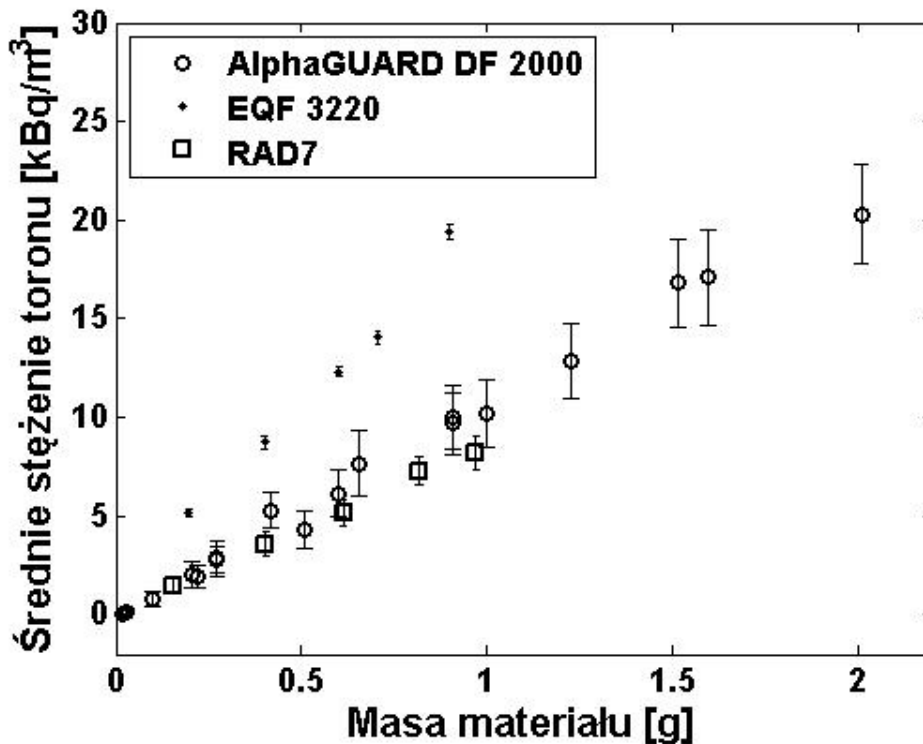
Kod próbki	Współczynnik emanacji toronu f [-] czas pomiaru 30 min	Współczynnik emanacji toronu f [-] czas pomiaru 5 min
PB1	$4 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-4}$
PC1	$0,1 \pm 0,02$	$0,09 \pm 0,02$
PJ2	$4,7 \cdot 10^{-3} \pm 6 \cdot 10^{-4}$	$4,6 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-3}$
PJ1	$4,6 \cdot 10^{-3} \pm 2 \cdot 10^{-3}$	$4,4 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-3}$

5.2 Wartości współczynnika emanacji toronu dla próbek w układach z różnymi miernikami stężenia toronu.

Dokładny opis badanych materiałów, ich rodzaj i kraj pochodzenia znajduje się w rozdziale 4.1. Wyznaczone dla tych materiałów wartości współczynników emanacji toronu przedstawiono w Tabeli 5.7, zamieszczonej na końcu rozdziału 5.2.

Piasek monacytowy (PCI)

Jest to naturalnie występujący materiał, w którym stężenie aktywności ²²⁴Ra wynosi $63,01 \pm 1,57$ Bqg⁻¹. Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału przedstawia Rys. 5.13. Każdy punkt na wykresie odpowiada średniej arytmetycznej uzyskanej z co najmniej 5 pomiarów stężenia toronu wykonanych za pomocą mierników opisanych w rozdziale 4.



Rys. 5.13 Średnie stężenie toronu w funkcji masy piasku monacytowego (PC1) zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000, EQF 3220 i RAD7.

Wartości stężenia toronu w funkcji masy materiału uzyskane za pomocą mierników AlphaGUARD DF 2000 i RAD7 są do siebie zbliżone. Zarejestrowane za pomocą miernika EQF 3220 stężenia toronu dla materiału PC1 są wyższe nawet o około 11 kBq m^{-3} . Sytuacja ta ma miejsce również dla pozostałych pomiarów wykonanych za pomocą miernika EQF 3220 opisanych w tej pracy. Jest to związane z objętością komór pomiarowych mierników. Objętości te dla mierników AlphaGUARD DF2000 i RAD7 wynoszą odpowiednio $0,75 \text{ dm}^3$ i $0,77 \text{ dm}^3$ natomiast objętość komory pomiarowej EQF 3220 wynosi $0,25 \text{ dm}^3$. Przy mniejszych objętościach rejestrowane są wyższe stężenia toronu. Nie ma to jednak znaczenia, gdyż w zastosowanej technice pomiarowej całkowita objętość układu pomiarowego uwzględniana jest w obliczeniach współczynnika emanacji toronu.

Na przykładzie materiału PC1, pokazano konieczność zastosowanie współczynnika korekcji (opisanego w rozdziale 4.5) przy określaniu współczynnika emanacji toronu. W Tabeli 5.6. przedstawiono wyniki obliczeń współczynnika emanacji z zastosowaniem i bez zastosowania współczynnika korekcji. Pomiarzy zostały wykonane przy użyciu trzech mierników. W przypadku miernika EQF 3220 najbardziej widoczna jest różnica w wartościach f dochodząca do 100% w stosunku do pozostałych mierników. Współczynnik korekcyjny uwzględnia zarówno objętość komory pomiarowej miernika jak również prędkość

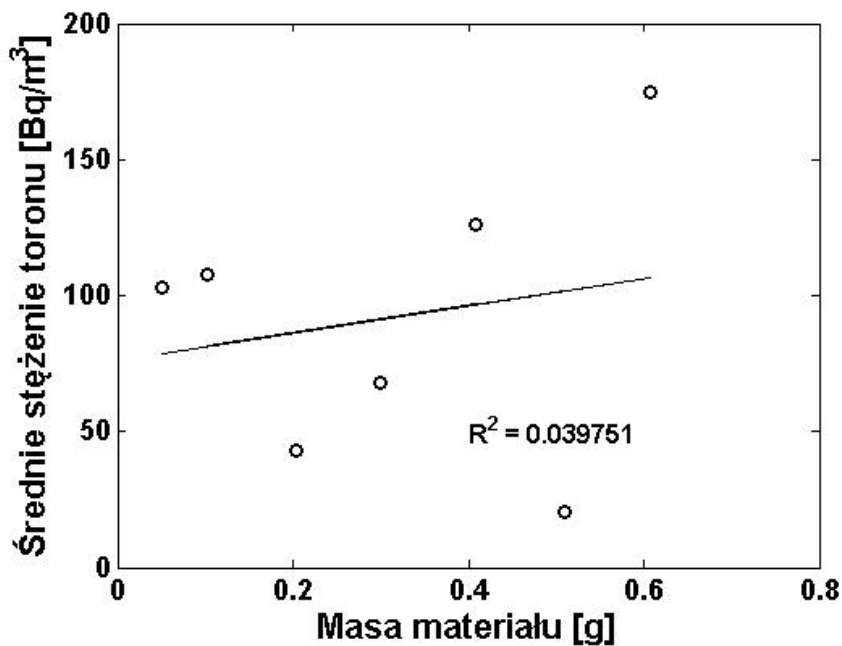
przepływu powietrza przez próbkę, które w przypadku pomiarów stężenia toronu są istotne. Dla współczynników emanacji toronu obliczonych z uwzględnieniem współczynnika korekcji różnice w otrzymanych wartościach współczynnika emanacji toronu wynoszą od 0,02 do 0,04. Współczynnik korekcji w dalszej części pracy jest zatem uwzględniony we wszystkich przedstawionych wynikach.

Tabela 5.6 Współczynnik emanacji toronu f obliczony ze współczynnikiem korekcji w oraz bez niego dla materiału PC1 na podstawie pomiarów miernikami: AlphaGUARD DF2000, EQF 3220 i RAD7

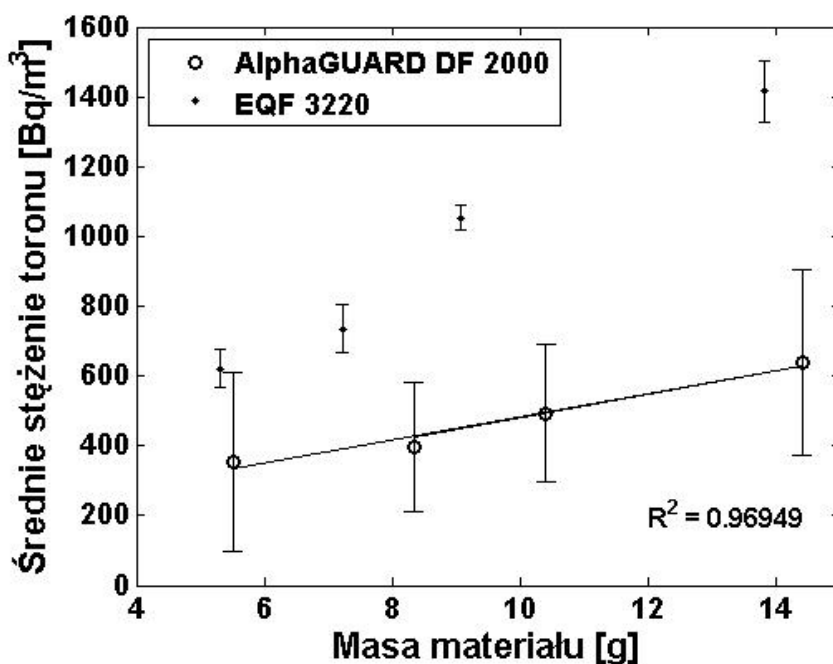
Mierniki	$f [-]$ z uwzględnieniem współczynnika korekcji	$f [-]$ bez uwzględnienia współczynnika korekcji
AlphaGUARDDF2000	$0,13 \pm 5 \cdot 10^{-3}$	$0,21 \pm 7 \cdot 10^{-3}$
EQF 3220	$0,09 \pm 6 \cdot 10^{-3}$	$0,1 \pm 9 \cdot 10^{-3}$
RAD7	$0,11 \pm 5 \cdot 10^{-3}$	$0,2 \pm 9 \cdot 10^{-3}$

Piaski monacytowe (PJ1, PJ2) i gleba (GJ1)

Kolejne badane materiały to dwa piaski monacytowe PJ1 i PJ2 oraz gleba GJ1 pochodzące z Japonii. Dla materiału PJ2 po wykonaniu pomiarów stężenia toronu za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000 (Rys. 5.14), otrzymane wyniki nie przedstawiały jakiegokolwiek zależności wzrostu stężenia toronu wraz ze wzrostem masy materiału. Współczynnik determinacji R^2 dla tych wyników wyniósł 0,0398, czyli dopasowanie regresji liniowej do otrzymanych stężeń toronu było słabe. W tym przypadku niezbędne było zwiększenie masy materiału, przy jednoczesnym zachowaniu grubości próbki. W związku z tym przygotowano większy uchwyt na próbkę (opisany w rozdziale 4), co umożliwiło wykonanie pomiarów stężenia toronu dla większych mas materiału PJ2 (od 5 do 15 g), co przedstawia Rys. 5.15. Współczynnik determinacji R^2 dla tych wyników wyniósł 0,97.

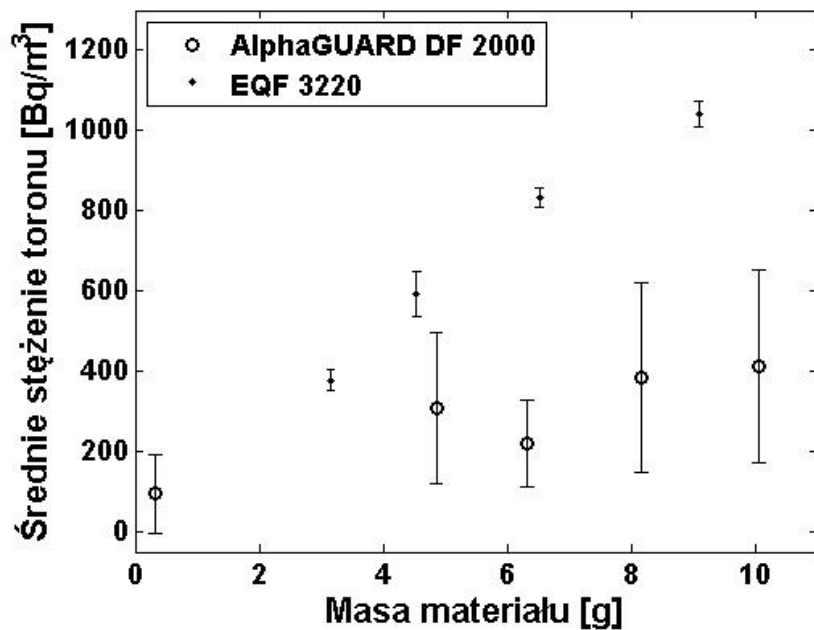


Rys. 5.14 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PJ2 zmierzone za pomocą miernika AlphaGUARD DF2000.



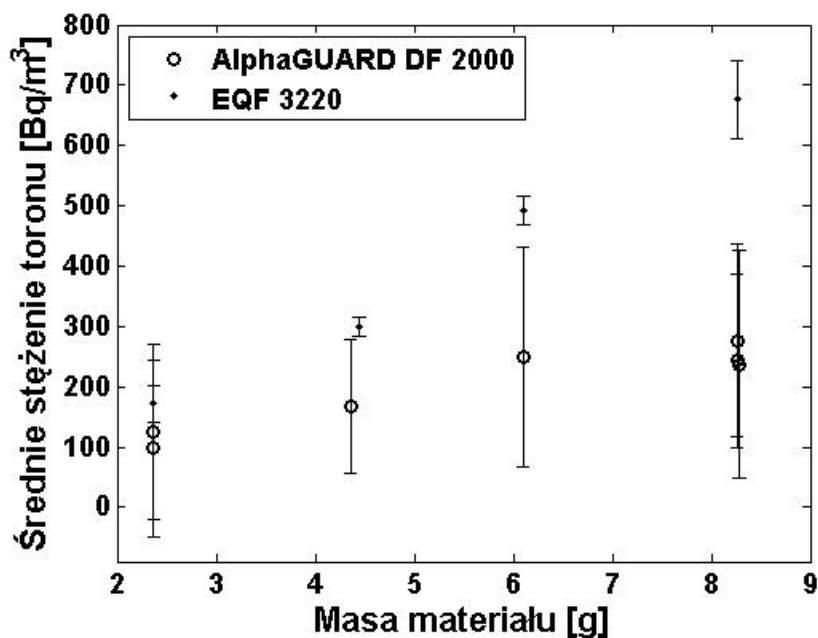
Rys. 5.15 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PJ2 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220 (większy uchwyt na próbkę).

Kolejny materiał pochodzący z Japonii to gleba (GJ1). Materiał ten ma najmniejsze stężenie aktywności ^{224}Ra ze wszystkich badanych w tej pracy materiałów, co nie przekłada się na najmniejszy współczynnik emanacji toronu (Tabela 5.7). Zależność średniego stężenia toronu od masy materiału GJ1 dla pomiarów wykonanych miernikiem EQF 3220 jest prawie idealnie liniowa ($R^2=0,99$) – Rys. 5.16.



Rys. 5.16 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału GJ1 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.

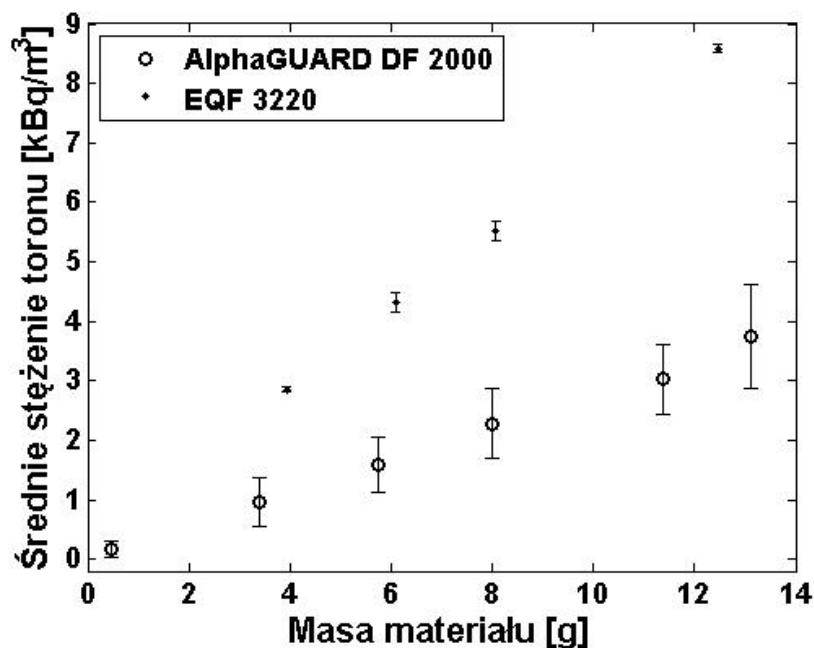
Ostatnim materiałem pochodzącym z Japonii jest zmielony na proszek piasek monacytowy (PJ1). Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału zostało przedstawione na Rys. 5.17.



Rys. 5.17 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PJ1 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.

Gleba (GII)

Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału GII przedstawia Rys. 5.18.

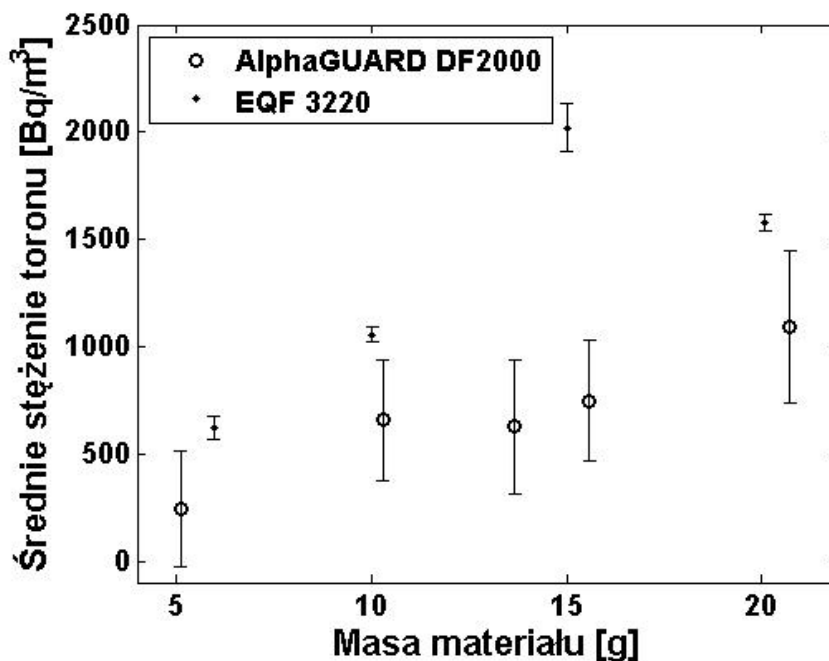


Rys. 5.18 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału GI1 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.

Zarejestrowane stężenia toronu dla tego materiału są znacznie wyższe w porównaniu do materiału PJ2, chociaż stężenie aktywności ^{224}Ra w tych materiałach różni się tylko o 0,1 Bq/g – Tabela 5.7. Różnice w zarejestrowanych stężeniach toronu, otrzymane za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000, dla tych dwóch materiałów dochodzą nawet do około 3 kBq m^{-3} dla zbliżonych mas badanych próbek. Najwyższe stężenie toronu otrzymane za pomocą miernika EQF 3220 dla materiału PJ2 wynosi około 1400 Bq m^{-3} , a dla GI1 około 8500 Bq m^{-3} . Różnicę tę można zaobserwować również w wartościach współczynnika emanacji, która dla materiału GI1 jest wyższa o 0,025 niż dla PJ2 (Tabela 5.7).

Piasek (PB1)

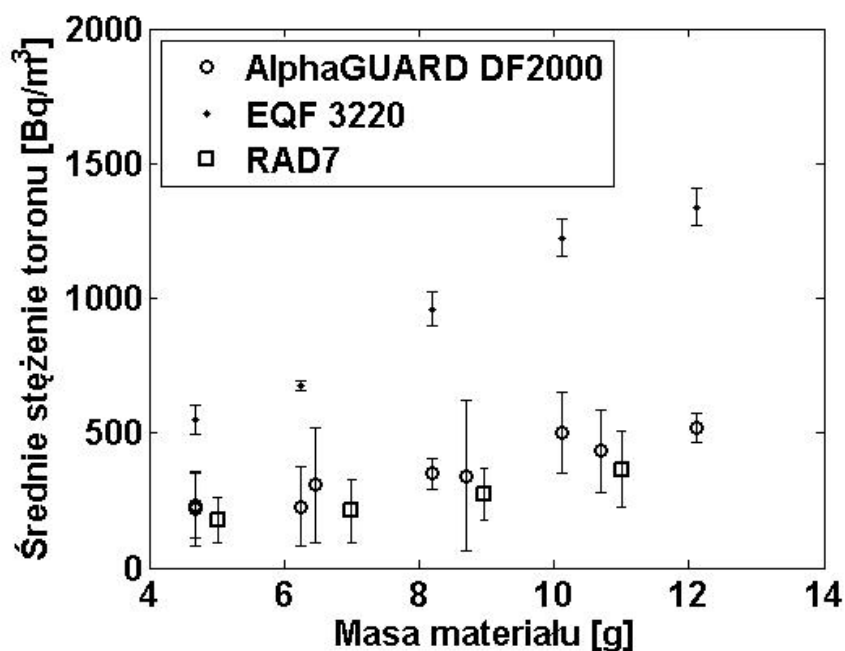
Materiał ten pochodzi z plaż Bangladeszu. Tak jak w przypadku materiałów z Japonii i Indonezji (PJ1, PJ2, GJ1, GI1) wyniki średniego stężenia toronu uzyskane dla małych mas poniżej jednego grama nie przedstawiały wzrostu stężenia toronu wraz ze wzrostem masy materiału. W związku z tym wyniki przedstawione na Rys. 5.19 odnoszą się do mas materiału powyżej pięciu gramów. Dla miernika EQF 3220 dla masy około 20 g zarejestrowano niższe stężenie toronu. Spadek ten był spowodowany nieuszczelnnością układu lub uszkodzeniem filtrów utrzymujących próbkę w uchwycie.



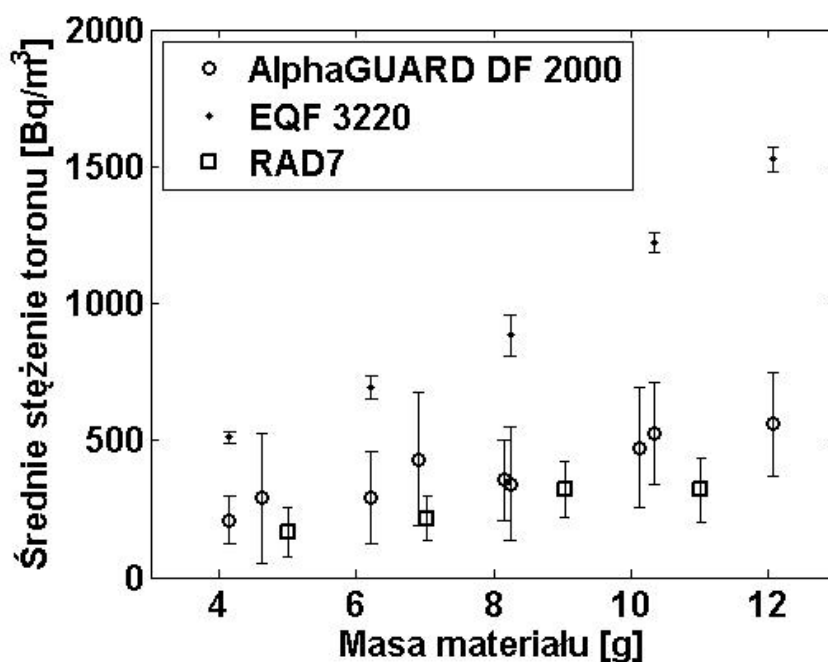
Rys. 5.19 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PB1 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.

Tufy wulkaniczne (TW1, TW2)

Materiały te pochodzą z Włoch. Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału zmierzone za pomocą trzech mierników przedstawiają Rys. 5.20 i Rys. 5.21. Jak w przypadku piasku monacytowego PC1 pomiary wykonane za pomocą mierników AlphaGUARD DF 2000 i EQF 3220 miały miejsce w Laboratorium Ekspertyz Radiometrycznych IFJ PAN, a wykonane za pomocą miernika RAD7 w Uniwersytecie Roma Tre w Rzymie. Zarejestrowane za pomocą miernika EQF 3220 stężenia toronu są wyższe niż stężenia zarejestrowane za pomocą mierników AlphaGUARD DF 2000 i RAD7. Stężenia toronu określone za pomocą mierników AlphaGUARD DF 2000 i RAD7 są do siebie zbliżone. Wynika to, jak wyjaśniono wcześniej, z różnicy objętości układów pomiarowych i różnych prędkości przepływu.



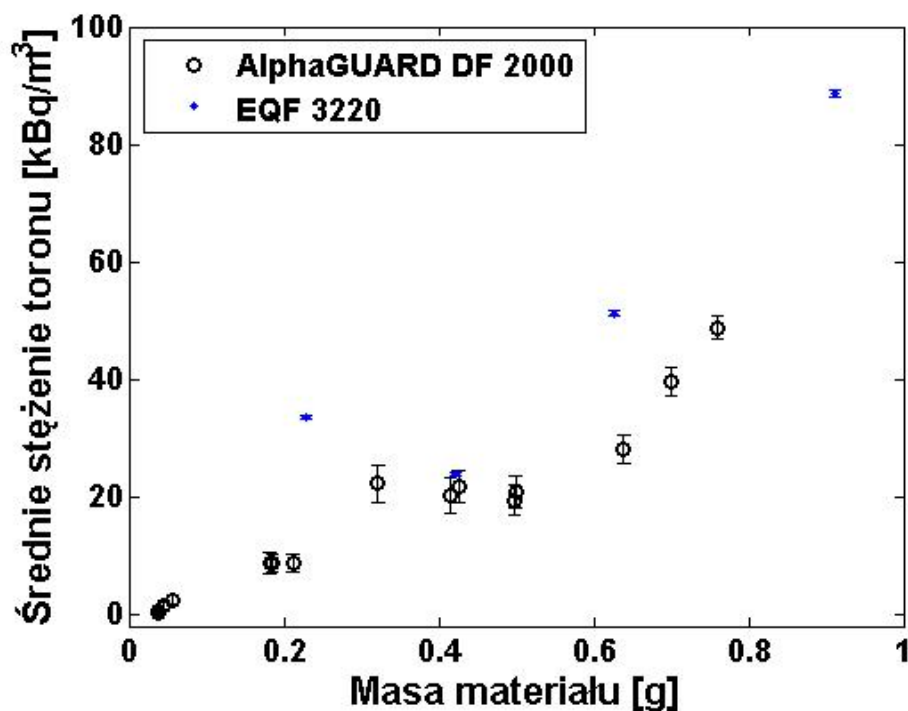
Rys. 5.20 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału TW1 zmierzone za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000, EQF 3220 i RAD7.



Rys. 5.21 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału TW2 zmierzone za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000, EQF 3220 i RAD7.

Azotan toru (AP1)

Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału AP1 przedstawia Rys. 5.22. Materiał ten ma bardzo wysokie stężenie aktywności ^{224}Ra w próbce, $Q = 1201 \pm 26 \text{ Bqg}^{-1}$. Zarejestrowane stężenia toronu dochodziły do 90 kBqm^{-3} i były wyższe w porównaniu do stężeń toronu zmierzonych dla pozostałych badanych materiałów.

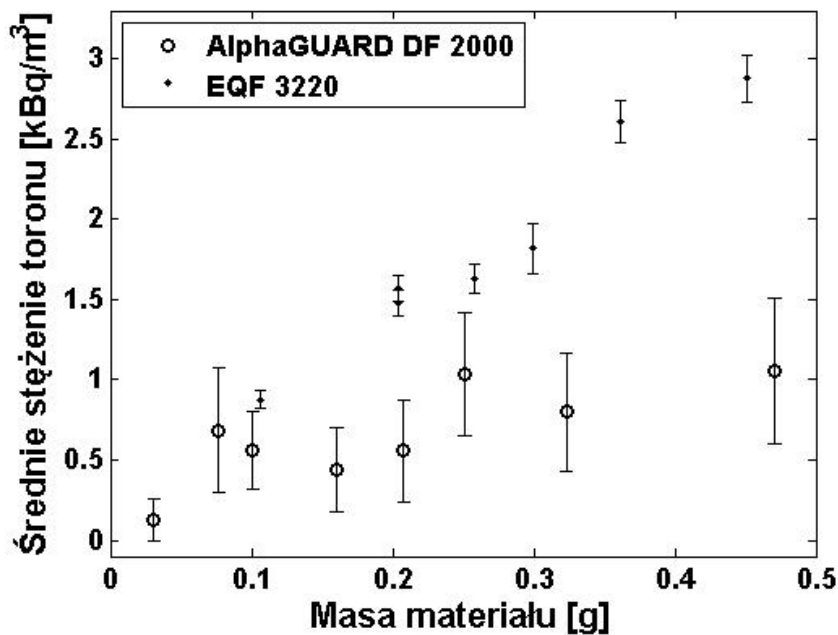


Rys. 5.22 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału API zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.

Nachylenie S dopasowanej prostej określone na podstawie wyników pomiarów miernikiem EQF 3220 określono z dużą niepewnością wynoszącą $29114 \text{ Bqm}^{-3}\text{g}^{-1}$. Duża wartość tej niepewności wynika z niskiego stężenia toronu zarejestrowanego dla masy próbki 0,4 g. Analogiczną tendencję zauważono w przypadku miernika AlphGUARD DF 2000.

Źródło torowe (KP1)

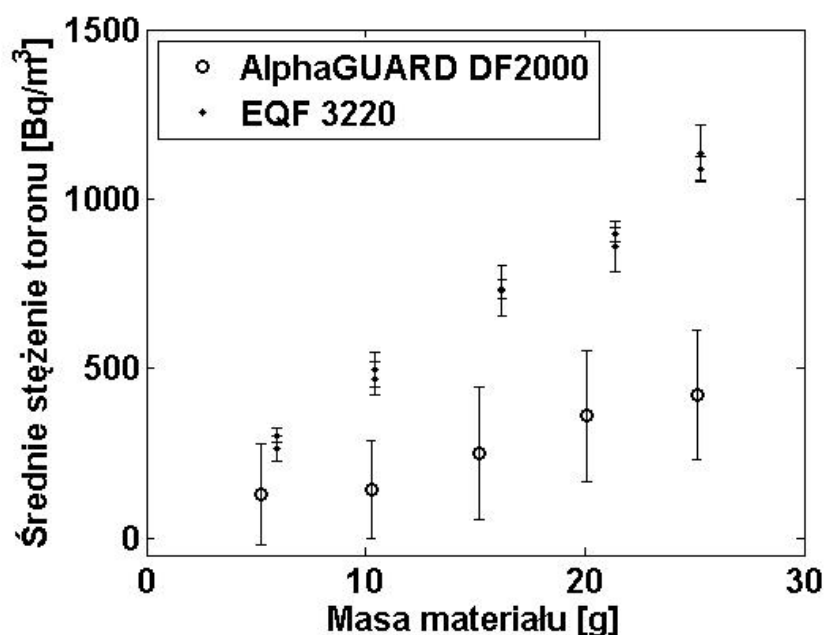
Wyniki pomiarów średniego stężenia toronu w funkcji masy materiału KP1 przedstawia Rys. 5.23. Widoczna jest dobra zależność wzrostu stężenia toronu wraz ze wzrostem masy materiału próbki ($R^2=0,955$; EQF 3220) i ($R^2=0,629$; AlphaGUARD DF 2000).



Rys. 5.23 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału KP1 zmierzone za pomocą mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220.

Piaski (PM1 - PM6)

Ostatnimi z badanych materiałów były piaski pochodzące z Madagaskaru (PM1-PM6). Pierwsze wyniki otrzymane z pomiarów tych próbek o masie około 1 grama nie dały satysfakcjonujących wyników. W związku z tym pomiary wykonano dla próbek o większych masach od 5 g do 25 g. Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału dla próbki PM3 przedstawia Rys 5.24. Dla pozostałych próbek z Madagaskaru, zależności średniego stężenia toronu od masy materiału były podobne. Wartości współczynnika emanacji toronu f obliczone na podstawie wyników z mierników AlphaGUARD DF 2000 i EQF 3220 różnią się maksymalnie o 0,0003.



Rys. 5.24 Średnie stężenie toronu w funkcji masy dla materiału PM3 zmierzone za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000 i EQF 3220.

Wartości współczynników emanacji obliczonych dla badanych próbek zebrano w Tabeli 5.7

Tabela 5.7 Współczynnik emanacji toronu f oraz stężenie aktywności ^{224}Ra Q dla badanych materiałów.

Kod próbki	Q [Bq/g]	AlphaGUARD	EQF 3220	RAD7
		DF 2000		
		f [-]	f [-]	f [-]
PC1	$63,01 \pm 1,57$	$0,13 \pm 5 \cdot 10^{-3}$	$0,09 \pm 6 \cdot 10^{-3}$	$0,11 \pm 5 \cdot 10^{-3}$
GJ1	$0,18 \pm 3 \cdot 10^{-3}$	$0,15 \pm 0,04$	$0,18 \pm 1 \cdot 10^{-3}$	-
PJ2	$5,8 \pm 0,2$	$5 \cdot 10^{-3} \pm 7 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-3} \pm 3 \cdot 10^{-4}$	-
PJ1	$5 \pm 0,13$	$3 \cdot 10^{-3} \pm 3 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-3} \pm 5 \cdot 10^{-4}$	-
GI1	$5,9 \pm 0,02$	$0,04 \pm 13 \cdot 10^{-4}$	$0,03 \pm 7 \cdot 10^{-4}$	-
PB1	$50,03 \pm 0,4$	$9 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	-
TW1	$0,3 \pm 0,01$	$0,12 \pm 0,03$	$0,1 \pm 0,02$	$0,09 \pm 0,03$
TW2	$0,2 \pm 6 \cdot 10^{-3}$	$0,18 \pm 0,06$	$0,18 \pm 0,03$	$0,13 \pm 0,07$
AP1	1201 ± 26	$0,036 \pm 3 \cdot 10^{-3}$	$0,02 \pm 7 \cdot 10^{-3}$	-
KP1	$14,62 \pm 0,05$	$0,09 \pm 0,03$	$0,11 \pm 0,01$	-
PM1	$11,0 \pm 0,2$	$10 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	$11 \cdot 10^{-4} \pm 4 \cdot 10^{-5}$	-
PM2	$12,0 \pm 0,2$	$12 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-4}$	$11 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	-
PM3	$12,6 \pm 0,2$	$11 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	$9 \cdot 10^{-4} \pm 4 \cdot 10^{-5}$	-
PM4	$12,4 \pm 0,2$	$12 \cdot 10^{-4} \pm 3 \cdot 10^{-4}$	$12 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	-
PM5	$15,7 \pm 0,2$	$14 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	$11 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	-
PM6	$24,4 \pm 0,4$	$10 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	-

Współczynniki emanacji toronu dla materiałów PM1-PM6 są małe w porównaniu do materiałów TW1, TW2, GJ1 pomimo że materiały TW1, TW2, GJ1 mają niższe stężenie aktywności ^{224}Ra w próbce. Materiał PM6 ma dwa razy większą wartość Q w stosunku do pozostałych materiałów (PM1-PM5), jednak współczynnik emanacji toronu jest zbliżony do pozostałych materiałów z Madagaskaru. Wynika z tego, że wysokie stężenie aktywności ^{224}Ra w próbce niekoniecznie musi oznaczać wysoką wartość współczynnika emanacji toronu.

Materiały PJ1, PJ2 i GI1 mają zbliżone stężenia aktywności ^{224}Ra w próbce, maksymalna różnica to $0,9 \text{ Bqg}^{-1}$ (Tabela 5.7). W przypadku materiału PJ1 i PJ2 (zmielone piaski monacytowe) wyznaczone wartości współczynników emanacji toronu są zbliżone. Natomiast wartość współczynnika emanacji toronu materiału GI1 jest od nich wyższa o rząd wielkości. Może to być związane z wielkością ziaren tych materiałów – PJ1 i PJ2 miały bardzo małe średnice ziaren (po zmieleniu na pył), a GI1 dużo większe (rozdrobiona gleba).

Materiał GJ1 ma najmniejszą wartość stężenia aktywności ^{224}Ra , jednak charakteryzuje się jedną z wyższych wartości współczynnika emanacji toronu z przedstawionych w Tabeli 5.7 materiałów. Fakt ten potwierdza, że wysoka wartość stężenia aktywności ^{224}Ra w próbce nie jest jedynym czynnikiem odpowiadającym za wysoką emanację toronu z tego materiału.

Współczynniki emanacji toronu dla materiału PB1 obliczone na podstawie wyników uzyskanych na podstawie wskazań mierników AlphaGUARD DF2000 i EQF 3220, różnią się o ponad 100% (Tabela 5.7). Jest to jedna z większych różnic w wartościach współczynnika emanacji toronu otrzymanych dla tego samego materiału w układach pomiarowych z różnymi miernikami. Prawdopodobnie jest to związane z bardzo niską emanacją toronu z tego materiału. Wartości współczynnika emanacji toronu są najniższe, mimo że stężenie aktywności ^{224}Ra dla tego materiału wynosił $Q = 50,03 \pm 0,4 \text{ Bqg}^{-1}$ i jest 10 razy większe niż dla materiałów z Japonii (PJ2, GJ1 i PJ1), czy Indonezji (GI1), dla których współczynniki emanacji są dużo większe. Może to być związane z różnicami rozmieszczenia radu w ziarnach i/lub strukturą ziaren tych materiałów.

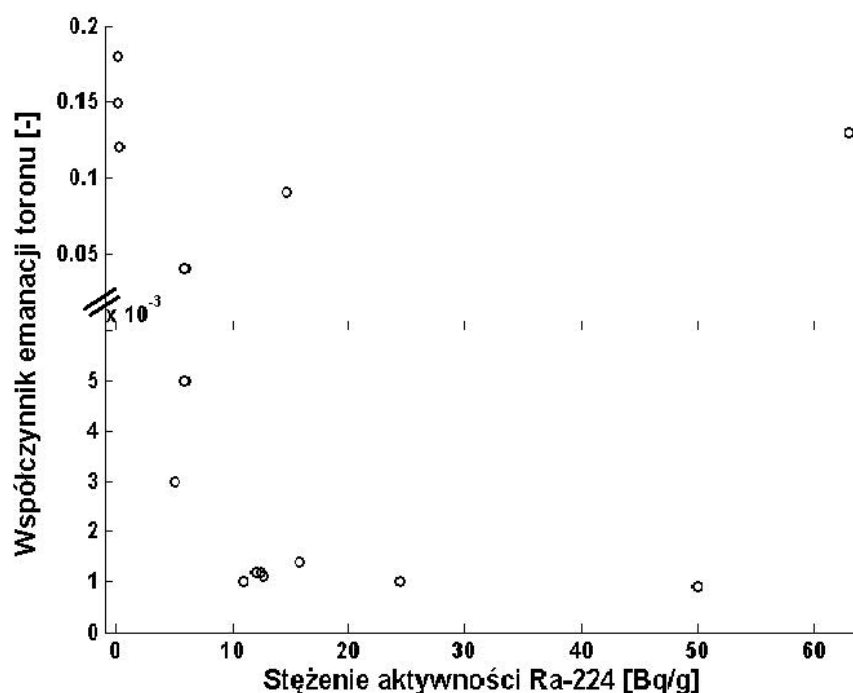
Materiały TW1 i TW2 to jedne z trzech materiałów, dla których współczynniki emanacji toronu zostały obliczone na podstawie wyników uzyskanych z pomiarów miernikami AlphaGUARD DF 200, EQF 3220 i RAD7. Pomimo różnych wartości przepływów, objętości układu, rodzaju detektora, czy sposobu pomiaru stężenia toronu przez dany miernik,

otrzymane współczynniki emanacji toronu mają bardzo zbliżone wartości. Różnice wynoszą maksymalnie 0,05 i mieszczą się w granicach niepewności pomiarowych.

Pomimo wysokiego stężenia aktywności ^{224}Ra w próbce, współczynnik emanacji toronu dla azotanu toru AP1 jest niski (Tabela 5.7). Niska wartość współczynnika emanacji toronu związana jest prawdopodobnie z rozmieszczeniem porów wewnętrznych lub rozmieszczeniem atomów ^{224}Ra wewnątrz ziarna.

Współczynniki emanacji toronu dla materiału KP1 obliczone na podstawie wyników uzyskanych z mierników Alphaguard DF 2000 i EQF 3220 różnią się o 0,02 i mieszczą się w granicy niepewności.

Rys. 5.25 przedstawia zależność współczynnika emanacji toronu od wartości stężenia aktywności ^{224}Ra dla materiałów przedstawionych w Tabeli 5.7 (bez próbki AP1) obliczonych na podstawie wyników z miernika AlphaGUARD DF 2000.

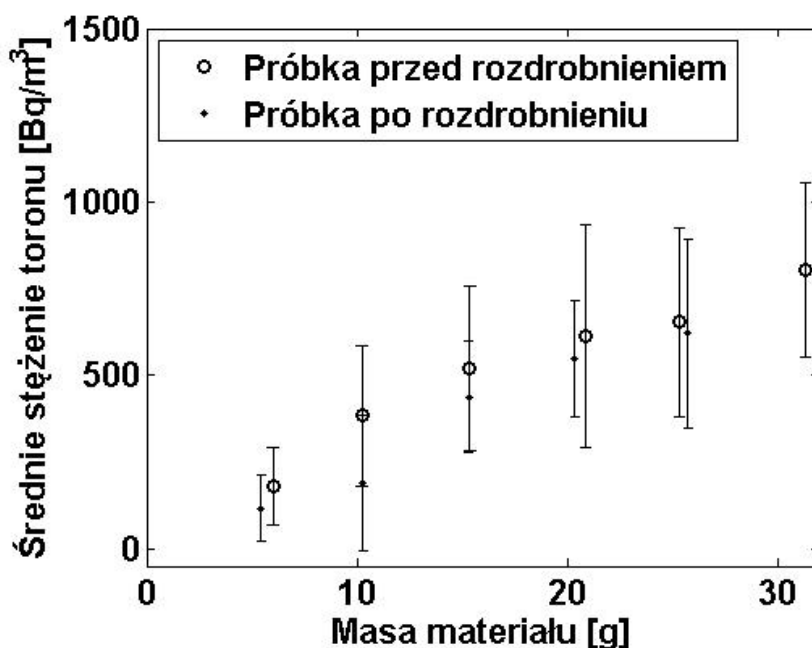


Rys. 5.25 Zależność współczynnika emanacji toronu od wartości stężenia aktywności ^{224}Ra w próbce.

W pracach poświęconych modelowaniu zjawiska emanacji radonu/toronu głównym parametrem przyjmowanym do obliczeń współczynnika emanacji jest stężenie aktywności ^{224}Ra lub ^{226}Ra w próbce. Pozostałe czynniki takie jak wielkość i kształt ziaren czy wielkość przestrzeni międzyziarnowej są pomijane. Na Rys. 5.25 widać jednak, że wartość stężenia aktywności ^{224}Ra w próbce nie determinuje wartości współczynnika emanacji toronu. Wynika z tego, iż wysoka wartość stężenia aktywności ^{224}Ra w próbce nie oznacza wysokiej wartości współczynnika emanacji toronu i współczynnik ten zależy jeszcze od innych czynników.

5.3 Badanie wpływu rozmiaru ziaren na wartość współczynnika emanacji toronu

Jednym z czynników mających wpływ na współczynnik emanacji jest wielkość ziaren materiału. W dostępnej literaturze istnieje niewiele artykułów odnoszących się do eksperymentalnego badania wpływu wielkości ziaren na współczynnik emanacji zarówno radonu jak i toronu. W związku z tym wykonano pomiary stężenia toronu i wyznaczono współczynniki emanacji dla materiałów pochodzących z Madagaskaru, przed i po ich rozdrobieniu. Próbkę po rozdrobieniu w moździerzu miały średnicę poniżej 0,355 mm. Stężenie toronu dla tych dwóch frakcji ziaren zostało zmierzone za pomocą miernika AlphaGUARD DF 2000. Przykładowy wykres zależności średniego stężenia toronu w funkcji masy próbki PM6 przedstawia Rys. 5.25. Analogiczne zależności uzyskano dla pozostałych próbek.



Rys. 5.26 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PM6 przed i po rozdrobieniu.

Materiał po rozdrobieniu daje nieznacznie mniejsze stężenie toronu niż przed rozdrobieniem, różnica ta wynosi nie więcej niż 60 Bq m^{-3} , co mieści się w granicach niepewności pomiarowych (Rys 5.26). Obliczone współczynniki emanacji zostały przedstawione w Tabeli 5.8.

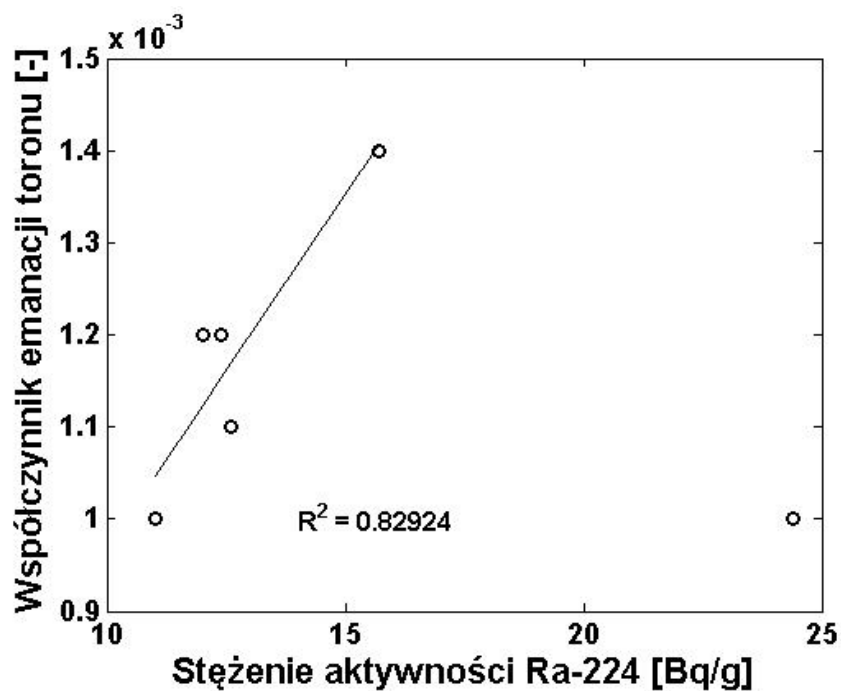
Tabela 5.8 Współczynnik emanacji toronu f oraz stężenie aktywności ^{224}Ra Q dla materiałów PM1 - PM6 przed i po rozdrobnieniu.

Kod próbki	Q [Bq/g]	Przed rozdrobnieniem	Po rozdrobnieniu
		f [-]	f [-]
PM1	11,0±0,2	$14 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-4}$	$10 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$
PM2	12,0±0,2	$13 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-4}$	$12 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-4}$
PM3	12,6±0,2	$9 \cdot 10^{-4} \pm 3 \cdot 10^{-4}$	$11 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$
PM4	12,4±0,2	$12 \cdot 10^{-4} \pm 3 \cdot 10^{-4}$	$12 \cdot 10^{-4} \pm 3 \cdot 10^{-4}$
PM5	15,7±0,2	$14 \cdot 10^{-4} \pm 3 \cdot 10^{-4}$	$14 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$
PM6	24,4±0,4	$8 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	$10 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$

Różnice w wartościach współczynnika emanacji toronu przed i po rozdrobnieniu próbek wynoszą maksymalnie $4 \cdot 10^{-4}$.

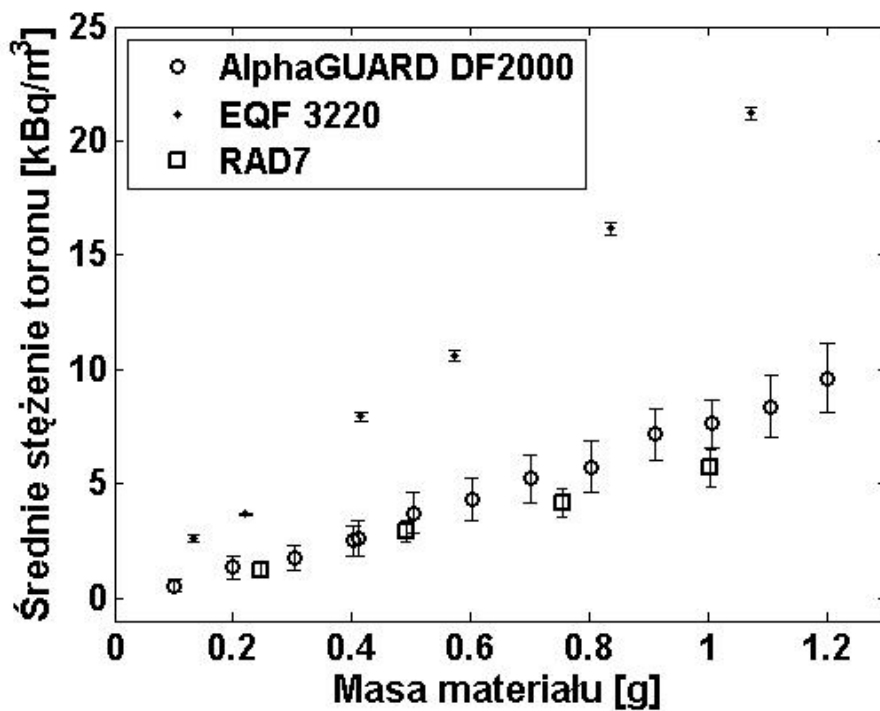
Rys 5.27 przedstawia zależność współczynnika emanacji toronu od wartości stężenia aktywności ^{224}Ra dla próbek PM1- PM6 po rozdrobnieniu. Średnica ziaren była poniżej 0,355 mm, czyli wszystkie ziarna miały podobne rozmiary. Na Rys. 5.27 można zaobserwować liniowy wzrost wartości współczynnika emanacji wraz ze wzrostem stężenia aktywności ^{224}Ra w próbce ($R^2 = 0,83$), dla stężeń aktywności poniżej 20 Bqg^{-1} . W przypadku próbki o najwyższym stężeniu aktywności ^{224}Ra ($Q=24,4 \text{ Bqg}^{-1}$), obserwuje się zmniejszenie wartości współczynnika emanacji. Efekt ten może się wiązać z tym, że w materiale PM6 rozmieszczenie atomów ^{224}Ra utrudnia proces emanacji toronu.

Współczynnik emanacji toronu nie zależy wyłącznie od stężenia aktywności ^{224}Ra w próbce, ale jest również związany z rozmiarem ziaren i położeniem atomów ^{224}Ra w objętości ziarna.

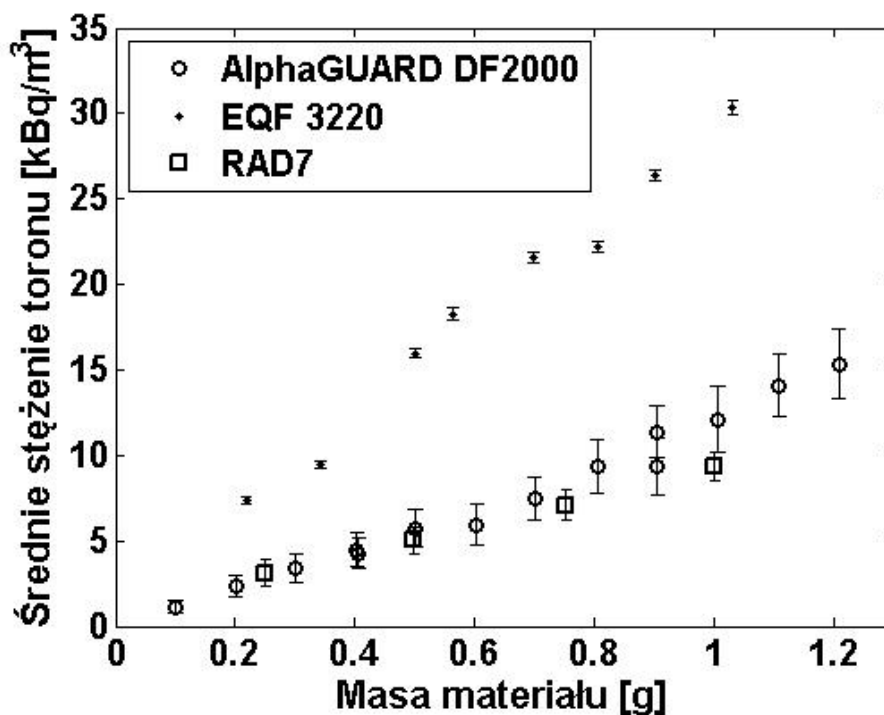


Rys. 5.27 Zależność współczynnika emanacji toronu od wartości stężenia aktywności ^{224}Ra dla próbek PM1- PM6 po rozdrobnieniu.

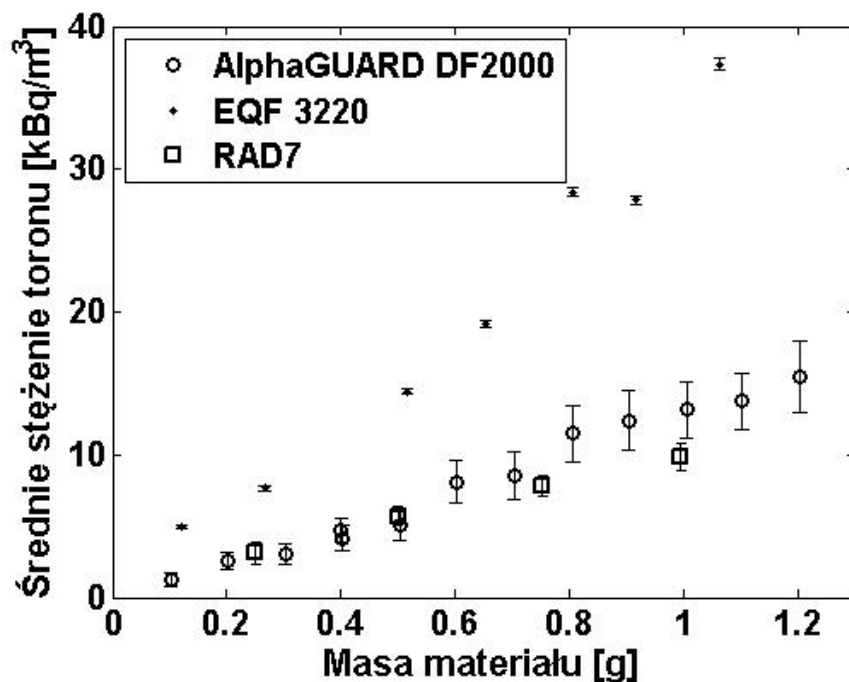
W celu dokładniejszego zbadania wpływu rozmiaru ziaren na współczynnik emanacji dokonano rozdzielenia próbki PC1 na frakcje. Za pomocą sita rozdzielono próbkę PC1 na cztery frakcje ziaren o średnicy: większej niż 0,5 mm, 0,5mm - 0,355 mm, 0,355 mm – 0,18 mm i poniżej 0,18 mm. Dla każdej frakcji ziaren określono stężenie aktywności ^{224}Ra w próbce za pomocą spektroskopii promieniowania gamma (Tabela 5.9). Na Rys. 5.28 – Rys. 5.31 znajdują się wykresy przedstawiające zależność średniego stężenia toronu od masy materiału dla każdej frakcji ziaren.



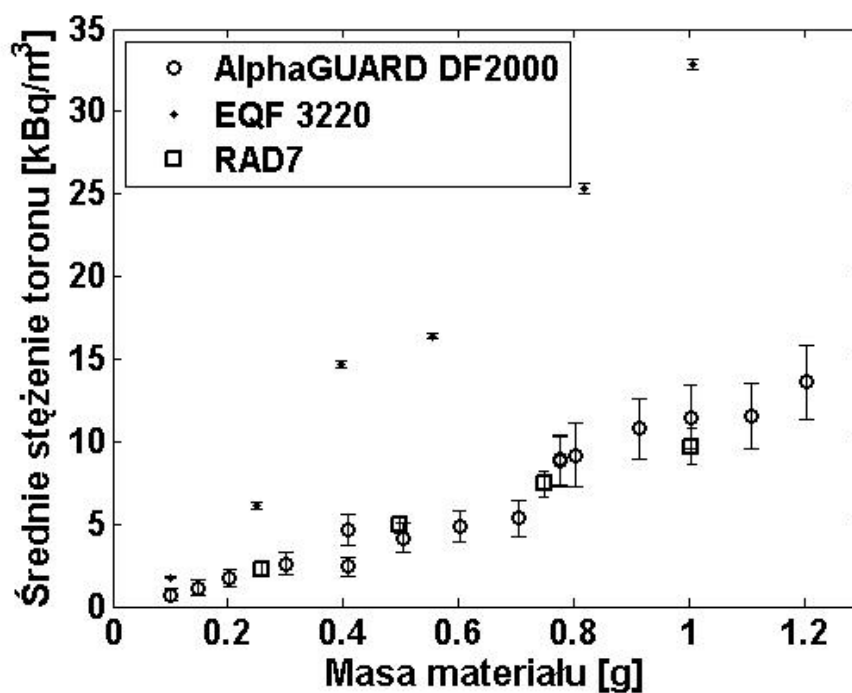
Rys. 5.28 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału dla frakcji ziaren o średnicy poniżej 0,18 mm.



Rys. 5.29 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału dla frakcji ziaren o średnicy od 0,18 mm do 0,355 mm.



Rys. 5.30 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału dla frakcji ziaren o średnicy od 0,355 mm do 0,5 mm.



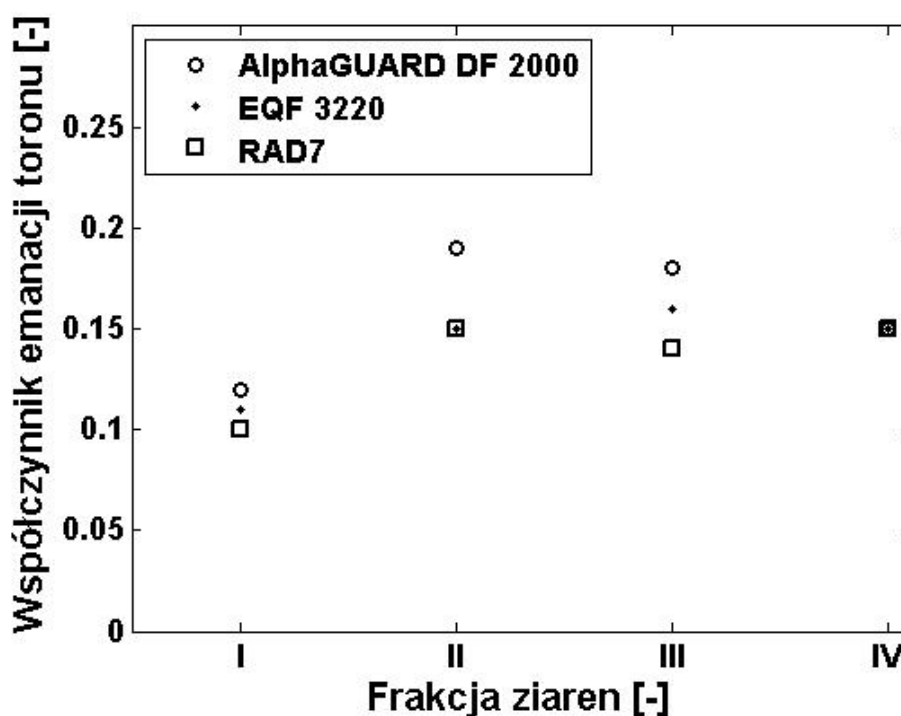
Rys. 5.31 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału dla frakcji ziaren o średnicy powyżej 0,5 mm.

Wartości współczynników emanacji toronu dla próbek o różnych frakcjach ziaren przedstawiono w Tabeli 5.9.

Tabela 5.9 Współczynnik emanacji toronu f oraz stężenie aktywności ^{224}Ra Q dla różnych frakcji materiału PC1.

Fracja	Rozmiar ziaren	Q [Bq/g]	Współczynnik emanacji toronu f [-]		
			AlphaGUARD DF 2000	EQF 3220	RAD7
I	Poniżej 0,18 mm	$51,54 \pm 1,08$	$0,12 \pm 4 \cdot 10^{-3}$	$0,11 \pm 3 \cdot 10^{-3}$	$0,1 \pm 6 \cdot 10^{-3}$
II	Od 0,18 mm do 0,355 mm	$51,29 \pm 0,98$	$0,19 \pm 8 \cdot 10^{-3}$	$0,15 \pm 0,01$	$0,15 \pm 6 \cdot 10^{-3}$
III	Od 0,355 mm do 0,5 mm	$59,04 \pm 1,19$	$0,18 \pm 8 \cdot 10^{-3}$	$0,16 \pm 0,01$	$0,14 \pm 6 \cdot 10^{-3}$
IV	Powyżej 0,5 mm	$60,8 \pm 1,23$	$0,15 \pm 0,01$	$0,15 \pm 0,01$	$0,15 \pm 6 \cdot 10^{-3}$

Rys. 5.32 przedstawia zależność wartości współczynnika emanacji toronu od wielkości ziaren badanej próbki. Wyniki te są zgodne z wynikami eksperymentalnymi przedstawionymi przez Sakodę [Sak10], a także z wynikami Markkanen'a i Arveli [Mar92], którzy stwierdzili, że współczynnik emanacji radonu zmniejsza się wraz ze wzrostem wielkości ziarna, dla ziaren o rozmiarach ponad 0,5 mm.

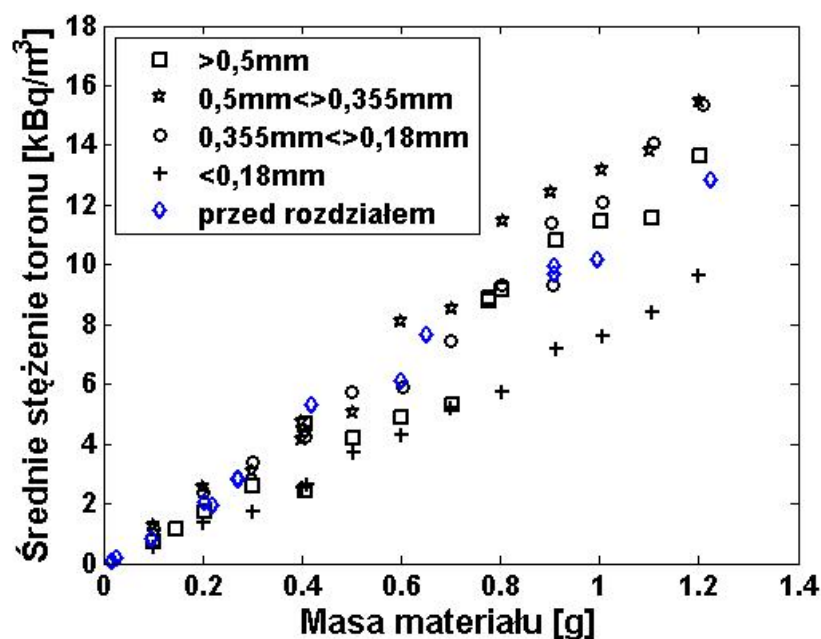


Rys. 5.32 Zależność współczynnika emanacji toronu f od rozmiaru ziaren materiału PC1.

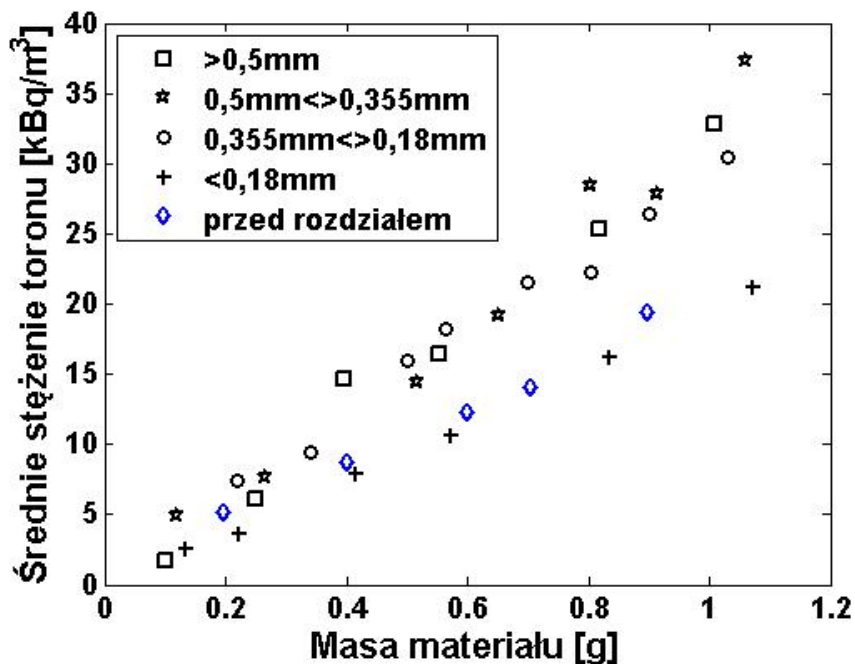
Największa powierzchnia emanacji, jeśli rozpatrujemy pojedyncze ziarno, występuje dla największych ziaren, a najmniejsza powierzchnia emanacji, dla najmniejszego ziarna. Sytuacja zmienia się jednak, jeśli rozpatruje się wiele ziaren - wtedy największą całkowitą

powierzchnię emanacji ma materiał o najmniejszych ziarnach. Najmniejszy współczynnik emanacji toronu otrzymano dla najmniejszych ziaren (poniżej 0,18 mm). Dla tych ziaren oczekiwano największej wartości współczynnika emanacji ze względu na największą całkowitą powierzchnię emanacji, z której atom toronu może się uwolnić. Uzyskany wynik wskazuje jednak, iż nie tylko wielkość powierzchni emanacji ma wpływ na wartość współczynnika emanacji, ale także objętość przestrzeni międzyziarnowej. Ze względu na mniejszy rozmiar ziaren były one ściśle upakowane w próbce, przez co dochodziło do odrzutu pośredniego atomu toronu lub zablokowania jego drogi ucieczki z przestrzeni międzyziarnowej. Wynikałoby z tego, że największy współczynnik emanacji powinny mieć największe ziarna, co też nie jest prawdą. Materiał o największych ziarnach ma największą przestrzeń międzyziarnową, jednak najmniejszą całkowitą powierzchnię emanacji. Istniejące artykuły zajmujące się modelowaniem procesów emanacji (współczynnika emanacji) często skupiają się jedynie na rozmiarze ziaren i rozlokowaniu w nich atomu ^{224}Ra , pomijając wpływ innych ziaren, czy wielkości przestrzeni międzyziarnowych. Natomiast badania eksperymentalne pokazują, że zjawisko emanacji toronu zależy nie tylko od wielkości samych ziaren, ale również od wielkości przestrzeni międzyziarnowej.

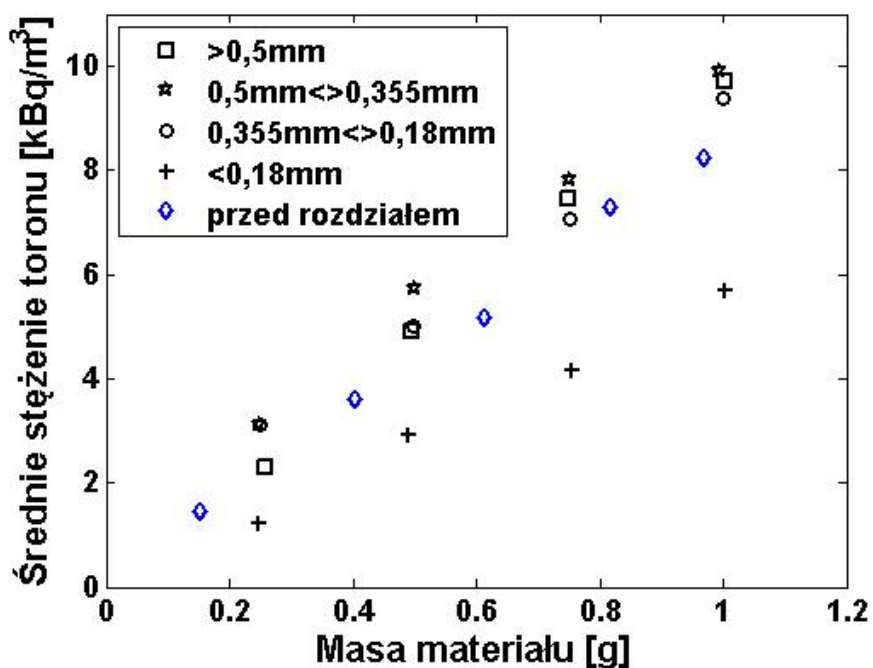
Poniżej zestawiono średnie stężenia toronu w funkcji masy materiału PC1 dla wszystkich wielkości ziaren oraz stężenie toronu uzyskane z materiału przed rozdziałem na frakcje ziaren zarejestrowane za pomocą poszczególnych mierników (Rys. 5.33 – Rys. 5.35).



Rys. 5.33 Średnie stężenie toronu dla wszystkich frakcji ziaren (AlphaGUARD DF2000).



Rys. 5.34 Średnie stężenie toronu dla wszystkich frakcji ziaren (EQF 3220).

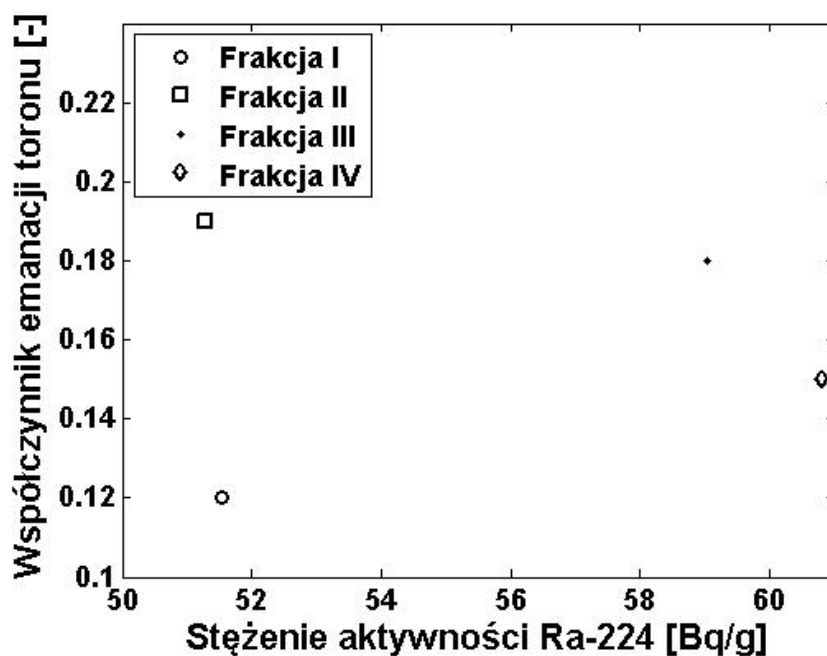


Rys. 5.35 Średnie stężenie toronu dla wszystkich frakcji ziaren (RAD7).

Wyniki stężenia toronu zmierzone miernikami AlphaGUARD DF 2000 i RAD7 dla materiału przed rozdziałem na frakcje zbliżone jest do stężeń toronu dla większych i średnich ziaren (frakcje II - IV) natomiast w przypadku miernika EQF 3220 średnie stężenie toronu dla materiału przed rozdziałem na frakcje ziaren zbliżone jest do stężenia toronu dla najmniejszych ziaren (frakcja I). Wartości stężenia toronu dla ziaren poniżej 0,18 mm były niższe w stosunku do stężeń toronu uzyskanych dla pozostałych wielkości ziaren. Różnica

w stężeniach toronu między frakcją I, a pozostałymi frakcjami wynosiła maksymalnie 16 kBq m^{-3} . Zarejestrowane stężenia toronu dla ziaren powyżej 0,18 mm średnicy (frakcje II - IV) były wyższe niż zarejestrowane stężenia toronu dla materiału przed rozdzieleniem na frakcje. Natomiast zarejestrowane stężenia toronu dla ziaren poniżej 0,18 mm średnicy (frakcja I) były niższe niż te zarejestrowane dla materiału przed rozdzieleniem na frakcje. W przypadku tego materiału, udział najmniejszej frakcji ziaren ma istotny ujemny wpływ na emanację toronu do przestrzeni międzyziarnowej.

Rys 5.36 przedstawia zależność współczynnika emanacji toronu od wartości stężenia aktywności ^{224}Ra dla różnych frakcji ziaren materiału PC1 obliczonych na podstawie wyników stężenia toronu zarejestrowanego miernikiem AlphaGUARD DF 2000.



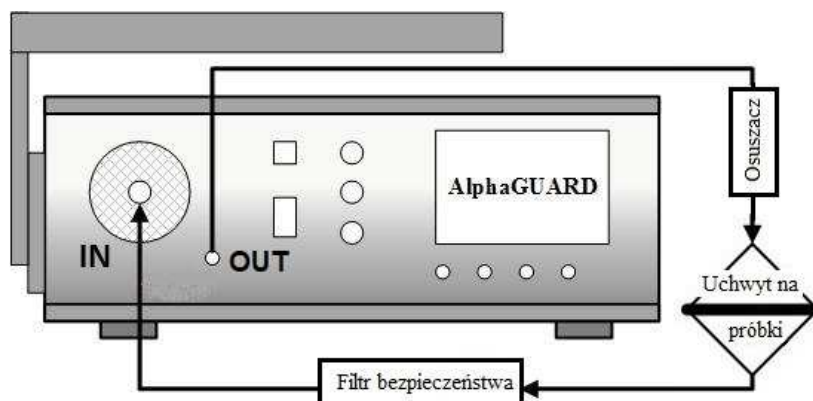
Rys. 5.36 Zależność współczynnika emanacji toronu od wartości stężenia aktywności ^{224}Ra dla różnych frakcji ziaren materiału PC1.

Pomimo zbliżonych wartości stężenia aktywności ^{224}Ra w próbkach widać różnicę w wartościach współczynnika emanacji toronu. Potwierdza to, że wartość współczynnika emanacji nie zależy wyłącznie od wartości stężenia aktywności ^{224}Ra w próbkach, ale również od wielkości ziarna i przestrzeni międzyziarnowych.

5.4 Badanie wpływu wilgotności na współczynnik emanacji toronu

Jednym z czynników, które mogą wpływać na rejestrowaną wartość stężenia toronu jest wilgotność powietrza w układzie pomiarowym. W związku z tym do układu pomiarowego zawierającego miernik AlphaGUARD DF 2000 dołączono osuszacz, co

pozwoiliło na zmniejszenie wilgotnoœci powietrza z okoœo 40% do 20%. Osuszacz podl¹czony by³ do uk³adu przed próbka, tak jak pokazano to na Rys. 5.37 .

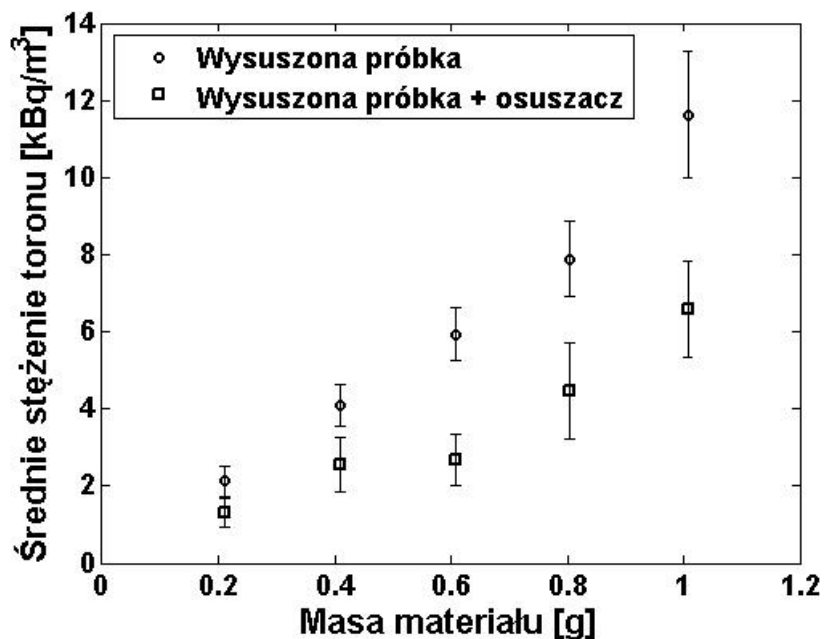


Rys. 5.37 Schemat układu pomiarowego z dodatkowym osuszaczem.

W przedstawionej metodzie zaleca się, aby układ pomiarowy miał jak najmniejszą objętość i wprowadzenie do niego osuszacza może mieć niekorzystny wpływ na otrzymane wyniki stężenia toronu. Jednak podobnie, jak w przypadku różnej długości rurek pomiarowych większa objętość układu może nie mieć wpływu na wartość współczynnika emanacji toronu, jeśli zostanie uwzględniona w obliczeniach.

Przy sprawdzeniu wpływu wilgotności powietrza w układzie, należało wyeliminować wpływ wilgotności badanego materiału próbki. Do pomiarów wykorzystano piasek monacytowy (PC1), który wcześniej wysuszono w suszarce w temperaturze 105°C przez 24 godziny. Wilgotność masowa względna próbki PC1 wynosiła 0,24%.

Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału dla wysuszonej próbki z zastosowaniem osuszacza i bez niego przedstawia Rys. 5.38.



Rys. 5.38 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PC1 dla wysuszonej próbki z osuszaczem i bez niego (AlphaGUARD DF 2000).

Różnice w stężeniach toronu dla pomiarów wykonanych z wykorzystaniem osuszacza i bez niego wynosiły od $0,8 \text{ kBm}^{-3}$ do 5 kBm^{-3} . W Tabeli 5.10 przedstawiono współczynniki emanacji toronu materiału PC1 dla wysuszonej próbki z zastosowania w układzie pomiarowym osuszacza oraz bez niego. Ze względu na zwiększenie objętości układu pomiarowego przez dodanie osuszacza ($V = 9,69 \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-3}$) określono nowy współczynnik korekcji ($w = 0,58$) i wykorzystano go w obliczeniach współczynnika emanacji. W obliczeniach bez zastosowania osuszacza współczynnik korekcji wynosił $w = 0,631$.

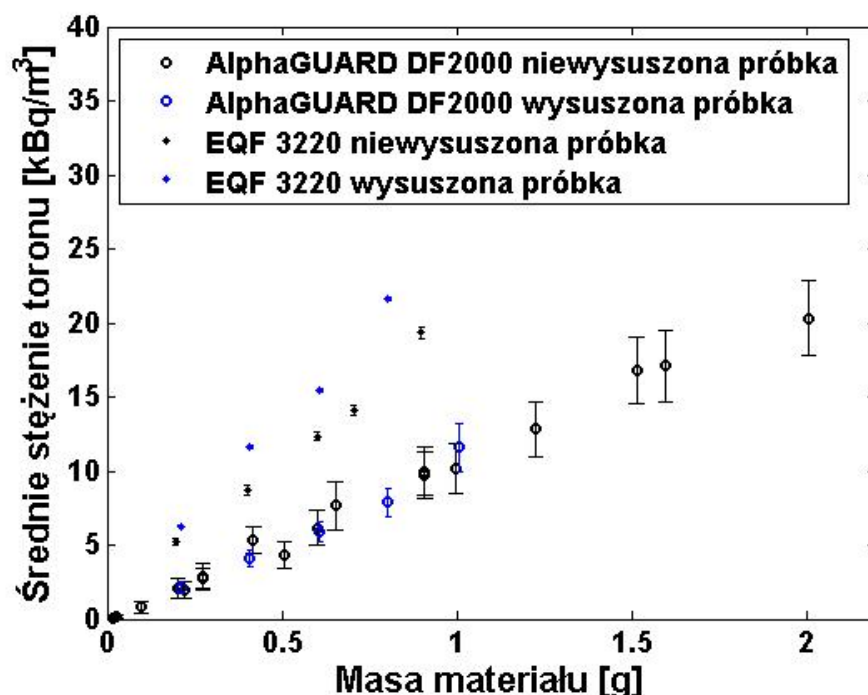
Tabela 5.10 Współczynnik emanacji toronu f dla wysuszonej próbki przy zastosowaniu osuszacza i bez niego.

Współczynnik emanacji toronu f [-]	
Wysuszona próbka	$0,14 \pm 0,01$
Wysuszona próbka + osuszacz	$0,08 \pm 0,01$

W obliczonych wartościach współczynnika emanacji widać dużą różnicę wynoszącą $0,06$ między wynikami pomiarów dla wysuszonej próbki z osuszaczem oraz bez niego. Dokładna znajomość objętości układu pomiarowego jest niezbędna do poprawnego obliczenia współczynnika emanacji toronu. Rzeczywista objętość osuszacza jest trudna do dokładnego określenia. Osuszacz to pojemnik wypełniony granulkami silikażelu pochłaniającymi wilgoć. Dodatkowo podczas przepływu powietrza z toronem przez osuszacz dochodzi w nim do rozpadu atomów toronu, co prowadzi do obniżenia rejestrowanego stężenia toronu przez miernik, a w konsekwencji do zaniżonej wartości współczynnika emanacji.

W związku z tym w pomiarach stężenia toronu stosowano układ pomiarowy bez osuszacza. W przypadku wykorzystywania mierników, dla których wilgotność powietrza ma duży wpływ na otrzymane wyniki (m.in. RAD7) producenci zalecają zmniejszenie wilgotności za pomocą osuszacza przed rozpoczęciem pomiarów stężenia toronu. W pomiarach z wykorzystaniem miernika RAD7 stosowano osuszacz do obniżenia wilgotności powietrza w układzie pomiarowym, następnie usuwano z układu osuszacz, a w jego miejsce wprowadzano uchwyt z próbką.

W opisanych powyżej pomiarach wysuszono jedynie materiał próbki, jednak filtry również mogą zawierać wilgoć. W pomiarach wykorzystano filtry z włókna szklanego 0,7 μm , które są hydrofilowe, czyli mogą absorbować wodę. W celu sprawdzenia wpływu wilgotności filtrów wysuszony materiał PC1 zamknięty między dwoma filtrami został ponownie wysuszony w suszarce w temperaturze 105°C przez minimum 24 godziny. Ze względu na to, że materiał PC1 był już wcześniej wysuszony względna masowa wilgotność odnosi się tylko do filtrów i wynosi od 0,6 do 3%. Różnicę między wartościami stężenia toronu dla wysuszonej próbki razem z filtrami i niewysuszonej próbki przedstawia Rys. 5.39.



Rys. 5.39 Średnie stężenie toronu w funkcji masy materiału PC1 dla wysuszonej razem z filtrami próbki i dla niewysuszonej próbki (AlphaGUARD DF 2000 i EQF 3220).

W przypadku pomiarów miernikiem AlphaGUARD DF 2000 różnica wartości współczynników emanacji dla niewysuszonej i wysuszonej próbki wynosi 0,01 i zawiera się w granicach niepewności pomiarowych, co przedstawia Tabela 5.11. W przypadku pomiarów

miernikiem EQF 3220 ta różnica jednak jest już większa i wynosi 0,06. Współczynnik emanacji toronu uzyskany z pomiarów miernikiem EQF 3220 dla wysuszonej próbki jest zbliżony do współczynników emanacji toronu obliczonych na podstawie pomiarów wykonanych miernikiem AlphaGUARD DF 2000. Niższa wartość f dla niewysuszonej próbki obliczona na podstawie wyników z miernika EQF 3220 może nie być bezpośrednio związana z wilgotnością próbki, gdyż była ona bardzo mała (0,24%), ale z wilgotnością powietrza w zamkniętym układzie pomiarowym. Wilgotność mogła się zwiększyć podczas wietrzenia detektora, jeśli wilgotność powietrza atmosferycznego zwiększyła się od ostatniego pomiaru. Dla niewysuszonych próbek wilgotność w zamkniętym układzie pomiarowym wynosiła od 30% do około 65%, natomiast dla wysuszonych próbek około 30%. Wysuszony filtr zaabsorbował wodę z powietrza zmniejszając wilgotność w układzie pomiarowym. Producent urządzenia EQF 3220 nie zaleca jednak stosowania osuszaczy, czy jakiegokolwiek korekcji otrzymanych stężeń pod względem wpływu wilgotności. Przedstawione wyniki wskazują jednak, że wpływ wilgotności powietrza w układzie z miernikiem EQF 3220 nie jest zaniedbywalny.

Tabela 5.11 Współczynnik emanacji toronu materiału PC1 dla wysuszonej i niewysuszonej próbki otrzymany za pomocą mierników AlphaGUARD DF 2000 i EQF 3220.

	AlphaGUARD DF 2000	EQF 3220
	$f [-]$	$f [-]$
Niewysuszona próbka	$0,13 \pm 5 \cdot 10^{-3}$	$0,09 \pm 6 \cdot 10^{-3}$
Wysuszona próbka	$0,14 \pm 0,01$	$0,13 \pm 0,01$

Jednym z celów tej pracy było sprawdzenie wpływu wilgotności materiału na współczynnik emanacji toronu. Do tego eksperymentu użyto miernika AlphaGUARD DF 2000 oraz materiału PC1. Wysuszony materiał PC1 zważono, a następnie dodawano do niego wody w celu zwiększenia jego wilgotności. W początkowych pomiarach wykorzystano filtry z włókna szklanego 0,7 μm , jednak filtry te były hydrofilowe. Wiązało się to z wchłanianiem przez nie wody z materiału i zatykanie przez nią nanoporów filtra. Blokowało to przepływ w układzie, jak również zmniejszało wilgotność samego materiału. W związku z tym do tego eksperymentu zakupiono filtry hydrofobowe PCTE, które nie wchłaniały wody z materiału. Niestety ze względu na bardzo małą masę próbki już po pierwszym pomiarze była ona całkowicie wysuszona, co nie zdarzało się podczas pomiarów z filtrem z włókna szklanego 0,7 μm . W przypadku tych próbek w czasie pomiaru wilgotność próbki ulegała niemożliwym do określenia zmianom. Uniemożliwia to wyznaczenie współczynnika emanacji toronu metodą stosowaną w pracy, gdzie do obliczeń współczynnika emanacji toronu zawsze brano

średnią z kilku pomiarów tej samej próbki, a tutaj mamy do dyspozycji tylko jeden wynik stężenia toronu, przy nieokreślonej wilgotności. W związku z tym rozpatrywanie zależności wartości współczynnika emanacji toronu od wilgotności przy możliwości wykonania jedynie pojedynczego pomiaru dla danej masy materiału dawałoby niemiernodajne wyniki. Planowana jest modyfikacja układu pomiarowego w celu zbadania tej zależności.

6. Podsumowanie i wnioski

Przedmiotem pracy było badanie zjawiska emanacji toronu. Jest to proces zależny od wielu czynników, a jego opis ilościowy nie jest prosty.

Głównym celem pracy było określenie współczynnika emanacji toronu dla różnych materiałów z zastosowaniem techniki pomiarowej „powder sandwich”, przystosowanej w ramach pracy do aparatury pomiarowej będącej na wyposażeniu LER IFJ PAN. Przedstawione w pracy wyniki potwierdziły przydatność wykorzystanej techniki pomiarowej.

W porównaniu do technik opisanych w rozdziale 3 technika „powder sandwich” jest stosunkowo prosta. Główne zalety tej metody to możliwość badania bardzo małej próbki (o masie poniżej 0,5 g) oraz mała objętość zamkniętego układu pomiarowego, dzięki czemu toron uwalniający się z ziaren materiału prawie w całości jest rejestrowany przez miernik. W technice tej można wykorzystać każdy miernik pozwalający określić stężenie toronu w trybie przepływowym. Technika nie wymaga skomplikowanego procesu przygotowania próbki i dużych nakładów finansowych oraz nadaje się do określania współczynnika emanacji toronu dla materiałów naturalnych, jak również przetworzonych (TENORM).

W ramach pracy wyznaczono wartości współczynników emanacji dla 5 różnych rodzajów próbek. W sumie przebadano 16 próbek. Opis badanych materiałów znajduje się w rozdziale 4.1, a wyznaczone wartości współczynników emanacji toronu zebrano w Tabeli 5.7. Najniższy współczynnik emanacji toronu ($f = 9 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$) zaobserwowano dla próbki PB1 zaś najwyższy ($f = 0,18 \pm 0,06$) dla próbki TW1.

W ramach udoskonalenia stosowanej metody, maksymalnie skrócono drogę transportu toronu od próbki do miernika, aby atomy toronu w jak najmniejszym stopniu uległy rozpadowi przed dotarciem do detektora. Wykonano również specjalny uchwyt na próbki o jak najmniejszej objętości, co umożliwiło zmniejszenie objętości całego układu pomiarowego. Objętość ta zależy zatem głównie od objętości stosowanego miernika stężenia toronu. Dzięki zamkniętemu układowi pomiarowemu rejestrowane stężenie toronu pochodzi wyłącznie z badanej próbki. Ze względu na możliwość zastosowania małych mas materiału, grubość próbek mogła być bardzo mała, nawet poniżej 3 mm. Przy masach poniżej 0,5 grama warstwa materiału składała się nawet z pojedynczych ziaren. Z układu wyeliminowano wszelkie elementy mogące zaniżyć rejestrowane stężenie toronu, tj. osuszacz, czy duży pojemnik (uchwyt) na próbki.

Przebadano wpływ różnych elementów układu pomiarowego na wartość współczynnika emanacji badanego materiału. Pierwszym badanym elementem układu pomiarowego były filtry utrzymujące próbkę oraz filtr bezpieczeństwa. Zbadano pięć różnych rodzajów filtrów między którymi umieszczana jest próbka. Filtry te różniły się rodzajem materiału, grubością i wielkością porów. Uzyskane wyniki wykazały, że w stosowanej metodzie, parametry filtrów nie wpływają znacząco na otrzymane wartości współczynnika emanacji toronu. Różnice w wyznaczonych wartościach współczynnika emanacji dla badanej próbki przy zastosowaniu różnych filtrów nie przekraczały 25 %.

Kolejnym badanym elementem układu pomiarowego była sumaryczna długość rurek połączeniowych. W rozdziale 5.1.2 wykazano, że długość ta, a tym samym objętość całego układu pomiarowego wpływa na wartość zarejestrowanego stężenia toronu, jednakże nie ma wpływu na wartość obliczonego współczynnika emanacji toronu, ponieważ objętość rurek połączeniowych musi być uwzględniona w obliczeniach. Dla próbek o niskiej wartości współczynnika emanacji toronu zaleca się jednak stosowanie jak najkrótszych rurek połączeniowych.

Zbadano także wpływ ustawienia uchwytu z próbką tj. pionowe i poziome. Uzyskane wyniki nie wykazały wpływu pozycji uchwytu na wartość współczynnika emanacji toronu z próbki (rozdział 5.1.3).

Przedstawione powyżej wyniki badań wykazały uniwersalność zastosowanej metody i możliwość jej stosowania z różnymi typami mierników stężenia toronu.

W kolejnym etapie pracy wykonano pomiary stężenia toronu w funkcji masy badanego materiału przy użyciu trzech mierników stężeń toronu: AlphaGUARD DF 2000, EQF 3220 i RAD7, które różniły się między sobą parametrami technicznymi oraz metodą pomiaru stężenia toronu. Współczynniki emanacji toronu określone na podstawie wyników otrzymanych z pomiarów tej samej próbki, za pomocą różnych mierników, różniły się między sobą do 110% (rozdział 5.2). Było to związane z różnicą w objętościach komór pomiarowych mierników. Największe stężenia toronu rejestrowano za pomocą miernika EQF 3220, który posiada komorę pomiarową o najmniejszej objętości (0,25 dm³). Zastosowana technika pomiarowa powinna być uniwersalna i pozwalać na porównanie wyników bez względu na różnicę w parametrach samych mierników. W związku z tym zaproponowano wprowadzenie współczynnika korekcyjnego, który uwzględnia wpływ objętości układu i prędkość przepływu powietrza przez próbkę na otrzymane wyniki stężenia toronu. Po wprowadzeniu

współczynnika korekcyjnego wyznaczonego dla danego miernika, obliczone współczynniki emanacji toronu dla tych samych materiałów były do siebie zbliżone (maksymalna różnica 4%).

W wielu pracach zajmujących się obliczeniami modelowymi współczynnika emanacji toronu/radonu, główne uwzględniane parametry to: położenie atomów ^{224}Ra i ^{226}Ra w ziarnach, ich stężenia aktywności w próbce oraz geometria ziarna. Przedstawione w rozdziale 5.2 wyniki wykazują, że większa wartość współczynnika emanacji toronu nie jest powiązana wyłącznie z wysokim stężeniem aktywności ^{224}Ra w próbce. Wynika z tego, że na wartość współczynnika emanacji toronu mają też wpływ inne czynniki takie jak rozmiar ziaren i przestrzeni międzyziarnowej.

W rozdziale 5.3 zbadano wpływ rozmiaru ziaren na wartość współczynnika emanacji toronu. Dla próbek PM1 – PM6 o zbliżonych wielkościach ziaren (średnica ziarna poniżej 0,355 mm), obliczone współczynniki emanacji miały zbliżone wartości, pomimo różnic w wartościach stężenia aktywności ^{224}Ra w próbce.

W celu zbadania wpływu wielkości ziaren próbki na wartość współczynnika emanacji toronu rozdzielono materiał próbki PC1 na 4 frakcje ziaren.

Wyznaczone wartości współczynników emanacji toronu dla różnych frakcji ziaren materiału PC1 nie były takie same. Największą wartość współczynnika emanacji toronu spodziewano się uzyskać dla najmniejszych ziaren (frakcja I) a najmniejszą wartość dla największych ziaren (frakcja IV). Otrzymane wyniki nie potwierdziły tego przypuszczenia. Wskazuje to na fakt, że przy modelowaniu procesu emanacji toronu nie można brać pod uwagę wyłącznie pojedynczego ziarna, ale należy uwzględnić wpływ sąsiednich ziaren oraz objętość i kształt przestrzeni międzyziarnowych.

Dla frakcji ziaren materiału PC1 nie zaobserwowano także jednoznacznej proporcjonalności pomiędzy wartością współczynnika emanacji toronu, a wartością stężenia aktywności ^{224}Ra w próbce, co potwierdza wcześniejszy wniosek, że współczynnik emanacji toronu nie zależy wyłącznie od wartości stężenia aktywności ^{224}Ra w próbce.

Ostatnim badanym czynnikiem mającym wpływ na wartość współczynnika emanacji toronu była wilgotność próbki. Niestety wprowadzenie osuszacza do układu pomiarowego (co umożliwiłoby pomiar próbek o różnej wilgotności) spowodowało zaniżenie rejestrowanego stężenia toronu, a co za tym idzie zmniejszenie wartości współczynnika emanacji toronu,

której nie udało się skorygować za pomocą stosowanego współczynnika korekcji. Element ten nie został zatem na stałe wprowadzony do układu pomiarowego.

Ze względu na bardzo małe masy próbek badanych tą techniką nie udało się określić zależności wartości współczynnika emanacji toronu od wilgotności materiału próbki. Wymuszony przepływ powietrza przez bardzo cienką próbkę uniemożliwił utrzymanie stałej wilgotności próbki w czasie pomiaru. Przepływ powietrza powodował bardzo szybkie wysuszenie próbki, co uniemożliwiło utrzymanie różnych wilgotności próbki w trakcie pomiaru. Ponadto, metoda pomiaru stężenia toronu w mierniku RAD7 wymaga bardzo niskiej wilgotności powietrza w układzie (poniżej 6%), co dodatkowo utrudnia badanie wpływu wilgotności próbki na wartość współczynnika emanacji toronu. W trakcie pomiarów zaobserwowano także wyraźny wpływ wilgotności powietrza w komorze pomiarowej na wskazania miernika EQF3220. Wyższa wilgotność powietrza powoduje wyraźne obniżenie wydajności detekcji toronu w tym mierniku. Wynika z tego, że pomimo braku zaleceń od producenta, przed pomiarem należy zmniejszyć wilgotność w układzie pomiarowym, podobnie jak w przypadku miernika RAD7.

Kontynuacją przedstawionych w pracy badań może być udoskonalenie układu pomiarowego, w celu umożliwienia badania wpływu wilgotności próbki na współczynnik emanacji toronu.

Uzyskane w pracy wyniki mogą przyczynić się do udoskonalenia modelowania procesu emanacji toronu poprzez uwzględnienie parametru opisującego wpływ objętości i kształtu przestrzeni międzyziarnowych.

Bibliografia:

- [Alp17] User Manual 01, 2017, AlphaGUARD Professional Radon Monitor Type DF2000. Saphymo Company, <http://www.saphymo.com>, Accessed date: 13 March 2018;
- [Bie95] Biermann A.H., Sawyer, S.R., 1995, Attachment of radon progeny to cigarette-smoke aerosols., Published through SciTech Connect., UCRL-CR--120647;
- [Chi18] Chitra N., Danalakshmi B., Supriya D., Vijayalakshmi I., Bala Sundar S., Sivasubramanian K., Baskaran R., Jose M.T., 2018, Study of Radon and Thoron exhalation from soil samples of different grain sizes., *Applied Radiation and Isotopes* **133**, 75–80;
- [Cot87] Cothorn C. R., Smith Jr J. E, 1987, *Environmental Radon*, Plenum Press, New York;
- [Dar05] Darby S, et al. 2005, Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies., *BMJ* **330** (7485):223;
- [Den13] Denton G. N. W, Namazi S., 2013, Indoor Radon Levels and Lung Cancer Incidence on Guam., *Procedia Environmental Sciences* **18**, 157-166;
- [Gre96] Greeman D.J., Rose A.W., 1996, Factors controlling the emanation of radon and thoron in soils of the eastern., U.S.A. *Chemical Geology*, **129**, 1–14;
- [Grz18] Grzadziel D., Kozak K., Mazur J., Mroczek M., 2018, Application of ISOCS system in the laboratory efficiency calibration., *Journal of Environmental Radioactivity* **188**, 95-99;
- [Hos07] Hosoda M., Shimo M., Sugino M., Furukawa M., Fukushi M., 2007, Effect of Soil Moisture Content on Radon and Thoron Exhalation., *Journal of Nuclear Science and Technology*, **44**, No. 4 664–672;
- [Ish13] Ishimori Y., Lange K., Martin P., Mayya Y.S., Phaneuf M., 2013, Measurement and Calculation of Radon Releases from NORM Residues. Technical Reports series No. 474, International Atomic Energy Agency, Vienna;
- [Jan05] Janik M., 2005, Przenikanie radonu z gruntu do budynku. Modelowanie komputerowej weryfikacja w budynkach mieszkalnych, Praca doktorska, Raport nr 1966/ AP IFJ PAN;
- [Jan15] Janik M., Omori Y., Yonehara H., 2015, Influence of humidity on radon and thoron exhalation rates from building materials., *Applied Radiation and Isotopes*, **95**, 102-107;
- [Jon16] Jónás J., Sas Z., Vaupotic J., Kocsis E., Somlai J., Kovács T., 2016, Thoron emanation and exhalation of Slovenian soils determined by a PIC detector-equipped radon monitor, *NUKLEONIKA*, **61** (3), 379-384;

- [Kan13] Kanse S.D., Sahoo B. K., Sapra B.K., Gaware J.J., Mayya Y.S., 2013, Powder sandwich technique: A novel method for determining the thoron emanation potential of powders bearing high ^{224}Ra content., *Radiation Measurements*, **48**, 82-87;
- [Mag18] Magnoni M., Chiaberto E., Prandstatter A., Serena E., Tripodi R., 2018, Thoron exhalation rate in stony materials: A simplified approach., *Construction and Building Materials*, **173**, 520-524;
- [Mar92] Markkanen, M., Arvela, H., 1992. Radon emanation from soils., *Radiation Protection Dosimetry* **45**, 269–272;
- [May12] Mayya Y.S., Mishra R., Prajith R., Gole A.C., Sapra B.K., Chougankar M.P., Nair R.R., Ramola R.C., Karunakara N., Koya P.K., 2012, Deposition-based passive monitors for assigning radon, thoron inhalation doses for epidemiological studies., *Radiation Protection Dosimetry*, **152** (1-3), 18–24;
- [Maz08] Mazur J., 2008, Dynamika procesu ekshalacji radonu z gruntu a parametry meteorologiczne i własności gleby., *Praca doktorska, Raport IFJ PAN Nr 2014/Ap*;
- [Mis97] Misdaq M.A., Moustaidine H., 1997, A new method for determining the radon emanation coefficients and radon production rates in different building materials using solid state nuclear track detectors., *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **218**, No. 1, 9-12;
- [Mis05] Misdaq M.A., Amghar A., 2005, Radon and thoron emanation from various marble materials: impact on the workers, *Radiation Measurements*, **39**, 421 – 430;
- [Naz88] Nazaroff W.W., Nero Jr A.V., 1988, *Radon and its decay products in indoor air.*, New York: John Wiley and Sons;
- [Pro00] Proctor, Robert N. 2000, *The Nazi War on Cancer.*, Princeton University Press, 99, ISBN 0691070512;
- [Rad19] User Manual, Revision 21.05.2019. RAD7 Electronic radon detektor, DURRIDGE Company Inc., <https://durridge.com/support/product-manuals/>, Accessed date: 13 June 2019;
- [Ram10] Ramachandran T.V., 2010, Environmental thoron (^{220}Rn): A review., *Iran, Journal of Radition Research*, **8** (3), 129-147;
- [Ram12] Ramola R.C., Gusain G.S., Rautela B.S., Sagar D.V., Prasad G., Shahoo S.K., Ishikawa T., Omori Y., Janik M., Sorimachi A., Tokonami S., 2012, Levels of thoron and progeny in high background radiation area of southeastern coast of Odisha., *India, Radiat Protection Dosimetry*, **152** (1-3), 62-65;
- [Sah13] Sahoo B. K., 2013, *Modeling and Measurement of Radon and Thoron Emission from Naturally Occurring Radioactive Materials.*, Praca doktorska, Bhabha Atomic Research Centre, Mumbai;

- [Sak10] Sakoda A., Ishimori Y., Hanamoto K., Kataoka T., Kawabe A., Yamaoka K., 2010, Experimental and modeling studies of grain size and moisture content effects on radon emanation., *Radiation Measurements* **45**, 204–210;
- [Sak11] Sakoda A., Ishimori Y., Yamaoka K., 2011, A comprehensive review of radon emanation measurements for mineral, rock, soil, mill tailing and fly ash., *Radiation and Isotopes* **69**, 1422–1435;
- [Sak16] Sakoda A., Meisenberg O., Tschiersch J., 2016, An approach to discriminatively determine thoron and radon emanation rates for a granular material with a scintillation cell., *Radiation Measurements*, **89**, 8-13;
- [Sar12] Sarad, (2012). Manual RTM2200- RPM2200 - EQF3200 - EQF3220 - A2M4000. SARAD GmbH, Germany, Accessed date: November 2018, https://www.sarad.de/product-detail.php?lang=en_US&cat_ID=3&p_ID=27;
- [Sas04] Sasaki T., Gunji Y., Okuda T., 2004, Radon Emanation Dependence on Grain Configuration., *Journal of Nuclear Science and Technology*, **41**, No. 10, 993–1002;
- [Sem91] Semkow, T.M., 1991, Fractal model of radon emanation from solids, *Physical Review Letters*, **66**, 3012–3015;
- [Smi88] Smith. M.R., Lautensleger, A.W. and LauL J.C., 1988. A New method for the determination of radium-228, thorium-228 and radium-224 in groundwater via thoron (radon-220)., *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **123**, 107-119;
- [Uji08] Ujic. P., Celikovic. I., Kandic. A., Zunic. Z., 2008. Standardization and difficulties of the thoron exhalation rate measurements using an accumulation chamber., *Radiation Measurements*, **43** (8), 1396-1401;
- [UNS00] UNSCEAR, 2000. United Nation Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation., Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation., Report to the General Assembly, United Nation, New York;
- [Wan17] Y. Wang, L. Zhang, Q. Guo, 2017, The experimental study on the emanation power of a flow-through thoron source made from incandescent gas mantles, *Journal of Radiological Protection*, **37** (4), 918-926;
- [WHO09] World Health Organization, 2009, WHO handbook on indoor radon a public health perspective., ISBN 978 92 4154767 3.