Определяне на дължина на дифузия и разтворимост на ²²²Rn в пластмасови сцинтилатори

Чавдар Дуцов

Дипломна работа за придобиване на степен Бакалавър по Физика Научен ръководител: **доц. д-р Красимир Митев**



Физически Факултет Софийски Университет "Св. Климент Охридски" София, юли 2016г.

Благодарности

Благодаря на моя ръководител Красимир Митев за предоставената ми възможност да работя върху такава интересна и значима тематика. Благодаря му за това, че ми дава един страхотен пример като работи толкова неуморно и с такъв хъс. Благодаря за всичко което съм научил по времето на съвместна работа и извън него.

Благодаря на Страхил Георгиев за помощта която ми предостави за много части от тази работа. Благодаря му за това, че ме научи как да използвам компютърната програма за моделиране на решенията на уравнението на дифузия и за графиките, които ми помогна да направя или направи сам.

Благодаря на Татяна Бошкова за всички съвети които ми дава и за помощта и свързана с тази работа, а и извън нея. Благодаря за всичко научено.

Благодаря на всички колеги в колектива на лабораторията по Дозиметрия и Лъчезащита.

Благодаря на майка си, Ирина Захариева, за цялата подкрепа по времето на следването ми. Благодаря ѝ за това, че ми предостави възможността да се занимавам с това което обичам.

Съдържание

1	Уво,	д		5
2	Орга	анични	сцинтилатори	7
	2.1	Принц	ип на действие	7
	2.2	Видов	е луминесценция	8
		2.2.1	Флуоресценция	8
		2.2.2	Фосфоресценция	9
		2.2.3	Забавена флуоресценция	10
	2.3	Видов	е органични сцинтилатори	10
	2.4	Проце	с на сцинтилация	11
	2.5	Йониз	ационно гасене	11
	2.6	Произ	ход на бавната сцинтилационна компонента	12
	2.7	Транс	фер на енергия	13
		2.7.1	Първичен процес	14
		2.7.2	Вторичен процес и светене в двукомпонентни и трикомпонент-	
			ни системи	14
	2.8	Прило	жение	15
3	Рад	он. Абс	сорбция на радон в пластмасови сцинтилатори	16
	3.1	Радон	и дъщерните му продукти	16
	3.2	Абсорб	бция на радон в пластмасови сцинтилатори	18
		3.2.1	Физика на процеса	18
		3.2.2	Дължина на дифузия	19
		3.2.3	Ефективност за отбор ε_s на пластмасови сцинтилатори	20
		3.2.4	Профил на активността	21
	3.3	Измер	ване на активност на ²²² Rn абсорбирана в пластмасов сцинтилатор	22
		3.3.1	Принцип на измерване и устройство на детектора	22
		3.3.2	Ефективност за регистрация	23

4	Експериментална част 25							
	4.1	Въведение						
	4.2	Използвани сцинтилатори						
	4.3	3 Описание на облъчвания и измервания						
		4.3.1 Облъчване на проби за експеримент " L_D "	27					
		4.3.2 Измервания при експеримент " L_D "	31					
		4.3.3 Описание на облъчването в експеримент "К"	32					
		4.3.4 Измервания при експеримент "К"	34					
5	Резу	ултати	35					
	5.1	Оценка на ефективност за регистрация ε_c за пластма сови сцинтила-						
		тори във въздух	35					
	5.2 Оценка на дължината на дифузия 37							
	5.3	Оценка на разтворимостта К	38					
	5.4	Оценка на разделителната способност	40					
6	Зак.	лючение	42					

Увод

 222 Rn е благороден газ и алфа-лъчител с период на полуразпадане 3.82 дни и е естествен радионуклид, получаващ се от дълго живущия 226 Ra, който се намира в земната кора. Способността му да прониква лесно през прегради и да се натрупва в жилищни помещения води до големия му принос за облъчване на човека от естествени източници (приносът му е над 50% от облъчването от естествени източници [1]). 222 Rn е идентифициран като втория по значимост причинител на рак на белите дробове след тютюнопушенето [1].

През последните десетилетия е показана възможността на някои пластмаси като полипропилен [2], полиетилен [3], полистирен [4], поликарбонати [5], пластмасови сцинтилатори ([6] и [7]) и други да абсорбират радиоактивни благородни газове. Това свойство позволява на някои пластмасови сцинтилатори да бъдат използвани за измерването на радон и други радиоактивни благородни газове (РБГ), което би намерило приложение за радиационен контрол в атомни електроцентрали, радиационна защита и други.

Пластмасовите сцинтилатори са широко използвани за детектирането на алфа, бета и бета-гама излъчващи радионуклиди, както и за неутрони [8]. Намират приложение в детекторни системи, използвани за множество предназначения, като например портални детектори за радиоактивност за приложения в "Homeland Security" [9], детекторни системи, търсещи безнеутринен двоен бета-разпад [10], неутринни изследвания [11] и адронна калориметрия [12] в експерименти във физика на високите енергии.

Сорбция наричаме навлизането на РБГ от околната среда в полимера, а десорбция процеса на изпускане на РБГ от него. Сорбцията и десорбцията на РБГ в полимери се описва адекватно с уравнението на дифузия [5], като за моделиране на поведението на ²²²Rn в материала са нужни два параметъра, които зависят от структурата на полимера - дължина на дифузия (средното разстояние, което атом на газа изминава в полимера преди да се разпадне) и разтворимост (отношението на концентрацията на газа на повърхността на полимера към концентрацията на газа във външната среда). След определянето на тези два параметъра може да се описва поведението на РБГ за произволни размери на полимера, за който са определени, произволна външна активност на средата, в който е поставен и за произволно време на сорбция и десорбция.

Целта на настоящата работа е да се определят параметрите дължина на дифузия " L_D " и разтворимост "K" на ²²²Rn за EJ-212 и BC-400 пластмасови сцинтилатори. Тези сцинтилатори са налични на пазара и имат широк спектър на приложения. Определена е разделителната способност по енергии за пиковете на алфа-лъчите на ²²²Rn и неговите дъщерни продукти в тях. Тя е важна характеристика ако съответният пластмасов сцинтилатор се използва като детектор на радон.

След определянето на тези параметри става възможно моделирането на динамиката на 222 Rn в пластмасовите сцинтилатори. От една страна определените параметри могат да служат като основа за разработката на детектори за 222 Rn на основата на пластмасови сцинтилатори. От друга страна сцинтилатори от такъв тип се използват в експерименти във физика на високите енергии, намиращи се под земята, където концентрациите на радон са високи и допринасят значително за фона на детектора.

Органични сцинтилатори

2.1 Принцип на действие

Луминесценция наричаме излъчването на светлина с характеристичен спектър след поглъщането на лъчение, обикновено с енергия по-висока от тази на излъчването. Тя е явление, което асоциираме с ароматни органични молекули и е вътрешно присъщо свойство, възникващо от електронната структура на тези молекули. За разлика от молекулите на повечето неорганични съединения, молекулите на органичните материали са слабо свързани чрез сили на Ван дер Ваалс и запазват своята идентичност, електронна структура и луминесценция ([13] виж глава 3.1).

Структурата на органичните молекули се определя в голяма степен от електронната структура на въглеродния атом. Електронната конфигурация на основното състояние на С атома (Z = 6) е $1s^22s^22p^2$. При формирането на съединения, един от 2s електроните преминава във възбудено 2p състояние, така че електронната конфигурация на възбудения С атом е $1s^22s^2p^3$. При свързването си в наситени, двойни и тройни връзки, четирите валентни електрона на въглерода, един 2s и три 2p, се хибридизират в три различни конфигурации.

Първата конфигурация е sp^3 при която електроните образуват четири еквивалентни хибридни орбитали, насочени по ръбовете на правилен тетраедър. Тази конфигурация се появява при диамант, метан (CH_4) и други наситени съединения. Те не проявяват свойството луминесценция ([13] виж глава 3.1).

Втората конфигурация е sp^2 , при която една от p орбиталите остава непроменена и се образуват три еквивалентни хибридни орбитали, насочени към ъглите на равностранен триъгълник. Тази конфигурация образува пръстеновидната структура на бензена и на ароматните въглеводороди, които са планарни молекули. Хибридните орбитали, разположени в равнината на молекулата, се наричат още σ електрони, а техните връзки - σ връзки. Непроменената p орбитала е симетрична спрямо равнината на молекулата и се нарича π електрон, а връзката π връзка.

В бензена, σ хибридните орбитали си взаимодействат така че да образуват лока-

лизирани С-Н и С-С връзки. Шестте π атомни орбитали на бензена формират шест π напълно делокализирани молекулни орбитали (виж Фиг. 2.1). Подобни системи от делокализирани π орбитали възникват и в други ароматни молекули и техните възбудени състояния са причината за луминесценцията на тези молекули.



Фигура 2.1: В ляво е показана молекулата на бензена с шестте отделни π атомни орбитали, а в дясно са представени делокализираните молекулни орбитали след припокриването на атомните орбитали. [14]

Третата конфигурация е при *sp* хибридизацията, при която две от *p* орбиталите остават непроменени, а една *s* и една *p* орбитала образуват хибридни σ орбитали. Те са ориентирани на 180° една от друга, докато двете незасегнати *p* орбитали образуват две π връзки, като тези въглеводороди имат тройна връзка между два C атома, например ацетилена (H-C=C-H). Тези тройно свързани молекули също проявяват луминесценция.

2.2 Видове луминесценция

Съществуват три типа луминесценция, които могат да възникнат в органични молекули. Те са:

- 1. флуоресценция
- 2. фосфоресценция (β -процес)
- 3. забавена флуоресценция (*α*-процес)

2.2.1 Флуоресценция

Флуоресценция наричаме излъчването на фотон при преминаването на молекулата от възбудено S_1 състояние до основно S_0 състояние. Средното време на живот на

 S_1 е от порядъка на 10^{-8} до 10^{-9} секунди, което е дълго в сравнение с периода на вибрациите на молекулата, от порядъка на 10^{-12} секунди, така че тя достига до термодинамично равновесие преди излъчване и то се осъществява от основното вибрационно ниво на S_1 . Интензитетът на флуоресценцията намалява експоненциално с времето по закона [13]:

$$I = I_0 \exp(-t/\tau) \tag{2.1}$$

където I_0 , I са интензитетите на светлината във време съответно t = 0 и t, а τ е времето на живот на флуоресценцията. Въпреки че π -електрона може да бъде възбуден до което и да е синглетно състояние $S_1, S_2, S_3...$ нивата след S_1 проявяват ефективни и бързи, от порядъка на 10^{-11} секунди, безрадиационни преходи между съседни възбудени състояния. Молекулно състояние, възбудено до което и да е π синглетно състояние се довежда бързо до основното синглетно състояние S_1 чрез вътрешен обмен на енергия между електронни нива и последващо разсейване на остатъчната вибрационна енергия ([13] виж Глава 3.2).

2.2.2 Фосфоресценция

Фосфоресценция е излъчване при по-дълги дължини на вълната от флуоресценцията, което се разпада експоненциално с време на живот по-дълго от $10^{-4}s$.



Фигура 2.2: Забавена флуоресценция (*α*-процес) и фосфоресценция (*β*-процес) [13].

Наличието на фосфоресценцията се обяснява със съществуването на метастабилно триплетно състояние T_1 под S_1 . Част от молекулите възбудени чрез поглъщане в S_1 преминават посредством безрадиационен преход в триплетното състояние T_1 , което е дълго живущо състояние с време на живот от $10^{-4}s$ до няколко секунди. Фосфоресценцията (β -процес) представлява радиационен преход от T_1 към основното синглетно състояние на молекулата ([13] виж Глава 3.3). Прехода съответстващ на β -процеса е илюстриран на Фиг. 2.2.

2.2.3 Забавена флуоресценция

Забавената флуоресценция е излъчване със спектър идентичен на този на флуоресценцията, но не се разпада по експоненциален закон и има по-дълго време на живот. Нейното съществуване се обяснява отново с наличието на метастабилно триплетно състояние T_1 под S_1 . Съществува вероятност за възбуждане на молекулата, при достатъчна топлинна енергия, до състояние S_1 водещо до забавено излъчване (α процес представен схематично на Фиг. 2.2).

Молекули, намиращи се в състояние T_1 или някое друго метастабилно триплетно състояние, могат да получат енергия от други молекули чрез удар и да се върнат в състояние S_1 . Последващата луминесценция при преход към основно синглетно състояние има същия спектър като нормалната флуоресценция, но времето на живот е значително по-голямо, от порядъка на $10^{-6}s$ или по-голямо, в зависимост от енергетичната разлика между триплетното възбудено състояние и S_1 .

2.3 Видове органични сцинтилатори

Бъркс [13] разделя органичните сцинтилатори на три основни типа:

• Еднокомпонентни системи

чисти кристали - антрацен, полистирен и др.

• Двукомпонентни системи

двукомпонентни течни разтвори, пример: главно разтворимо вещество p -terphenyl в основен разтворител toluene;

двукомпонентни пластмасови разтвори, пример: главно разтворимо вещество p -terphenyl в основен разтворител полистирен;

• Трикомпонентни системи

трикомпонентни течни разтвори, пример: главно разтворимо вещество p-terphenyl и вторично разтворимо вещество РОРОР (2,2'- p-phenylene-bis-(5-phenyloxazole)) в основен разтворител толуен;

трикомпонентни пластмасови разтвори, пример: главно разтворимо вещество p -terphenyl и вторично разтворимо вещество РОРОР в основен разтворител полистирен;

Всяко флуоресцентно органично съединение е потенциален сцинтилатор, но броят им е ограничен от практически полезни свойства като квантова ефективност, време на живот на флуоресценцията, спектъра на поглъщане и спектъра на излъчване.

2.4 Процес на сцинтилация

Нека разгледаме основните явления, свързани със сцинтилациите в органични системи. Да разгледаме бърз електрон с енергия E, преминаващ през органичен сцинтилатор и оставящ цялата си енергия в него. Сравнително малка част от оставената в сцинтилатора енергия преминава в N на брой флуоресцентни фотони със средна енергия E_p , около 4%. Останалата част от енергията се разсейва безрадиационно, като се повишава температурата на молекулите. При възбуждане на същия сцинтилатор с ултравиолетова светлина ефективността за флуоресценция е между 40% и 90% [13].

При еднокомпонентни системи (чисти кристали) спектърът на излъчване е практически същия както на флуоресценцията, породена от ултравиолетова светлина. При двукомпонентни и трикомпонентни системи може да се наблюдава леко удължаване на предния фронт на нарастване на сигнала поради крайното време за междумолекулни взаимодействия, като бързата компонента на намаляване на сцинтилацията е с времеконстанта от порядъка на 2 - 30ns ([13] Глава 3.5).

При много кристали, двукомпонентни и трикомпонентни системи съществува и бавна компонента на намаляване на сцинтилацията с емисионен спектър, подобен на тази на бързата компонента, но намалявайки по не-експоненциален закон в рамките на няколко µs. Интензитетът на бавната компонента е в порядъка на 10% от интензитета на бързата компонента.

2.5 Йонизационно гасене

При преминаването на частици с по-голямо линейно предаване на енергия (Linear Energy Transfer, LET) от бързите електрони, т.е. частици, които предизвикват повисока йонизация и по-голяма плътност на възбуждането на сцинтилатора, се намалява ефективността на сцинтилатора. Това "йонизационно гасене" е подобно при всички видове органични сцинтилатори. Поради този ефект интензитетът на светлината I, излъчена от сцинтилатора при преминаването на електрони, протони и α -частици, всички с енергия от 5 MeV, е в отношение 10:5:1 [13]. I се променя нелинейно в зависимост от енергията, спирачната способност и вида на преминаващите частици. Бъркс [13] предлага полу-емпирична зависимост, описваща поведението на интензитета I на сцинтилацията, известна като закон на Бъркс:

$$\frac{dI}{dx} = \frac{S\frac{dE}{dx}}{1+kB\frac{dE}{dx}},\tag{2.2}$$

където x е пробега на частицата в сцинтилатора, а dE/dx е нейната спирачна способност. S е абсолютната сцинтилационна ефективност или отношението на сумарната енергия на всички фотони излъчени при акта на сцинтилация към отдадената в сцинтилатора енергия. Специфичната плътност на йонизирани и възбудени молекули по траекторията на частицата е BdE/dx, където B е константа. kB е параметър на йонизационното гасене и се измерва в единици сm/MeV или g/MeV cm².

При малки dE/dx, характерни за бързи електрони (β -частици), уравнение (2.2) се опростява до I = SE или интензитета на светенето е пропорционален на енергията отдадена от частицата. При големи dE/dx (α -частици) получаваме [13]:

$$\frac{dI}{dx} = \frac{S}{kB} = \text{const}$$

от където се вижда, че за тежки йонизиращи частици I варира линейно с пробега x.

2.6 Произход на бавната сцинтилационна компонента

Бавната сцинтилационна компонента се получава от ударни взаимодействия между двойки молекули, всяка от които се намира в най-ниското възбудено π -триплетно състояние T_1 . При взаимодействието им се получава молекула в първо възбудено синглетно състояние S_1 и молекула в основно състояние S_0 . Времето на живот на забавеното излъчване се определя от времето на живот на T_1 и честотата на T_1T_1 взаимодействията. Интензитетът на бавната компонента I_s е пропорционален на квадрата на концентрацията на T_1 молекулите. [13]

Възбуждането до Т₁ състояние се осъществява благодарение на два процеса [13]:

а) преминаване в T_1 от възбудено синглетно състояние S_1 , получено главно от директното възбуждане на π -електрон б) йонна рекомбинация в по-високи триплетни състояния и девъзбуждането им до състояние $T_{\rm 1}$

Компонентата на концентрацията на T_1 молекули благодарение на процес (б) намалява при намаляване на dE/dx поради намалената вероятност за йонна рекомбинация. Компонентата на концентрацията на T_1 молекули благодарение на процес (а) намалява при високи dE/dx поради ефекта на йонизационно гасене. При сумирането на двата приноса, които съответно намаляват и се увеличават с промяната на dE/dx, се достига до привидната независимост на интензитета на бавната компонента с промяната на линейното предаване на енергия.

Йонизационното гасене има много по-голям ефект върху интензитета на бързата компонента на сцинтилационния сигнал и влияе в много малка степен на интензитета на бавната компонента. Тъй като времеконстантите на намаляване на двете компоненти се различават, то намалявайки в по-голяма степен интензитета на бързата компонента, при непроменена бавна компонента, се променя цялостната форма на сигнала. Този ефект позволява различаването на вида на преминалата частица по формата на светлинния сигнал от сцинтилатора. Това свойство е основа на техниката за определяне на вида на частицата предизвикала сигнала по неговата форма, "Pulse Shape Discrimination", накратко PSD.

2.7 Трансфер на енергия

При разглеждането на сцинтилационното събитие в органичния сцинтилатор обръщаме внимание на трите компонента на сцинтилатора: основен разтворител, главно и вторично разтворимо вещество. Събитието може да бъде разделено на два етапа - първичен процес и вторичен процес [13].

Първичен процес представлява трансфера на енергия от йонизиращото лъчение до енергия на възбуждане на основния разтворител. Концентрациите на главното и на вторичното разтворимо вещество са на порядъци по-малки от тази на основния разтворител, поради което можем да пренебрегнем директното възбуждане на разтворимите вещества.

Вторичните процеси са тези, които снемат енергията на възбуждане на основния разтворител, а именно - вътрешно поглъщане в самата молекула, миграция към други молекули на разтворителя, трансфер към молекули на разтворимите и излъчване като флуоресценция.

2.7.1 Първичен процес

Първичният процес е подобен за трите типа органични сцинтилатори. При преминаването на йонизираща частица има няколко възможни изхода от взаимодействието ѝ с основния разтвор.

- I. възбуждане на π -електрон до синглетно състояние
- II. йонизация на π -електрон
- III. възбуждане на друг електрон от молекулата
- IV. йонизация на σ -електрон

Процес I поражда главната бърза сцинтилационна емисия. Йонната рекомбинация, последваща процес II, довежда молекулите до възбудени триплетни или синглетни π -състояния. Този процес преимуществено води до заселването на триплетните състояния на молекулите на основния разтвор и вероятно е отговорен за бавната сцинтилационна компонента (виж [13] и цитатите в него).

Енергията на възбуждане при процес III води до термална дисипация на енергията и не допринася за флуоресценцията. Йонизацията при процес IV води до временно или перманентно увреждане на молекулите на разтвора, като перманентно увредените се превръщат в центрове на гасене и намаляват светлинния добив.

2.7.2 Вторичен процес и светене в двукомпонентни и трикомпонентни системи

След възбуждането на синглетни и триплетни състояния в основния разтворител благодарение на процеси I и II следва снемане на това възбуждане чрез директна флуоресценция или предаване на енергията на главното или вторичното разтворимо вещество. Ако към разтворителя не се добавят примеси се наблюдава голямо самопоглъщане от молекулите на разтвора, тъй като спектрите на поглъщане и излъчване съвпадат. Това възпрепятства изработването на големи по обем сцинтилатори. За да се избегне нежелания ефект на самопоглъщане се добавя друго вещество. Неговата концентрация е на два порядъка по-малка от тази на основния разтворител [15].

Главното разтворимо вещество се добавя за да се подобрят качествата на сцинтилатора. В най-добрия случай максимумът на неговия абсорбционен спектър е при по-дълга дължина на вълната в сравнение с максимума на спектъра на излъчване на разтворителя, а спектърът му на излъчване е такъв, че да няма поглъщане от основния разтворител. Така се намалява самопоглъщането в сцинтилационния разтвор и спектърът на излъчване се доближава до дължини на вълната, при които фотоумножителя е чувствителен.

С добавянето на второ вещество се увеличава вероятността за не-радиационни преходи (загуби), но драстично се намалява самопоглъщането, което позволява изработването на големи по обем сцинтилатори. Второ разтворимо с минимална концентрация се добавя в някои случаи за да се доближи спектърът на излъчване на разтворителя и главното разтворимо до дължини на вълната, при които е чувствителен фотоумножителят.

2.8 Приложение

Органичните сцинтилатори могат да бъдат както под формата на течни разтвори (течно-сцинтилационни коктейли или LSC, от Liquid Scintilation Cocktail), както и под формата на пластмасови сцинтилатори (PS). В настоящите експерименти изследваме свойствата на пластмасовите сцинтилатори, а проби в LSC се използват за "еталонни" тъй като свойствата на LSC са добре изучени и документирани в предходни експерименти.

Пластмасовите сцинтилатори имат някои основни свойства, които ги правят изключително удобни в някои сфери на науката. Тъй като те са твърди вещества, съставени от полимери, могат с лекота да се изработват в определена форма и с определени размери според нуждата на съответното приложение. Светлинния добив на пластмасовите сцинтилатори е от порядъка на 65% от светлинния добив на антрацена, като са сравними с течните сцинтилатори.

През последните десетилетия е показана възможността на някои полимери да абсорбират радиоактивни благородни газове. Това свойство позволява на някои пластмасови сцинтилатори да бъдат използвани за измерването на радон и други РБГ, което би намерило приложение при радиационен контрол в атомни електроцентрали, радиационна защита и други.

Радон. Абсорбция на радон в пластмасови сцинтилатори

3.1 Радон и дъщерните му продукти

Радонът е химичен елемент със символ Rn и пореден номер 86. Той е радиоактивен благороден газ, получаващ се естествено от разпадната верига на радия. Найдългоживущият му изотоп е ²²²Rn с период на полуразпадане 3.82 d. Радонът е една от най-плътните субстанции, която остава газ при нормални условия.

Радонът се формира от естествените радиоактивни вериги на уран и тория, които са двата най-често срещани радиоактивни елементи на земята и имат периоди на полуразпадане 4.5×10^9 години за ²³⁸U и 1.4×10^{10} години за ²³²Th. ²³⁸U след серия разпадания достига до ²²⁶Ra (период на полуразпадане 1600 години), който от своя страна поражда ²²²Rn. Изотопът ²²⁰Rn (торон) е от семейството на ²³²Th и има период на полуразпадане 55 секунди.

Source or mode	Annual average dose (worldwide)	Typical range of individual doses	Comments
Natural sources of exposure			
Inhalation (radon gas)	1.26	0.2–10	The dose is much higher in some dwellings.
External terrestrial	0.48	0.3–1	The dose is higher in some locations.
Ingestion	0.29	0.2–1	
Cosmic radiation	0.39	0.3–1	The dose increases with altitude.
Total natural	2.4	1–13	Sizeable population groups receive 10-20 millisieverts (mSv).

Фигура 3.1: Годишни ефективни дози и диапазони на дозите от различни източници на облъчване [1]

Газът ²²²Rn е съставна част на почвения газ, който се просмуква в жилищни помещения. Нивата на радон варират значително с местната геология и други фактори като пропускливостта на почвата, конструкцията на сградата и климата. След разпадането си радонът поражда други радиоактивни елементи наречени дъщерни продукти. За разлика от радона, неговите дъщерни продукти не са газове и имат тенденцията да се закрепват за повърхности, като въздушни прашинки. При вдишването на тези замърсени прашинки те навлизат в дихателните пътища и увеличават опасността от рак на белите дробове. Средното облъчване от естествени източници на йонизиращо лъчение е 2.4mSv/y, като приносът на радона е над 50%. Причиненото от него дозово натоварване варира в широки граници от 0.2mSv/y до 10mSv/y при средна стойност 1.26mSv/y (Виж Фиг. 3.1) [1].

Радонът няма стабилни изотопи, като са охарактеризирани тридесет и шест радиоактивни изотопа с атомни маси от 193 до 228. Най-дългоживущият изотоп е ²²²Rn, който е продукт на ²²⁶Ra. Дъщерните продукти на ²²²Rn са показани на Фиг. 3.2.



Фигура 3.2: Схема на разпадане на ²²⁶Ra.

При наличие на затворен обем с концентрация на радон, концентрацията на краткоживущи дъщерни продукти ще нараства до достигане на веково равновесие, когато активностите на всички разпадни продукти се изравняват с тази на радона. ²¹⁰Pb има нужда от много по-дълго време, от порядъка на два века, за да достигне до равновесие с ²²²Rn, но при условия позволяващи натрупването на прах през големи периоди от време и активността на ²¹⁰Pb и неговите дъщерни продукти би допринесла към общата активност.

С дъщерните продукти до ²¹⁴Po, включително, ²²²Rn достига в равновесие за по-

кратък период от време, около 5 часа, което е от порядъка на дванадесет периода на полуразпадане на най-дълго живущия продукт ²¹⁴Pb (за ниво на точност <1%).

3.2 Абсорбция на радон в пластмасови сцинтилатори

3.2.1 Физика на процеса

Както е показано в [16], процесът на сорбция и десорбция на радиоактивни благородни газове в полимери може да бъде описан от дифузионното уравнение с отчитане на радиоактивното разпадане:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D\left(\frac{\partial^2 n}{x^2} + \frac{\partial^2 n}{y^2} + \frac{\partial^2 n}{z^2}\right) - \lambda n, \qquad (3.1)$$

където
n е концентрацията на атоми в полимерния материал, D е коефициента на
дифузия с размерност $[m^2/s]$ и λ е константата на разпад
ане на $^{222}{\rm Rn}.$

Пластмасовите сцинтилатори, измервани в последващите експерименти са правоъгълни фолиа с дължини на страните от порядъка на сантиметри и дебелини от порядъка на 100 до 1000µm. Те могат да бъдат моделирани в добро приближение, като се приеме, че дифузията е едномерна и се осъществява по направление на тънката страна на образеца. Граничните условия на диференциалното уравнение са $n(0,t) = n(L,t) = Kn_0(t)$, където L е дебелината на пластината, а K е коефициент, показващ отношението на концентрацията на радон на границата на образеца към външната концентрация. Приемаме, че образецът се поставя в безкрайна среда, съдържаща ²²²Rn и че и двете страни на образеца са в контакт с нея. Уравнение (3.1) се опростява до:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \frac{\partial^2 n}{\partial x^2} - \lambda n, \qquad (3.2)$$

В последващите експерименти концентрацията на външната активност спада в резултат от радиоактивното разпадане. За да се отчете това концентрацията на външната активност на границите в уравнение (3.2) се описва като $n_0(t) = ce^{-\lambda t}$.

Решението на уравнение (3.2) с гранично условие експоненциално намаляваща външна активност е [16]:

$$n_d(x, t_s, t_d) = \frac{4Dc}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(2k+1)\pi/L}{\lambda_{2k+1} - \lambda} (e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1}t_s}) e^{-\lambda_{2k+1}t_d} \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}x\right),$$
(3.3)

където времето за сорбция t_s е времето, което образецът е прекарал в среда с наличие на радон, а времето за десорбция t_d е времето, което образецът прекарва във въздух без наличие на радон. Коефициентите λ_n в уравнение (3.3) са:

$$\lambda_n = \lambda + \left(\frac{n\pi}{L}\right)^2 D = \lambda \left[1 + \left(\frac{n\pi L_D}{L}\right)^2\right],\tag{3.4}$$

където $L_D = \sqrt{D/\lambda}$ е "дължината на дифузия" на радиоактивния благороден газ в полимера. Дължината на дифузия е средния път, който атомите на РБГ изминават преди да се разпаднат.

Активността на РБГ в пробата се дава с:

$$A(t_s, t_d) = \lambda \int_V n(V, t_s, t_d) dV$$
(3.5)

където V е обема на образеца. За пластина с площ S и дебелина L в момента t от десорбцията уравнението може да бъде опростено до

$$A(t_s, t_d) = \lambda S \int_0^L n_d(x, t_s, t_d) dx.$$

След интегриране на n_d от уравнение (3.3) получаваме активността в пробата като функция на времето [16]:

$$A(t_s, t_d) = \frac{8\lambda K A_V V L_D^2}{L^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1} t_s}}{\lambda_{2k+1} - \lambda} e^{-\lambda_{2k+1} t_d}.$$
 (3.6)

където S е площта на поликарбоната, L_D е дължината на дифузия на радиоактивния благороден газ, A_V е началната обемна активност в обема в който се облъчва образеца, а K е коефициента на разтворимост.

Коефициентът на разтворимост K е свойство на материала, което описва отношението на концентрацията на активност на повърхността на полимерния образец към концентрацията на активността във външната среда и може да бъде записано като [16]:

$$K = \frac{C_{A,PC}}{C_{A,env}} \tag{3.7}$$

където $C_{A,PC}$ е концентрацията на активност на ²²²Rn на повърхността на полимера и $C_{A,env}$ е тази на външната среда.

3.2.2 Дължина на дифузия

От уравнение (3.4) може да бъде видяно, че константите λ_n нарастват прогресивно с увеличаване на n и следователно най-бавно намаляващия член в уравнение (3.6) е първият. Както е показано в [16] след достатъчно голям период от време след края

на облъчването, намаляването на активността в пробата може да бъде описано от една единствена експонента $A(t) = const \ exp(-\lambda_1 t)$ където

$$\lambda_1 = \lambda \left[1 + \left(\frac{\pi L_D}{L} \right)^2 \right].$$

Константата const в уравнението за A(t) не зависи от времето за десорбция и следователно активността в пробата в зависимост от времето е линейна в полу-логаритмичен мащаб [17]:

$$ln(A(t)) = -\lambda_1 t + const', \qquad (3.8)$$

където const' е натурален логаритъм от const. Ако проследяваме активността на пробата за достатъчно дълго време можем да опишем процеса на десорбция с линейния модел от уравнение (3.8), който може да бъде фитиран с линейна регресия и константата λ_1 ще се дава от наклона на правата ln(A(t)). Този метод за определяне на дължината на дифузия е предложен и валидиран в [16]. След като имаме оценка за λ_1 , L_D може да бъде лесно пресметната от уравнение (3.4). Дължината на дифузия се дава с:

$$L_D = \frac{L}{\pi} \sqrt{\frac{\lambda_1}{\lambda} - 1},\tag{3.9}$$

където L е дебелината на пробата, а λ е константата на разпадане на ²²²Rn. Важно е да се отбележи, че не е необходимо да се знае стойността на константата *const* и началната погълната активност.

Дължината на дифузия проявява зависимост от температурата на средата. По тази причина всички процеси на сорбция и десорбция в описаните по-долу експерименти се провеждат при постоянна температура от $21^{\circ}C$.

3.2.3 Ефективност за отбор ε_s на пластмасови сцинтилатори

Ефективността за отбор ε_s на пластмасовия сцинтилатор е важна характеристика, която показва отношението на активността в образеца, при дадено време за сорбция и в момент t_d от десорбцията, към външната активност на въздуха в същия обем, като този на сцинтилатора. Можем да получим ε_s от уравнение (3.6):

$$\varepsilon_s = \frac{A(t_s, t_d)}{A_V V} = \frac{8\lambda K L_D^2}{L^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1} t_s}}{\lambda_{2k+1} - \lambda} e^{-\lambda_{2k+1} t_d}.$$
(3.10)

След пресмятането на ефективността за отбор при определено време за сорбция и десорбция е налице връзка между началната обемна активност A_V и разтворимостта K.



Фигура 3.3: Тримерен профил на активността в проба EJ-212 с дебелина 445µm. Профилът е получен с компютърна програма пресмятаща уравнение (3.6). Времето за сорбция t_s и времето за десорбция t_d са равни на 100h. С еднакъв цвят са означени областите с еднаква активност, като тя е дискретизирана със стъпка 0.5Bg/m³.

3.2.4 Профил на активността

Използвайки компютърно моделиране на процеса на сорбция и десорбция в пробите с програма, приложена към [17], можем да намерим разпределението на активността в пробата в дълбочина. Може да се покаже, че при външни активности отговарящи на достижимите в нашите лабораторни условия, от порядъка на 50 MBq/m³, активността в сърцевината на проби с дебелина $L >> L_D$ е много ниска. Това следва да покаже, че определянето на дължината на дифузия по десорбционен метод е възможно само при "тънки" проби с дебелина от порядъка на дължината на дифузия.

След известно време след началото на десорбцията голяма част от активността в образеца е събрана в сърцевината му, като много малка част от атомите 222 Rn се намират до дълбочина 50µm от двата края на пробата. Тъй като пробега на α частици на радона и дъщерните му продукти в пластмасови сцинтилатори от типа на EJ-212 и BC-400 е от порядъка на 40 - 80 µm може да считаме, че много малка част от тях напускат образеца без да са оставили значителна енергия в обема му. Това предполага, че очакваната ефективност за регистрация е близка до единица.

3.3 Измерване на активност на ²²²Rn абсорбирана в пластмасов сцинтилатор

3.3.1 Принцип на измерване и устройство на детектора

Измерването на активността на 222 Rn, абсорбиран в пластмасов сцинтилатор, се извършва с помощта на спектрометър LKB RackBeta 1219 Wallac, Finland. Преди измерване пробата се поставя изправена в цилиндрично шише "Perkin-Elmer High-Preformance glass vial". Детекторът RackBeta е снабден с механизъм, който автоматично пренася стъкленото шише в измервателната камера без да допуска поток светлина да достига до нея, което позволява постоянното захранване на фотоумножителите и спомага за стабилността им във времето. RackBeta съдържа два фотоумножителя насочени един срещу друг и разположени от двете страни на шишето. Фотоумножителите работят в схема на съвпадение, като се отчитат като истински само сигнали получени в кратък интервал от време, от порядъка на 18 ns, и от двата фотоумножителя (фигура 3.4).

Възможността за намаляване на шумовите сигнали се дължи на факта, че светлината идваща от сцинтилатора е изотропна (разпределена равномерно по всички направления) и, че в сцинтилатора се създават голям брой фотони (от порядъка на 10 фотона за всеки keV отдадена енергия). Процесът на разпадане и последваща сцинтилация е много бърз, като характерни времена за спадане на светлинния сигнал са от 2 до 10 пs. Поради факта че светлината от сцинтилатора има хомогенно разпределение и се излъчват много фотони в кратък времеви интервал тя има вероятност да бъде регистрирана едновременно от двата ФЕУ, които са свързани в схема на съвпадение и приемат за истински сигнали пристигащи във времеви интервал от 18 пs. По този начин могат да се разграничат шумовете от случаен характер (топлинни или електронни шумове), при които няма корелация във времето. Това позволява многократното намаляване на фона на детектора, от 10 000 срт (counts per minute) за единичен фотоумножител до 30 срт при два фотоумножителя в схема на съвпадение [8]. С тази техника е възможно измерването на ниски активности.

Следващата част на измервателната система е сумиращата схема. Тя има двойно предназначение. Първото е да събере двата съвпадащи по време сигнала в един общ сумиран сигнал. Това спомага за намаляването на отношението сигнал-шум. Второто предназначение е компенсирането на вариации в светлинния добив, причинени от мястото на излъчване на частица в пробата, които биха възникнали когато има поглъщане на светлината при преминаване през сцинтилатора. Ако се използва само



Фигура 3.4: Схема на съвпадение [8].

един фотоумножител интензитетът на светлината ще зависи от местоположението на разпадането в образеца, като например ако разпада става на близката граница на сцинтилационното шишенце, ще се получи по-голям сигнал от разпад станал на далечната граница. С два фотоумножителя разположени от двете страни на пробата, както е показано на фигура 3.4, се елиминира зависимостта на интензитета на сигнала от неговото положение.

Системата за регистриране на сцинтилации, както и самата проба са поставени в оловна защита, който намалява влиянието на естествения радиоактивен фон. Спектрометърът поддържа постоянна температура от $14^{\circ}C$ с цел намаляване на топлинния шум на фотоумножителите.

Спектралният анализатор включва двоен многоканален анализатор, предоставящ логаритмичен аналогово-цифров преобразувател с 1024 канала. Логаритмичния мащаб по енергии ни позволява да наблюдаваме на един спектър ниско енергетични β-частици, както и високо енергетични α-частици.

3.3.2 Ефективност за регистрация

Важна характеристика на системата проба-детектор е ε_c - ефективност за регистрация, която се дефинира като [18]:

$$\varepsilon_c = \frac{n_0}{A_{PS}},\tag{3.11}$$

където n_0 е чистата скорост на броене (коригирана за фон), а A_{PS} е активността на ²²²Rn в пробата. Важно е да се отбележи, че при наличие на веково равновесие между ²²²Rn и неговите дъщерни продукти всяко разпадане на радонов атом е свързано с излъчването на пет частици (три
 α -частици от $^{222}{\rm Rn},\,^{218}{\rm Po}$
и $^{214}{\rm Po}$ и две β -частици от $^{214}{\rm Po}$ и
 и $^{214}{\rm Bi}$). Тогава ε_c може да бъде разглеждана като средния брой
 регистрирани частици за едно разпадане на $^{222}{\rm Rn}$ в пробата.

Експериментална част

4.1 Въведение

За определянето на дължината на дифузия на 222 Rn и неговата разтворимост K в комерсиални пластмасови сцинтилатори бяха проведени последователно два отделни експеримента, наричани по нататък експеримент " L_D " и експеримент "К". И двата експеримента бяха проведени в лаборатория "Метрология на йонизиращите лъчения" към ФзФ на СУ.

4.2 Използвани сцинтилатори

В двата експеримента са използвани пластмасови сцинтилатори предоставени от Eljen Technology и Saint Gobain Crystals.

Проба	Тип	Дебелина, µm	Ширина, ст	Височина, ст
E2	EJ-212	204.1 ± 2.9	1.6	5.4
E2-5	EJ-212	445.1 ± 3.4	1.6	5.4
EJ1	EJ-212	471.3 ± 2.8	1.6	4.5
EJ2	EJ-212	461.4 ± 2.3	1.6	4.5

Таблица 4.1: Размери на пробите от EJ-212

Предоставените от Eljen Technology пластмасови сцинтилатори са от типа EJ-212, (напълно идентичен на NE-102A, цитиран в множество статии последните 50 години) които са сцинтилатори намиращи широко приложение в индустрията и медицинската физика, измерване на α, β, γ и неутронна радиация, както и в научни изследвания, медицински инструменти и други [19]. Базовият полимер (основния разтворител) е Polyvinyltoluene. Получените образци са две плочи от EJ-212 с размери 0.5 mm × 100 mm × 100 mm и 0.25 mm × 100 mm × 100 mm, като дебелините

им са измерени допълнително по-точно с микрометър. От наличните плочи са изрязани образци с размери позволяващи поставянето им в стъклени шишенца, като широчината на всички проби е 1.6 ст , колкото е диаметъра на гърлото на шишенцето. Дължините на пробите за експеримента " L_D " са такива, че пробата да стои изправена, подпирайки се на гърлото на шишенцето, докато при експеримента "K" са такива, че да могат да бъдат напълно потопени в течен сцинтилатор.

Образците, от тук нататък наричани E2 и E2-5 са изрязани от плочата с дебелина 0.25 mm за E2 и 0.5 mm за E2-5. Тези проби са подготвени за експеримента " L_D " и използвани повторно в експеримента "K". От плочата с дебелина 0.5 mm са изрязани два образеца, наречени EJ1 и EJ2, предназначени само за експеримента "K". Точните им размери със съответните неопределености са представени в таблица 4.1.

Проба	Тип	Дебелина, µm	Ширина, ст	Височина, ст
B 4	BC-400	642.6 ± 2.3	1.6	5.4
B4-2	BC-400	646.1 ± 0.9	1.6	5.4
B4-3	BC-400	259.0 ± 3.3	1.6	5.4
BC1	BC-400	1104.1 ± 5.7	1.6	4.5
BC2	BC-400	1078.6 ± 3.9	1.6	4.5

Таблица 4.2: Размери на пробите от тип ВС-400

Предоставените от Saint-Gobain Crystals пластмасови сцинтилатори са от типове BC-400, BC-400B, BC-404 и BC-408, като за експеримента е избран тип BC-400, тъй като това е сцинтилатор с общо предназначение, широко приложение и е еквивалентен на сцинтилатор тип NE-102 [20]. Първият образец от тип BC-400 е с размери 1 mm × 7.62 cm × 7.62 cm , като от него е изрязана пробата B4, предназначена за експеримента " L_D " и използвана повторно в експеримента "K", и пробите BC1 и BC2 използвани в експеримента "K". Вторият образец от тип BC-400 е с размери 15.24 cm × 35.56 cm × 0.254 mm , като от него е изрязана пробата B4-3, използвана в експеримента " L_D " и отново в "K". Пробата, кръстена B4-2, е от по-стар сцинтилатор, отново тип BC-400. Пробите и техните дебелини са представени в таблица 4.2

В таблица 4.3 са показани основните светлинни характеристики за двата вида пластмасови сцинтилатори, като се вижда, че те са еднакви тъй като са еквиваленти на NE-102. И двата вида имат максимум на излъчваната светлина при 423 nm.

Тип	Добив % Антрацен	Ефективност фот./1MeV e^-	Време за нарастване, ns	Време за спадане, ns	Ширина на пулса FWHM, ns
EJ-212	65	10 000	0.9	2.4	2.7
BC-400	65	-	0.9	2.4	2.7

Таблица 4.3: Основни светлинни характеристики на използваните пластмасови сцинтилатори.

4.3 Описание на облъчвания и измервания

4.3.1 Облъчване на проби за експеримент " L_D "

Образците, използвани в експеримента за определяне на дължината на дифузия на ²²²Rn, са проби E2 и E2-5, изрязани от сцинтилатор EJ-212 на Eljen Technology, и проби B4, B4-2 и B4-3, изрязани от сцинтилатор BC-400, на Saint-Gobain Crystals. Образците са описани в глава 4.2. За определяне на външната активност по време на облъчването, по методологията описана в [21], са използвани проби MakN1, MakN2 и MakN3, изрязани от фолио MakrofolN на Bayer.

Образците се поставят в стъклен барботьор с обем 700ml, в който се извършва облъчването с 222 Rn. С цел всички стени на образците да бъдат в допир с околния въздух пластинките се закрепват за решетки отделящи ги от дъното на барботьора и една от друга. Пластмасовите сцинтилатори E2, E2-5, B4, B4-2, B4-3, както и фолиата MakN1 и MakN2 се поставят на дъното на стъкления барботьор. Пробата MakN3 се поставя близо до тапата на барботьора, на около 12см височина от дъното му, за да се проследи евентуално наличие на градиент на концентрацията на 222 Rn в барботьора. Такъв градиент не се наблюдава и пробите MakN1, MakN2 и MakN3 абсорбират еднаква активност в рамките на статистическата неопределеност (виж фигура 4.3).

Барботьорът се свързва с източник на 222 Rn с обем 200ml и активност 104.5kBq чрез система от маркучи. Към системата се включва помпа, която служи за равномерно разпределяне на активността в двата обема. След като помпата работи известно време до достигане на хомогенно разпределение тя се изключва и барботьорът се запечатва с метални скоби за да се възпрепятства изтичането на 222 Rn. Барботьорът се поставя в 50l затворен обем заедно с детектор на 222 Rn AlphaGuard RnTn Pro, който служи за проследяването на евентуално изтичане на активност от барботьорът се включва в дифузионен режим като прави измерване на всеки десет минути и дава директно показания за активността в металния 50l съд



Фигура 4.1: Схема на облъчването на пробите в барботьора

в който е поставен.

Големият 50l обем разполага с вентилатор, който работи постоянно за да осигури равномерна температура и равномерно разпределение на 222 Rn в съда. Металния обем се поставя в камера с термостат, която поддържа постоянна температура от 21°C. Пробите се оставят в радоновата среда като сорбцията продължава 165.3h (виж Фиг. 4.2).

Режимът на облъчване на пробите е при експоненциално намаляваща външна обемна активност $A_V(t) = A_{V_0}e^{-\lambda_{\text{eff}}t}$, където A_{V_0} е началната външна обемна активност, а $\lambda_{\text{eff}} = \lambda_{Rn} + \lambda_{ex}$ е ефективната константа на намаляване на активността в барботьора, включваща в себе си константа на разпадане λ_{Rn} на ²²²Rn и константата λ_{ex} описваща ексхалацията на ²²²Rn от барботьора. λ_{Rn} е добре известна константа, а λ_{ex} можем да намерим от зависимостта на външната активност в обема 501 от времето, тъй като тя е равна на ексхалираната активност от малкия обем.

Ако пренебрегнем изтичането на активност от големия обем можем да разглеждаме системата барботьор-външен обем, като барботьорът вкарва N_1 атоми в големия обем за единица време t по закона $dN_1/dt = -\lambda_{ex}N_1(t)$. Броят на атомите N_2 в големия обем се изменя като $dN_2/dt = -\lambda_2N_2(t) + \lambda_{ex}N_1(t)$, където λ_2 е константата на намаляване на броя атоми във външния 501 обем. След като решим системата от диференциални уравнения, знаейки че $A(t) = \lambda N$ получаваме следната зависимост за активността $A_2(t)$ в големия обем:

$$A_2(t) = \frac{\lambda_2 A_1}{\lambda_2 - \lambda_{ex}} \left(e^{-\lambda_{ex}t} - e^{\lambda_2 t} \right)$$
(4.1)

Данните от AlphaGuard са апроксимирани с уравнение (4.1) като получаваме добро съгласуване на експериментите данни и теоретичната зависимост. Зависимостта на



Фигура 4.2: Данни от AlphaGuard за ексхалацията от барботьора фитирани с уравнение (4.1).

обемната активност в големия обем от времето е показана на Фигура 4.2. Получаваме $\lambda_{\text{eff}} = 0.0118 \pm 0.0003 h^{-1}$ която е нужна за оценката на началната обемна активност в барботьора.

На таблица 4.4 са представени константите на намаляване и съответните периоди на полунамаляване като за $T_{1/2 \text{ eff}}$ полчаваме 58.7h. Периодът на полуразпад на ²²²Rn e 91.76h [22]. Наблюдава се изтичане на радон във външната камера, което в модела отчитаме като облъчване в експоненциално намаляваща на външна обемна активност в барботьора и използваме ефективната константа на намаляване λ_{eff} .

Константа на	Период на полу-
намаляване, h^{-1}	намаляване, h
$\overline{\lambda_{ex}} = 0.0042$	164.3
$\lambda_2 = 0.0191$	36.2
$\lambda_{\rm eff} = 0.0118$	58.7

Таблица 4.4: Определените от апроксимацията константи на намаляване и съответните им периоди на полунамаляване За да определим обемната активност в барботьора в началото на сорбцията използваме фолиата MakrofolN, които имат известна дължина на дифузия L_D и разтворимост K [21]. Пробите от MakrofolN се затварят в шишета пълни със течен сцинтилатор Ultima Gold LLT незабавно след края на облъчването и се поставят в хладилник, за да се предотврати десорбцията на ²²²Rn. По няколко пъти на денонощие се измерват се една след друга пробите MakN1, MakN2, MakN3 и MakNF(необлъчена), за да се екстраполира по-нататък скоростта на броене в момента на прекратяване на облъчването.



Фигура 4.3: Зависимост на чистата скорост на броене от времето в полулогаритмичен мащаб за проби MakrofolN в течен сцинтилатор Ultima Gold LLT. Апроксимацията е с функция $f(ln(n_0)) = ax + b$.

От уравнение (3.10) можем да получим израз за началната обемна активност в

барботьора A_V :

$$A_V = \frac{A(t_s, t_d)}{\varepsilon_s V},\tag{4.2}$$

където V е обемът на пробата в m³, ε_s е ефективността за отбор и $A(t_s, t_d)$ е натрупаната в образеца активност. $A(t_s, t_d)$ в момента на затварянето на фолиото MakrofolN в шишенце с течен сцинтилатор намираме като:

$$A(t_s, t_d) = \frac{n_0}{\varepsilon_c},$$

където n_0 е чистата скорост на броене в срз. Ефективността за регистрация $\varepsilon_c = 5.02$ тъй като ефективността на детектора е 100% за течно-сцинтилационни коктейли, а на едно разпадане на радона детектираме 5.02 разпада на ²²²Rn и дъщерните му продукти, при наличие на равновесие между техните активности [23].

За да намерим чистата скорост на броене в момента $t_d = 0$ h на отваряне на барботьора трябва да екстраполираме кривата на спадане на MakrofolN до момента на затваряне на пробата. Както е известно от [21], при затварянето на образци, абсорбирали радон, в шишенце пълно с течен сцинтилатор, то не изпуска радон. Това ни позволява да апроксимираме линейния, в полу-логаритмичен мащаб, участък от кривата на спадане на активността в MakrofolN (фигура 4.3).

Ефективността за отбор в момента на затваряне на пробата в течен сцинтилатор ε_s намираме от числения модел на сорбция на радон в поликарбонати, като е известна дължината на дифузия и разтворимост на ²²²Rn в MakrofolN [18]. Началната обемна активност в барботьора намираме от уравнение (4.2) като:

$$A_V = 53.6 \pm 5.5 \text{MBq/m}^3$$

4.3.2 Измервания при експеримент "L_D"

Преди облъчването, пробите са сложени в стъклени шишенца и са направени по няколко измервания с RackBeta на техния фон, всяко с продължителност 1h. След прекратяване на облъчването пробите от пластмасови сцинтилатори са поставени в лабораторна стая с регулирана температура от $21^{\circ}C$. Както е описано в глава 3.3 детекторът RackBeta поддържа температура от $14^{\circ}C$, така че за да не се изменя значително скоростта на десорбцията измерванията се правят максимално кратки, но достатъчно дълги за достигане на ниска статистическа неопределеност. Образците се проследяват в период от две седмици след облъчването им. Теоретичния модел показва, че такъв период от време е достатъчен за пренебрегване на приноса на всички експоненти в уравнение (3.5) освен първата. Правоъгълните проби се поставят в стъклени шишенца във вертикално положение, като стените се обръщат така че да сочат към ФЕУ на RackBeta. Типичните времена за измерване на пробите са от 300s до 900s, като веднага след приключване на измерването пробата се връща в лабораторната стая при температура $21^{\circ}C$.



Фигура 4.4: Спектри на пробата E2-5 (ляво) и B4-3 (дясно) на деветия час след края на облъчването.

²²²Rn достига до равновесие с дъщерните си продукти в рамките на 5h. Само тогава можем да считаме, че активността, която измерваме се съгласува с активността на ²²²Rn в пробата. Във всички измервания преди този момент се намесват дъщерните продукти на радона полепнали по шишенцата и по повърхността на образците.

4.3.3 Описание на облъчването в експеримент "К"

Във втория експеримент предназначен за определяне на разтворимостта на пластмасовите сцинтилатори са използвани образците EJ1 и EJ2 от вида EJ-212, както и образците BC1 и BC2 от вида BC-400. Тъй като експеримент "K" се извършва достатъчно дълго време след експеримент " L_D " е възможно повторното използване на образците E2, E2-5, B4, B4-2 и B4-3 чиято активност е намаляла до фонови нива.

Пробите са поставени в обем 50l използван в предния експеримент, като външната активност по време на облъчването се проследява с помощта на детектор AlphaGuard (Фиг. 4.5). Тъй като максималната измерима активност от AlphaGuard е 2 MBq/m³ в обема се вкарва 222 Rn до достигане на около 1MBq/m³ обемна активност. Облъчването трае 73h.

След апроксимиране на данните от AlphaGuard със функция $f(x) = A_0 e^{\lambda_{\text{eff}} t}$ (Виж



Фигура 4.5: Данни от AlphaGuard за обемната активност в големия обем фитирани с уравнение $A(t) = const.e^{-\lambda_{eff}t}$. С цел четливост на графиката е показано само всяко пето измерване на детектора.

Фиг. 4.5), където $A_0 = 1.05 \text{MBq/m}^3$ е началната активност в големия обем, а $\lambda_{\text{eff}} = 0.0081 \text{h}^{-1}$ е ефективната константа на разпадане на ²²²Rn, отчитаща и изтичане на активност от обема. Тя съответства на период на полу-намаляване на активността в обема $T_{1/2} = 85.4$ h който можем да сравним с периода на полуразпад на радона $T_{1/2}^{Rn} = 91.7$ h. Двете стойности са близки, следователно изтичането на радон от големия обем не е голямо.

След отваряне на големия обем и приключване на облъчването пробите BC1, EJ1 и EJ2, предназначени за определяне на разтворимостта K на материалите, се затварят, в рамките на няколко минути, в стъклени шишета Perkin-Elmer High Performance Glass Vial пълни със течен сцинтилатор Ultima Gold LLT. Бързото затваряне на пробите е с цел да се минимизира десорбцията на 222 Rn от образците. От теоретичния модел оценяваме, че не повече от 3% от активността напуска пробата в рамките на 3 минути след отваряне на големия обем.

Пробите BC2, E2 и E2-5 са оставени да десорбират за около 30 часа, с цел да достигнат по-равен участък от кривата си на десорбция. Тяхното предназначение е

за определянето на ефективността за регистрация ε_c на детектора.

4.3.4 Измервания при експеримент "К"

Пробите предназначени за определяне на разтворимостта K и за ефективността за регистрация ε_c се измерват по различен начин. Пробите предназначени за определяне на разтворимостта K са затворени незабавно във шишенце със течен сцинтилатор. Така десорбцията се спира и се елиминира евентуално различната от 100% ефективност за регистрация. Пробите се проследяват на RackBeta в рамките на няколко дни, като зависимостта на чистата скорост на броене n от времето се апроксимира със $n(t) = n_0 e^{-\lambda_{Rn} t}$, където λ_{Rn} е константата на разпадане на ²²²Rn. Тази зависимост се екстраполира до момента на затваряне на пробата в шишенцето, който съвпада с изваждането на пробата от средата с висока външна активност на ²²²Rn.

Образците, BC2, E2 и E2-5, предназначени за определянето на ε_c на детектора са оставени да десорбират при температура от 21°C за едно денонощие. При достигането на равен участък от кривата на десорбция образеца се измерва за определено време в празно стъклено шишенце на детектор RackBeta, след което се налива течен сцинтилатор и се проследява намаляването на активността отново на RackBeta. За независими измервания използваме HPGe детектор за гама-спектрометричен анализ на пробите докато са в шише с течен сцинтилатор.

Резултати

5.1 Оценка на ефективност за регистрация ε_c за пластмасови сцинтилатори във въздух

За оценка на ефективността за регистрация на даден образец изчакваме достатъчно време, от порядъка на денонощие за проби с дебелина 250µm, за да достигне до участък от кривата си на десорбция в който десорбиралата активност от пробата в рамките на продължителността на измерванията е пренебрежимо малка. На образеца се правят няколко измервания на детектор RackBeta в рамките на един час, като е поставен в шишенце Perkin Elmer. Незабавно след приключване на измерванията във въздух шишенцето с пробата се запълва с течен сцинтилатор и се измерва продължително време до спадане на активността в него.

Ефективността за регистрация на RackBeta за частица в течен сцинтилатор е 1 [23]. Неизвестна е обаче ефективността за регистрация за пластмасови сцинтилатори във въздух. ε_c може да се оцени като в приведем измерената чиста скорост на броене на проба във въздух и на проба в течен сцинтилатор към един и същи момент от време.

От дефиницията на ефективност за регистрация (уравнение (3.11)) можем да изразим ефективността за регистрация на пластмасов сцинтилатор като $\varepsilon_c = n_0^{PS}/A_{PS}$. По същия начин изразяваме ефективността за регистрация за образец в течен сцинтилатор като $\varepsilon_c^{PS+LSC} = n_0^{PS+LSC}/A_{PS}$. Величините n_0^{PS} и n_0^{PS+LSC} са чистите скорости на броене в съответно пластмасов сцинтилатор и пластмасов сцинтилатор потопен в течен сцинтилатор. Ефективността за регистрация за PS в течен сцинтилатор е $\varepsilon_c^{PS+LSC} = 5.02$ тъй като регистрираме 100% от разпаданията, а на едно разпадане на ²²²Rn съответстват 5.02 разпада на радона и дъщерните му продукти. След като приравним активностите към един и същи момент от време получаваме уравнение за ефективността за регистрация на PS във въздух:

Име на проба	Среда	n_0 , cpm	$\sigma_{n_0}, \mathrm{cpm}$	δ	ε_c	σ_{ε_c}
	Air	129	4.76	0.04		
		127	4.69	0.04		
$\mathbf{BC2}$		127	4.69	0.04		
	$\operatorname{Air}_{\operatorname{avg}}$	127.7	4.71	0.04		
	UG LLT	121.4	4.86	0.04	1.05	0.06
	Air	67	3.17	0.05		
EO		63	2.26	0.04		
E/2	$\operatorname{Air}_{\operatorname{avg}}$	64.3	2.65	0.04		
	UG LLT	64.4	1.20	0.02	1.00	0.05
	Air	103	3.56	0.03		
E2-5	UG LLT	108.7	2.6	0.02	0.95	0.04

Таблица 5.1: Ефективност за регистрация на пластмасови сцинтилатори във въздух. В редовете означени с Air_{avg} са представени осреднените стойности за скоростта на броене на пробите във въздушна среда, а в редовете означени с UG LLT са представени екстраполираните към начален момент стойности на скоростта на броене.

$$\varepsilon_c = \frac{n_0^{PS}}{5.02 \ n_0^{PS+LSC}} \tag{5.1}$$

Скоростите на броене за PS във въздух се осредняват, а за референтен момент се взима момента на затваряне на PS в течен сцинтилатор. Скоростта на броене на PS в течен сцинтилатор в момента на затваряне се намира като екстраполираме към началния момент експоненциалната крива на намаляване на скоростта на броене. За всички проби в течен сцинтилатор скоростта на броене в зависимост от времето се апроксимира с функция $n(t) = n_0 e^{-\lambda t}$, където n_0 е скоростта на броене в момента на затваряне, а λ е константата на разпадане на ²²²Rn, тъй като от [24] е известно, че проба затворена в шишенце с течен сцинтилатор не изпуска активност извън шишенцето.

В таблица 5.1 са представени експерименталните резултати за ефективността за регистрация ε_c на едно разпадане, като е важно да се отбележи, че на едно разпадане на ²²²Rn съответстват 5.02 разпада на него и дъщерните му продукти. Вижда се, че ефективността за броене на пластмасови сцинтилатори във въздух е равна на 1.00 с 5% неопределеност.

5.2 Оценка на дължината на дифузия

Дължината на дифузия в пластмасовите сцинтилатори оценяваме по метода разработен от [16] и описан накратко по-горе в глава 3.2. След достатъчно време експонентите в уравнение (3.6) клонят към нула и съществен принос има само първата, като активността в пробата е $A(t) \propto exp(-\lambda_1 t)$. Константата λ_1 можем да намерим като наклона на линейната зависимост ln(A(t)). Експерименталните стойности се апроксимират по метода на най-малките квадрати с линейна функция от вида f(x) = ax + b, където коефициента $a \equiv \lambda_1$. Неопределеността на a се оценява по метода на най-малките квадрати, като в случая фитирането е направено със софтуера gnuplot.



Фигура 5.1: Оценка на дължина на дифузия на образци Е2 и Е2-5 от типа EJ-212. С черна линия е посочен момента след който се смята, че точките лежат на права линия. Данните преди този момент не се включват в апроксимацията.

Крайни резултати за всички измерени проби данните са представени в таблица 5.2. Експерименталните данни са обработени с други два метода. Първият метод апроксимира кривата на намаляване на активността от времето (уравнение (3.6)) със сума от пет експоненти [17], а втория метод апроксимира уравнение (3.6) с достатъчно експоненти до достигане на сходимост [25]. Предимството на последните два метода е, че се взимат предвид всички експериментални точки от кривата на десорбция.

За пробите B4 и B4-2 не можем да определим коректно дължината на дифузия L_D , поради голямата им дебелина. При тях са възможни голям спектър от стойности на L_D за постигането на същите експериментални резултати, в рамките на статистическата неопределеност.

Проба	Тип	Дебелина, µm	$L_D, \mu m$
E2	EJ-212	204.1	139.6 ± 2.2
E2-5	EJ-212	445.1	139.6 ± 1.7
$\mathbf{B4}$	BC-400	642.6	113.3 ± 3.0
B4-2	BC-400	646.1	110.4 ± 2.0
B4-3	BC-400	259.0	126.1 ± 1.8

Таблица 5.2: Крайни резултати за L_D , като неопределеността е дадена на ниво 1σ

Резултатите получени тук по метода предложен в [16] и потвърден в [26], че след достатъчно време съществен принос има само една експонента в развитието на зависимостта на активността от времето, съвпадат в рамките на оценените неопределености с резултатите по другите два метода, апроксимиране със сума от пет експоненти [17] и апроксимиране с достатъчно експоненти до достигане на сходимост [25].

5.3 Оценка на разтворимостта К

Разполагаме с два метода за определяне на разтворимостта на ²²²Rn в пластмасовите сцинтилатори. При първия метод разтворимостта К се определя едновременно с дължината на дифузия, като експерименталните данни от експеримента " L_D " се апроксимират с уравнение (3.6) при известна външна активност в началото на облъчването $A_{env}(t_0)$ и известна ефективна константа на разпад λ_{eff} на ²²²Rn. За свободни параметри се оставят L_D и K и уравнението се изрязва след петата експонента. Получените резултати са представени в таблица 5.3(a).

Проба	Тип	L, μm	K	σ_K	Проба	Тип	L, μm	K	σ_K
E2	EJ-212	204.1	10.0	0.9	EJ1	EJ-212	471.3	9.72	0.82
E2-5	EJ-212	445.1	9.3	0.7	$\mathbf{EJ2}$	EJ-212	461.4	9.65	0.83
B4-3	BC-400	259	11.2	0.9	BC1	BC-400	1104.1	10.42	0.83
(а) Експеримент " L_D "						(б) Екс	перимент	"K"	

Таблица 5.3: Разтворимости на ²²²Rn в пластмасови сцинтилатори.

Във втория метод за определяне на разтворимостта К използваме течен сцинтилатор в който се поставят пробите, незабавно след края на тяхното облъчване. Затварянето в течен сцинтилатор осигурява 100% ефективност за регистрация и спира загубата на активност от образеца поради десорбция. Чрез екстраполиране на кривата на спадане на скоростта на броене, можем да определим активността в пробата в момента на затварянето ѝ в шишенцето с течен сцинтилатор.

Активността в пробата $A(t_s, t_d)$ при време за сорбция t_s и време за десорбция t_d от уравнение (3.6) може да се запише като:

$$A(t_s, t_d) = KVF(t_s, t_d, L_D)A_V,$$
(5.2)

където $F(t_s, t_d, L_D)$ е функция на параметрите на облъчването и параметрите на сцинтилатора която се пресмята по теоретичния модел, V е обема на пробата, К е нейната разтворимост, а A_V е началната обемна активност във външния обем в който е извършено облъчването.

Функцията $F(t_s, t_d, L_D)$ отново от уравнение (3.6) е:

$$F(t_s, t_d, L_D) = \frac{8\lambda L_D^2}{L^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1}t_s}}{\lambda_{2k+1} - \lambda} e^{-\lambda_{2k+1}t_d}.$$
(5.3)

която се пресмята числено за всеки образец, където L е дебелината на образеца, t_s и t_d са времената на сорбция и десорбция, а λ_{2k+1} се пресмятат от уравнение (3.4). За дължината на дифузия L_D се използва получената от експеримента " L_D ". Стойността за началната обемна активност A_V може да се вземе от детектора AlphaGuard поставен в обема в който е извършено облъчването.

Активността в пробата в момента на затваряне на образеца в шишенце с течен сцинтилатор е $A = A(t_s, t_d)$, като времето за десорбция $t_d = 0$ h, тъй като са взети мерки пробите да бъдат затворени незабавно след края на облъчването. А намираме като екстраполираме кривата на спадане на активността в пробата пластмасов сцинтилатор до момента на прекратяване на десорбцията. Активността в пробата се представя като $A = n_0/5.02\varepsilon_c$ [23], където n_0 е чистата скорост на броене, а ε_c е ефективността за регистрация. Коефициента 5.02 се добавя поради факта, че на всяко разпадане на ²²²Rn се регистрират 5.02 отделни събития заради дъщерните му продукти.

След кратки преобразования получаваме израз за разтворимостта К на образеца:

$$K = \frac{n_0}{5.02VA_V F(t_s, t_d = 0, L_D)}$$
(5.4)

На таблица 5.3(6) са показани резултатите от експеримента, които са в добро съгласие с резултатите получени в експеримента " L_D " (таблица 5.3(a)). Резултатите могат да бъдат систематизирани за сцинтилаторите от различни типове като в таблица 6.1



Фигура 5.2: Спектър на EJ-212 и BC-400 с енергетична калибровка. За сравнение е показан по-рано получен спектър на 222 Rn разтворен в течен сцинтилатор RadonS [6]. Плътните линии показват апроксимацията с нормално разпределение. Спектрите са снети с детектор PERALS с α/β -разделяне за отхвърляне на сигнала от β -частици.

са представени осреднените стойности за разтворимостта и дължината на дифузия, заедно с техните неопределености на ниво 1σ , както са определени от двата експеримента.

5.4 Оценка на разделителната способност

Някои от образците бяха измерени със спектрометър PERALS с цел определяне на разделителната способност по енергии на пластмасовите сцинтилатори EJ-212 и BC-400. Предимството на PERALS е, че той е снабден с линеен аналогово-цифров преобразувател, за разлика от детектора RackBeta, който е с логаритмичен.

След снемане на α -спектри, елиминирайки β -частиците, чрез PSD, получените пикове се апроксимират с гаусово разпределение. От параметрите на фита се взимат положенията на центроидите и стандартното им отклонение (фигура 5.2). По трите пика, ²²²Rn, ²¹⁸Po и ²¹⁴Po, се извършва енергетична калибровка като намираме зависимостта на енергията E от номера на канала Ch, чрез линейна апроксимация от вида E = A.Ch + B.

Разделителна способност по енерги
и ${\cal R}$ на пик с дадена енергия ${\cal E}$ и полу-ширина

Сцинтилатор	E_{α} MeV	FWHM MeV	Разделителна способност %
BC-400	5.489 6.002 7.686	$0.234 \\ 0.265 \\ 0.326$	$\begin{array}{c} 4.16 \pm 0.21 \\ 4.35 \pm 0.34 \\ 4.15 \pm 0.26 \end{array}$
EJ-212	$5.489 \\ 6.002 \\ 7.686$	$0.230 \\ 0.260 \\ 0.326$	$\begin{array}{c} 4.09 \pm 0.16 \\ 4.28 \pm 0.19 \\ 4.16 \pm 0.16 \end{array}$
RadonS	$5.489 \\ 6.002 \\ 7.686$	$0.232 \\ 0.250 \\ 0.343$	$\begin{array}{c} 4.13 \pm 0.20 \\ 4.09 \pm 0.23 \\ 4.37 \pm 0.36 \end{array}$

Таблица 5.5: Оценки за разделителната способност за EJ-212, BC-400 и RadonS за пиковете в спектъра показан на фигура 5.2. Оценките на неопределеностите са взети от [27] и са дадени за дадени за ниво 1σ .

на половината височина *FWHM* е:

$$R = \frac{FWHM, \text{MeV}}{E, \text{ MeV}}.100\%$$

Енергията на пиковете в MeV получаваме чрез енергетичната калибровка и положенията на центроидите на пиковете. FWHM може да бъде оценена по различни начини. В настоящата работа е използвана апроксимация с гаусово разпределение. За оценка на FWHM в MeV, е използвана връзката $FWHM = 2.355A\sigma$, където σ е стандартното отклонение на гаусовото разпределение измервано в канали, а A [MeV/channel] е наклона на функцията на енергетичната калибровка.

Както се вижда от фигура 5.2 пластмасовите сцинтилатори от типа EJ-212 и BC-400 показват разделяне на пиковете сравнимо с това на течно-сцинтилационния коктейл RadonS, като разделителната им способност е около 4% (таблица 5.5).

Заключение

В настоящата работа е изследвана възможността на пластмасови сцинтилатори от тип EJ-212 на Eljen Technology и BC-400 на Saint-Gobain Crystals да абсорбират 222 Rn от въздушна среда. От двата вида сцинтилатори са изрязани правоъгълни образци с размери, удобни за измерване в детектор RackBeta 1219 Wallac, Finland, и дебелини от 250 до 650µm. Образците са поставени в среда с висока концентрация на 222 Rn до натрупване на активност в тях. Активността в пробите във времето се проследява в рамките на две седмици.

Направени са оценки за ефективността за регистрация на пластмасовите сцинтилатори във въздух, като проби са измерени във въздух и непосредствено след това в течен сцинтилатор.

Направени са експерименти за определяне на разделителната способност на EJ-212 и BC-400 като те показват разрешения, за пиковете на ²²²Rn и дъщерните му продукти, много близки до тези на течен сцинтилатор.

Дължината на дифузия е оценена по метода [16]. Получените стойности за L_D съвпадат в рамките на статистическата неопределеност със стойности оценени по други два метода: апроксимиране на кривата на десорбция със пет експоненти и апроксимиране със краен брой експоненти до достигане на сходимост.

Разтворимостта в пластмасови сцинтилатори е оценена по два метода приложени в двата отделни експеримента " L_D " и K. Получените резултати по двата метода съвпадат в рамките на статистическата неопределеност.

От извършените експерименти може да се заключи, че пластмасовите сцинтилатори от тип EJ-212 и BC-400 притежават разделителна способност за α -линиите на ²²²Rn абсорбиран в тях и дъщерните му продукти сравнима с тази за течен сцинтилатор. Имат 100±5% ефективности за регистрация за радон и дъщерните му продукти. Получените параметри, дължина на дифузия и разтворимост, показани в таблица 6.1, позволяват да се охарактеризира поведението на пластмасови сцинтилатори EJ-212 и BC-400 в среда с наличие на радон.

Тези параметри са определени за пръв път в тази работа и предоставят възмож-

ност за количествено описание на абсорбцията на ²²²Rn в пластмасови сцинтилатори. Резултатите от тази дипломна работа ще послужат за разработването на детектори за измерване на ²²²Rn базирани на абсорбция в пластмасови сцинтилатори, а също и за оценка на влиянието на Rn върху фона на пластмасовите сцинтилатори при други приложения.

Тип сцинтилатор	$L_D, \mu m$	Разтворимост К
EJ-212	139.6 ± 2.0	9.86 ± 0.47
BC-400	126.1 ± 1.8	10.43 ± 0.87

Таблица 6.1: Резултати за разтворимостта K и дължината на дифузия L_D на пластмасови сцинтилатори тип EJ-212 на Eljen Technology и BC-400 на Saint-Gobain Crystals

Библиография

- U. N. S. C. on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. Sources and effects of ionizing radiation. New York, NY, USA: UN Publications, 2008.
- [2] H. Möre and L. Hubbard, "²²²Rn absorption in plastic holders for alpha track detectors: A source of error.," *Rad. Prot. Dosim.*, vol. 74, pp. 85–91, 1997.
- [3] W. Rau, "Measurement of radon diffusion in polyethylene based on alpha detection.," Nuclear Instrments and Methods in Physics Research A, vol. 664, pp. 65–70, 2012.
- [4] M. Saito, Y. Tanizaki, and S. Takata, "A new monitor for radon in water using absorptive plastic scintillation counting," *Radioisotopes (Tokyo)*, vol. 55, no. 2, pp. 55–60, 2006. in Japanese.
- [5] D. Pressyanov, A. V. Deynse, J. Buysse, A. Poffijn, and G. Meesen, "Polycarbonates: A new retrospective radon monitor.," in *Proceedings of IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe.*, (Cedex, France), pp. 716–722, International Radiation Protection Association, 1999.
- [6] K. K. Mitev, "Measurement of ²²²Rn by absorption in plastic scintillators and alpha/beta pulse shape discrimination," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 110, pp. 236 – 243, 2016.
- [7] K. Mitev, "Thoron (²²⁰Rn detection with plastic scintillators," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 57, pp. 300–308, 2016.
- [8] M. L'Annunziata, Editor, Handbook of Radioactivity Analysis. Amsterdam, The Netherlands: Academic Press, Elsevier., third ed., 2012.
- [9] R. Hevener, M.-S. Yim, and K. Baird, "Investigation of energy windowing algorithms for effective cargo screening with radiation portal monitors," *Rad. Meas.*, vol. 58, pp. 113 – 120, 2013.

- [10] R. A. at. al., "Technical design and performance of the nemo 3 detector," Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. Sect. A, vol. 536, no. 1-2, pp. 79 – 122, 2005.
- [11] G. Bellini, A. Ianni, L. Ludhova, F. Mantovani, and W. McDonough, "Geoneutrinos," Progress in Particle and Nuclear Physics, vol. 73, pp. 1 – 34, 2013.
- [12] N. Akchurin and R. Wigmans, "Hadron calorimetry," Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. Sect. A, vol. 666, pp. 80 – 97, 2012.
- [13] J. Birks, The Theory and Practice of Scintillation Counting. Oxford: Pergamon Press, 1964.
- [14] E. O. A. level Chemistry, "Aromatic compounds." Aromatic Compounds Graphic, 2016.
- [15] E. Shram and R. Lombaert, "Organic Scintillation Detectors". Counting of low energy beta-emitters. Elsevier, 1963.
- [16] D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, and I. Dimitrova, "Sorption and desorption of radioactive noble gases in polycarbonates.," *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect.* A, vol. 598, pp. 620–627, 2009.
- [17] S. Georgiev, Nuclear methods for studies of the migration of radioactive noble gases. PhD thesis, Sofia University "St. Kliment Ohridski", in Bulgarian, Sofia, 2012.
- [18] K. Mitev, V. Zhivkova, D. Pressyanov, S. Georgiev, I. Dimitrova, G. Gerganov, and T. Boshkova, "Liquid scintillation counting of polycarbonates: A sensitive technique for measurement of activity concentration of some radioactive noble gases," *Appl. Radiat. Isotopes*, vol. 93, no. 0, pp. 87 – 95, 2014.
- [19] EljenTechnology, "General purpose ej-200, ej-204, ej-208, ej-212 properties." http: //www.eljentechnology.com/index.php/products/plastic-scintillators/ ej-200-ej-204-ej-208-ej-212, 2016.
- [20] S.-G. Crystals, "Bc-400,bc-404,bc-408,bc-412,bc-416 premium plastic scintillators properties." www.crystals.saint-gobain.com, 2016.
- [21] K. K. Mitev, P. Cassette, S. Georgiev, I. Dimitrova, B. Sabot, T. Boshkova, and I. Tartes, "Determination of ²²²Rn absorption properties of polycarbonate foils by liquid scintillation counting. application to ²²²Rn measurements," *Applied Radiation* and Isotopes, vol. 109, pp. 270 – 275, 2016.

- [22] L. T. de radionuclides, "Rn-222 table." http://www.nucleide.org/DDEP_WG/ Nuclides/Rn-222_tables.pdf, 2016.
- [23] P. Cassette, M. Sahagia, L. Grigorescu, M. Lepy, and J. Picolo, "Standardization of 222rn by lsc and comparison with alpha- and gamma-spectrometry.," *Applied Radiation and Isotopes.*, vol. 64, pp. 1465–1470, 2006.
- [24] K. Mitev, S. Georgiev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, V. Zhivkova, and T. Boshkova, "A high-sensitivity method for the measurement of ²²²Rn based on liquid scintillation counting of polycarbonate powder," *Rad. Prot. Dosim.*, vol. 160, no. 1-3, pp. 188– 191, 2014.
- [25] L. Tsankov, "Private comunication," 2016.
- [26] K. Rovenská and M. Jiránek, "1st international comparison measurement on assessing the diffusion coefficient of radon," *Rad. Prot. Dosim.*, vol. 145, pp. 127–132, 2011.
- [27] T. Boshkova, "Private comunication," 2016.