

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



**ЗБОРНИК
РАДОВА**

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

**Београд
2017. године**

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



PROCEEDINGS

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

**Belgrade
2017**

ЗБОРНИК РАДОВА

XXIX СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ
27-29.09.2017.

Издавачи:

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

За извршног издавача:

Др Борислав Грубор

Уредници:

Др Јелена Станковић Петровић
Др Гордана Пантелић

ISBN 978-86-7306-144-3

© Institut za nuklearne nauke „Vinča“

Техничка обрада:

Јелена Станковић Петровић, Гордана Пантелић

Штампа:

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

Тираж:

150 примерака

Година издања:

Септембар 2017.

ISPITIVANJE BRZINE EKSHALACIJE RADONA: UTICAJ SPRAŠENOSTI I VLAŽNOSTI UZORKA

**Igor ČELIKOVIĆ¹, Mirjana ĐURAŠEVIĆ¹, Predrag UJIĆ, Predrag REPIĆ¹,
Aleksandar KANDIĆ¹, Boris LONČAR²**

1) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke "Vinča", Beograd, Srbija,
icelikovic@vin.bg.ac.rs*

2) *Univerzitet u Beogradu, Tehnološko-metalurški fakultet, Beograd, Srbija*

SADRŽAJ

U radu je merena ekshalacija radona iz bigra iz Niške Banje poznatom po povišenoj koncentraciji ²²⁶Ra. Bigar zbog svoje velike poroznosti i visoke koncentracije radijuma je idealan materijal za testiranje parametara od kojih zavisi brzina ekshalacije. U radu je razmatrana zavisnost ekshalacije u odnosu na vlažnost kao i na sprášenost uzorka. Brzina ekshalacije je merena metodom zatvorene komore, a sama koncentracija radona aktivnim uređajem. Dobijeni rezultati ukazuju da brzina ekshalacije raste sa povećanjem vlažnosti uzorka i smanjenjem veličine zrna.

1. UVOD

Na osnovu nedavno sprovedenih objedinjenih epidemioloških studija u Evropi[1], Americi[2] i Aziji[3], koje su ukazale na postojanje veze između koncentracije radona u zatvorenim prostorijama i kancera pluća, Svetska Zdravstvena Organizacija je procenila da između 3% i 14% svih kancera pluća potiče od radona i njegovih potomaka [4].

Koncentracija radona u zatvorenim prostorijama zavisi od brojnih faktora, kao što su: zemljište na kojem je izgrađen objekat, građevinski materijal, izvor vode u domaćinstvu, meteorološki uslovi, životne navike stanovništva... U prizemnim objektima, dominantni izvor radona je okolno zemljište odakle nastao radon prolazi kroz pukotine, spojeve (i sl.) i ulazi u zatvorene prostorije. Sledeći važan izvor radona je građevinski materijal, koji na višim spratovima postaje dominantan izvor radona.

U eri politike smanjenja otpada i povećanja njegove iskoristivosti, kao građevinski materijal se uvode cigle na bazi pepela dobijenog sagorevanjem uglja, koje imaju veću koncentraciju radionuklida nego ugalj pre sagorevanja. Takođe, sa povećanjem svesti o energetske efikasnosti objekata, stanovništvo ima tendenciju da živi u objektima sa prozorima i vratima koji sve bolje i bolje dihtuju, smanjujući time srednju brzinu izmene vazduha. Sve to za posledicu ima povećanje koncentracije radona u zatvorenim prostorijama na višim spratovima koje gotovo isključivo dolaze od građevinskog materijala [5]. Dok je s jedne strane ograničavanje specifične aktivnosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K, uvođenjem gama indeksa [6], tako da godišnja doza usled izlaganja spoljašnjem gama zračenju u zatvorenom prostorijama ne prelazi 1 mSv godišnje, regulisano u većini zemalja, unutrašnje izlaganje radonu usled ekshalacije iz građevinskog materijala nije regulisano.

U samim preporukama Evropske komisije [6] je procenjeno da se za gama doze koje ne prelaze 1 mSv godišnje, ne očekuje da koncentracija radona bude veća od 200 Bq m⁻³. Međutim, pokazano je da je moguće da koncentracije radona ²²²Rn mogu da pređu 200 Bq m⁻³ za građevinski materijal koji ima specifičnu aktivnost ²²⁶Ra veću od 200 Bq kg⁻¹ [7], kao i da je pri maloj brzini izmene vazduha moguće da interno izlaganje radonu usled njegove ekshalacije iz građevinskog materijala bude veće od izlaganja spoljašnjem zračenju koje potiče od ²²⁶Ra [8]. Stoga ne čudi povećano interesovanje za ispitivanje brzine

ekshalacije radona. Na brzinu ekshalacije radona pored koncentracije radijuma utiču i poroznost materijala, snaga emanacije, površina materijala, veličina zrna, vlažnost.

Cilj ovog rada je da se ispita uticaj veličine zrna kao i uticaj vlage na brzinu ekshalacije radona. Za merenje ekshalacije radona je korišćen metod zatvorene komore [9], kod kojeg se uzorak postavlja u komoru, koja bi trebalo po zatvaranju da dobro dihtuje. Po zatvaranju komore prati se povećanje koncentracije radona s vremenom. Koncentracija radona je merena aktivnim uređajem RTM1688-2, proizvedenim u SARAD GmbH, Drezdenu, Nemačka.

2. MATERIJAL I METODI

Kao materijal za ispitivanje brzine ekshalacije radona od stepena vlažnosti i granulacije uzorka korišćen je bigar iz Niške Banje. Bigar je sedimentna stena, nastao taloženjem kalcijum karbonata iz vodenog toka. Tekstura mu je šupljikava, pa se vrlo lako može mehanički usitniti. Pored toga, bigar iz Niške Banje sadrži visoku koncentraciju ^{226}Ra , čime se višestruko skraćuje vreme merenja u odnosu na vreme merenja potrebno da se za tipičan građevinski materijal dobije ista statistika.

Uzorci su pripremljeni tako što se bigar prvo usitnjavao, a potom se prosejavao kroz sita različite veličine. Uzorci su na osnovu veličine zrna klasifikovani u 4 grupa: 1.) 2,1 – 1,6 mm, 2.) 1,6 – 1,2 mm, 3.) 1,2 – 0,7 mm i 4.) < 0,7 mm. Potom su stavljeni u cilindrične PVC kutijice zapremine 250 ml. S obzirom na lako sprušavanje bigra, bilo je teško kontrolisati njegovo usitnjavanje do željene veličine, pa je stoga dobijena masa različitih uzoraka bila različita: po 2 kutijice su upotrebljene za uzorke iz grupe 1 i 2, ukupno 3 kutijice za uzorke iz grupe 3, te 4 kutijice za uzorke iz grupe 4.

Svi uzorci su mereni koaksijalnim HPGe detektorom (Canberra GX5019, $\epsilon_r=55,1\%$ i FWHM=1,75 keV za ^{60}Co gama liniju od 1332 keV). Kalibracija detektora je određena na osnovu matrice zemlje stavljene u cilindričnu kutijicu identičnih dimenzija, spajkovane standardnom mešavinom gama emitera dobijene od Češkog instituta za metrologiju. Za proračun koncentracije ^{226}Ra je korišćena gama linija od 186 keV, a korekcija u slučaju prisustva "kontaminanta" ^{235}U , je određena na osnovu gama linije od 144 keV. Vreme merenja uzoraka na HPGe detektoru je bilo toliko da neodređenost izmerene koncentracije ^{226}Ra ne bude veća od 1%.

Za određivanje brzine ekshalacije radona je korišćen metod zatvorene komore. Kutijice sa uzorcima su bez poklopaca stavljane u komoru, koja se potom pažljivo zatvarala kako bi se smanjilo curenje radona iz komore. Vazduh iz komore je preko dva ventila povezan sa aktivnim uređajem RTM1688-2 koji je kontinualno merio koncentraciju radona u komori. Nagomilavanje radona u komori usled ekshalacije radona, u slučaju dobro zatvorene komore se može opisati sledećom jednačinom [10]:

$$C(t) = \frac{E_m m}{\lambda V} (1 - e^{-\lambda t}) + C_0 e^{-\lambda t} \quad (1)$$

gde su:

C - koncentracija radona u Bq m^{-3} u vremenu t (s), C_0 - inicijalna koncentracija radona u trenutku zatvaranja komore Bq m^{-3} , E_m - masena brzina ekshalacije u Bq $\text{kg}^{-1} \text{s}^{-1}$, m - masa uzorka u kg λ - konstanta raspada ^{222}Rn izražena u (s^{-1}) i V (m^3) je ukupna zapremina mernog sistema koja obuhvata zapreminu akumulacione komore, cevčica i mernu komoru samog uređaja.

S obzirom da je pripremljena različita masa uzoraka za različitu granulaciju i da je korišćen različit broj PVC kutijica, brzina ekshalacije je izražena kao masena brzina ekshalacije E_m , odakle se može izraziti i brzina ekshalacije.

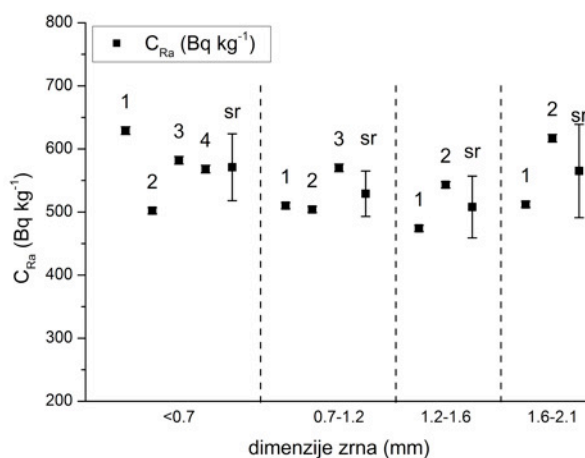
Zapremina uzorka je mnogo manja od 10% od ukupne zapremine sistema, tako da se efekat povratne difuzije ("back diffusion") može zanemariti [11]. U slučaju curenja radona, uvodi se efektivna konstanta raspada ($\lambda_{\text{eff}} = \lambda + \lambda_{\text{leak}}$) koja koriguje konstantu raspada za brzinu curenja radona iz komore. Fitovanjem krive (1) direktno se dobija λ_{eff} odakle se znajući λ može direktno izračunati konstanta curenja radona iz komore.

Uzorci pre merenja nisu isušivani, već su stavljeni u komoru po ambijentalnim uslovima. Po završetku merenja, uzorci su sušeni na temperaturi od 105 °C i na osnovu razlike u masi pre i posle isušivanja uzorka, procenjen je sadržaj vlage u uzorku pri ambijentalnim uslovima. Za ispitivanje uticaja vlažnosti na brzinu ekshalacije, korišćeni su sprášeni uzorci veličine zrna < 0,7 mm. Pored brzine ekshalacije pri ambijentalnim uslovima, merena je i brzina ekshalacije uzoraka kod kojih je sadržaj vlage oko 10 i 20% mase isušenog uzorka.

Sva merenja su trajala u periodu od 5 do 7 dana, a vreme pojedinačnog uzorkovanja 1 h.

3. REZULTATI I DISKUSIJA

Na slici 1 su prikazane izmerene koncentracije ^{226}Ra za sve uzorke grupisane po krupnoći zrna. Iako je neodređenost izmerene koncentracije radijuma pojedinačnog uzorka oko 1%, varijacija srednje vrednosti za grupu uzoraka se kreće između 7 i 13%.

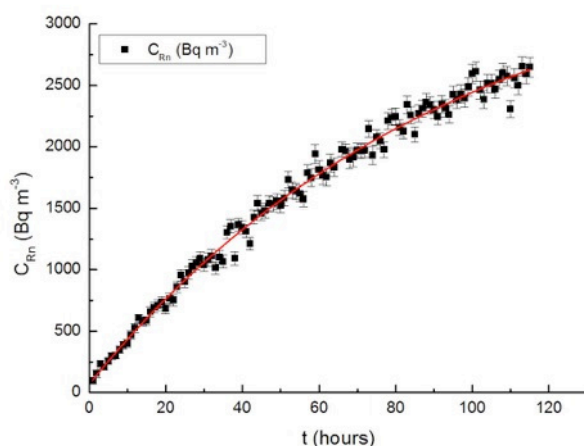


Slika 1. Specifična aktivnost ^{226}Ra (Bq kg $^{-1}$) izmerena za svaki uzorak grupisana po krupnoći zrna. Srednja vrednost za datu grupu uzoraka označena sa sr.

Na osnovu dobijene srednje vrednosti za svaku grupu merenja i odgovarajuće standardne devijacije, date i u tabeli 1, statistički se može reći da su srednje vrednosti koncentracije radijuma jednake.

Od trenutka stavljanja uzorka u komoru i njenog zatvaranja, dolazi do porasta koncentracije radona u komori, pa posle 5 srednjih vremena života (oko 27 dana), koncentracija dostiže oko 95% od svoje maksimalne vrednosti. Porast koncentracije radona u komori izmerena aktivnim uređajem RTM1688-2 u funkciji od vremena, je za slučaj sprášenih uzorka veličine < 0,7 mm prikazan na slici 2.

Dobijeni rezultati se fituju na krivu opisanu jednačinom 1, pri čemu su slobodni parametri: masena brzina ekshalacije E_m , efektivna konstanta raspada λ_{eff} i početna koncentracija radona C_0 .



Slika 2. Kriva nagomilavanja radona u komori merena za sprašeni uzorak dimenzije < 0.7 mm

Ova procedura je ponovljena za sve uzorke, a dobijeni rezultati merenja brzine ekshalacije radona u zavisnosti od veličine zrna su dati u tabeli 1, dok su vrednosti ekshalacije u zavisnosti od vlažnosti uzorka date u tabeli 2. Budući da je vreme merenja prikazano u satima, zbog intuitivnosti su i za λ_{eff} i E_m korišćeni sati umesto sekundi. Kao meru kvaliteta fita dat je prilagođen koeficijent korelacije (adj. R^2).

Tabela 1. Rezultati merenja brzine ekshalacije radona za uzorke različite granulacije. U tabeli su naznačeni: veličina uzorka, C_{226Ra} - specifična aktivnost radijuma, m - masa uzorka, λ_{eff} - efektivna konstanta raspada, C_0 - početna koncentracija radona, E_m - masena brzina ekshalacije, kao i kvalitet fita (adj R^2)

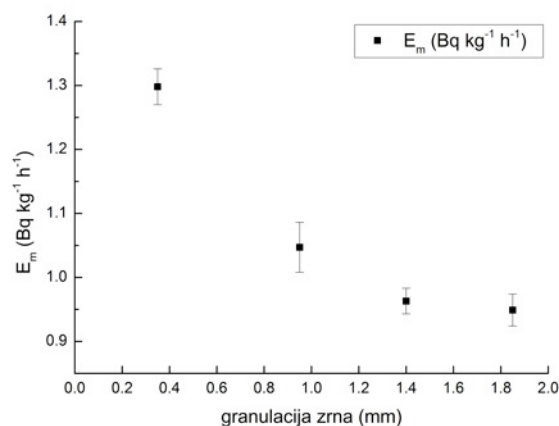
Veličina uzorka (mm)	m (kg)	C_{226Ra} (Bq kg ⁻¹)	λ_{eff} 10 ⁻⁴ (h ⁻¹)	C_0 (Bq m ⁻³)	E_m (Bq kg ⁻¹ h ⁻¹)	Adj R^2
< 0,7	0,910	551 ± 53	106,8±5,6	66±13	1,298±0,028	0,994
0,7 - 1,2	0,505	529 ± 36	82±10	84,5±7,4	1,047±0,039	0,990
1,2 - 1,6	0,323	508 ± 49	107,5±4,9	-19±1	0,963±0,020	0,993
1,6 - 2,1	0,293	564 ± 74	87,3±5,1	12,9±4,6	0,949±0,025	0,986

Efektivna konstanta raspada varira od $8,2 \cdot 10^{-3}$ do $10,8 \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$, što ukazuje da komora nije podjednako zaptivala za svako merenje. Brzina curenja radona iz komore se stoga kreće u opsegu od $7 \cdot 10^{-4} \text{ h}^{-1}$ do $3,2 \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$. U slučaju merenja aktivnim uređajem, varijacija curenja radona ne predstavlja problem jer se iz krive raspada koja se kontinualno meri dobija vrednost efektivne konstante raspada. Međutim, da se pri istim uslovima ekshalacija merila pasivnim uređajem, dobijena brzina ekshalacije bi bila potcenjena u odnosu na stvarnu, na šta je posebno obratiti pažnju.

Inicijalna vrednost koncentracije radona je u dva slučaja procenjena na 66 Bq m^{-3} i $84,5 \text{ Bq m}^{-3}$, što ukazuje ili da radonska komora nije zatvorena u sredini sa niskim

radonom, ili da komora uređaja pre merenja nije bila isprana od radona. Pri merenju aktivnim uređajem, ovo ne predstavlja problem, ali da se merilo pasivnim uređajem, ne bi se mogla izvršiti korekcija na početnu koncentraciju radona, pa bi dobijena koncentracija radona bila precenjena.

Merenje je pokazalo da sa smanjenjem veličine zrna dolazi do povećanja brzine ekshalacije. U cilju bolje reprezentacije rezultata, pretpostavljeno je da je distribucija veličine zrna unutar svake grupe uniformna, što znači da bi srednjoj veličini zrna iz opsega odgovarala izmerena brzina ekshalacije, što je prikazano na slici 3.



Slika 3. Zavisnost masene brzine ekshalacije od granulacije uzorka. Za granulaciju zrna je uzeta srednja vrednost zrna za svaku grupu

Sa smanjenjem veličine zrna, povećava se verovatnoća da će atom radijuma koji se raspada naći blizu površine zrna, povećavajući time verovatnoću da radon difunduje iz tog zrna, što dovodi do porasta brzine ekshalacije.

U cilju ispitivanja sadržaja vlage, uzorci su po završetku merenja sušeni na temperaturi od 105 °C. Razlika u masi uzoraka od svega 1-1,5% pre i posle sušenja uzoraka, ukazuje na to da je bigar bio praktično suv prilikom merenja. Kako bi se ispitao uticaj vlažnosti, uzorcima najsitnije granulacije se dodavala voda čija je masa iznosila oko 10% i 20% mase isušenog uzorka. Rezultati brzine ekshalacije E (Bq h⁻¹) u zavisnosti od vlažnosti su dati u tabeli 2.

Tabela 1. Rezultati merenja brzine ekshalacije radona u zavisnosti od vlažnosti uzorka

masa vode (%) mase suvog uzorka	λ_{eff} 10 ⁻⁴ (h ⁻¹)	C_0 (Bq m ⁻³)	E (Bq h ⁻¹)	Adj R ²
1	106,8±5,6	66±13	1,182±0,025	0,994
8	85,1±4,3	70±10	1,432±0,024	0,997
20	80±12	3±18	1,422±0,056	0,996

Izmerena brzina ekshalacije za vlažne uzorke je veća od brzine ekshalacije suvog uzorka. Ovakav rezultat ne čudi, budući da pore napunjene vodom smanjuju domet radona koji je emanirao iz zrna bigra, povećavajući time verovatnoću da radon ostane u tim porama, odnosno smanjujući time verovatnoću da se usled uzmarka atom radona

zarobi u susedno zrno. Nije uočena razlika između brzine ekshalacije za 2 vlažna uzorka iako je očekivana. Jedna od mogućih interpretacija bi bila da su pore u oba slučaja već bile ispunjene vodom, tako da sa povećanjem vlažnosti uzorka, nije došlo do daljeg povećanja ovog efekta.

4. ZAKLJUČAK

U radu je ispitivan uticaj granulacije i vlažnosti materijala na brzinu ekshalacije. Kao materijal je korišćen bigar iz Niške Banje zbog vrlo visoke koncentracije ^{226}Ra , koja prelazi 500 Bq kg^{-1} . Uočeno je povećanje brzine ekshalacije sa smanjenjem veličine zrna i taj efekat je izraženiji što je granulacija finija. Rezultat ukazuje da je za isti tip građevinskog materijala poželjnije koristi onaj sa krupnijom granulacijom, kako bi se smanjila ekshalacija radona, a samim tim i doza usled izlaganja radonu.

Brzina ekshalacije radona je veća za vlažni uzorak u odnosu na suvi. Budući da nije bilo promene brzine ekshalacije kada je masa vode iznosila 8% i 20% od mase suvog uzorka, autori pretpostavljaju da je došlo do zasićenja pora vodom. Efekat je potrebno detaljnije ispitati, kako bi se videlo da li ekshalacija dostiže plato ili ima tendenciju opadanja. Takođe, ispitivanjem malog sadržaja vlage, utvrdiće se stepen rasta brzine ekshalacije i koliko brzo dolazi do maksimuma ekshalacije. Preliminarni rezultati ukazuju da usled povećanja vlage efektivna doza može da poraste preko 20% i potrebno ju je uvrstiti u procenu doze usled radona.

5. ZAHVALNICA

Autori se zahvaljuju Ministarstvu prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije za finansiranje projekata: P171018 i P171007.

6. LITERATURA

- [1] S. Darby et al. Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies. *BMJ*, 330, 2005, 223.
- [2] D. Krewski et al. A combined analysis of North American case-control studies of residential radon and lung cancer. *J. Toxicol. Environ. Health A*. 69, 2006, 533-597.
- [3] J.H. Lubin et al. Risk of lung cancer and residential radon in China: pooled results of two studies. *Int J Cancer*. 109, 2004, 132-137.
- [4] WHO Handbook on Indoor Radon. WHO, Geneva, 2009
- [5] I.V. Yarmoshenko, A.V. Vasilyev, A.D. Onishchenko, S.M. Kiselev, M.V. Zhukovsky, Indoor radon problem in energy efficient multi-storey buildings, *Radiat. Prot. Dosim.* 160, 2014, 53–56.
- [6] Radiation protection 112-Radiological Protection Principles Concerning the Natural Radioactivity of Building Materials. Directorate-General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection, European Commission, 1999.
- [7] Naturally Occurring Radiation in the Nordic Countries—Recommendations. The Flag-Book Series, The Radiation Protection Authorities in Denmark, Finland, Iceland, Norway and Sweden, Reykjavik, 2000.
- [8] P. Ujić, I. Čeliković, A. Kandić, I. Vukanac, M. Đurašević, D. Dragosavac, Z.S. Žunić. Internal exposure from building materials exhaling ^{222}Rn and ^{220}Rn as compared to external exposure due to their natural radioactivity content. *Appl. Radiat. Isot.* 68, 2010, 201–206.

- [9] N.P Petropoulos, M.J Anagnostakis, S.E Simopoulos. Building materials radon exhalation rate: ERRICCA intercomparison exercise results, *Science of The Total Environment*. 272, 2001, 109–118.
- [10] P. Ujić, I. Čeliković, A. Kandić, Z. Žunić. Standardization and difficulties of the thoron exhalation rate measurements using an accumulation chamber. *Radiat. Meas.* 43, 2008, 1396–1401.
- [11] A. Poffijn, R. Bourgoignie, R. Mirijins, J. Uyttenhove, A. Janssens, R. Jacobs. Laboratory measurements of radon exhalation and diffusion. *Radiat. Prot. Dosim.* 7, 1984, 77–79.

INVESTIGATION OF THE RADON EXHALATION RATE: AN INFLUENCE OF HUMIDITY AND A GRAIN SIZE

Igor ČELIKOVIĆ¹, Mirjana ĐURAŠEVIĆ¹, Predrag UJIĆ, Predrag REPIĆ¹, Aleksandar KANDIĆ¹, Boris LONČAR²

1) University of Belgrade, "Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, Serbia, icelikovic@vin.bg.ac.rs

2) University of Belgrade, Faculty of Technology and Metallurgy, Belgrade, Serbia

ABSTRACT

In this contribution, radon exhalation rate from travertine originating from Niška Banja, Serbia was measured. This particular travertine, with a high ²²⁶Ra concentration and high porosity, is ideal for testing various parameters that can influence radon exhalation rate. The radon exhalation rate was investigated for different sizes of grains. Grain sizes were divided into 4 groups: 1) 2.1 - 1.6 mm, 2.) 1.6 - 1.2 mm, 3.) 1.2 - 0.7 mm i 4.) < 0.7 mm. Influence of the humidity on radon exhalation rate was also investigated. Samples with the smallest grain size were exposed to 3 different levels of humidity (dry sample, and two samples in which water content was around 10% and 20% of the mass of dry sample. An accumulation chamber method with an active device RTM1688-2 was used to estimate radon exhalation rate from continuous measurement of radon in the chamber. Obtained results indicate that radon exhalation rate is increasing with an increase of humidity of the sample and with an decrease of grain size.