

TARTU ÜLIKOOL

Loodus- ja täppisteaduste valdkond

Füüsika Instituut

Anne Serv

**EESTI RANNALIIVADE RADOONI EMANATSIOON
JA EKSHALATSIOON**

Bakalaureusetöö (12 EAP)

Juhendajad:

Rein Koch, PhD

Alan Henry Tkaczyk, PhD

Tartu 2017

EESTI RANNALIIVADE RADOONI EMANATSIOON JA EKSHALATSIOON

Käesoleva töö eesmärgiks oli uurida Lohusalu ja Pärnu ranna liivade (4 liivaproovi) radooni ($Rn-222$) eraldumist kahel viisil: liivaproovist massiühiku kohta väljuvat radooni voogu ning hinnata liivast väljuvat radooni suhet liivaterades raadiumi lagunemisel tekkivasse radooni. Nende mõõtmiste jaoks oli vaja mõõta radoonisisaldust ning seetõttu uuriti ka erinevaid mõõteseadmeid. Selle töö käigus vaadeldi liivafraktsioone $> 500 \mu m$, $> 250 \mu m$, $> 150 \mu m$ ja integraalne.

Töö tulemusena selgus, et Lohusalu 1970ndatest (LS-70) pärit proovi kõik suurusjaotused omavad suuremat massiekshalatsiooni tegurit kui 2016 aastast pärit proov (Lohusalu 2016). Seejuures aktiivseim liivaproov oli LS-70 integraalne fraktsioon (jaotust $> 500 \mu m$ ei uuritud), mille massiekshalatsioonitegur oli suurusjärgus $110 \text{ mBq}/(\text{kg}\cdot\text{h})$. Lohusalu 2016 proovi suurimat massiemanatsiooni tegurit omas väiksem fraktsioon (integraalset ei mõõtnud). Ülejäänud Lohusalu 2016 fraktsioonide ning Pärnu proovide (veepiir ja kallas) massiekshalatsioonid jäid suurusjärku $32 \text{ mBq}/(\text{kg}\cdot\text{h})$.

Emanatsioonikoefitsientide uurimise tulemusel selgus, et liivaterade suurunedes emanatsioonikoefitsient väheneb. Lisaks sellele omasid Lohusalu liivaproovid väiksemat emanatsioonikoefitsienti ($< 0,11$) kui Pärnu ranna liivaproovid, kus kaldaproovi emanatsioonikoefitsient võid küündida 0,45-ni.

Märksõnad: Radooni mõõteseadmed, Radooni emanatsioon, Radooni ekshalatsioon, Rannaliiv.

CERCS koodid: P220 Tuumafüüsika, P460 Sedimentoloogia, T270 Keskkonnatehnoloogia, reostuskontroll

EMANATION AND EXHALATION OF RADON IN ESTONIAN BEACH SAND

The aim of this thesis was to study radon release from Lohusalu and Pärnu beach sand (4 samples) in two ways: outgoing radon ($Rn-220$) flux per unit mass and the proportion of outgoing radon from sand sample to the radon produced by radium decay. Radon measurements were necessary to achieve this goal, and for this reason various radon measurement devices were studied. During this study, 4 sand fractions were investigated: $> 500 \mu m$, $> 250 \mu m$, $> 150 \mu m$ and integral fraction.

The results indicated that the Lohusalu sample from 1970s (LS-70) have a larger mass exhalation rate than the Lohusalu sample from 2016 (Lohusalu 2016) in all fractions. The most active sand sample was the LS-70 integral fraction (fraction $> 500 \mu m$ was not investigated), which had a mass exhalation rate of approximately $110 \text{ mBq}/(\text{kg}\cdot\text{h})$. The smallest fraction in the Lohusalu 2016 sand had the largest mass exhalation rate (integral fraction was not investigated). The other Lohusalu 2016 sample fractions and Pärnu beach (waterline and shore) samples had mass exhalation rates of approximately $32 \text{ mBq}/(\text{kg}\cdot\text{h})$.

According to emanation measurements, the emanation coefficient decreases with increases in sand grain size. In addition, compared to the Pärnu samples (up to 0.45), the Lohusalu samples exhibited lower emanation coefficients (up to 0.11).

Keywords: Radon measurement devices, Radon emanation, Radon exhalation, Beach sand.

CERCS codes: P220 Nuclear physics, P460 Sedimentology, T270 Environmental technology, pollution control

Sisukord

Sissejuhatus	5
1. Teoreetiline osa	6
1.1 NORM materjalid	6
1.2 Must liiv	6
1.3 Radoon	7
1.3.1 Radooni ohtlikkus	8
1.4 Emanatsioon	9
1.4.1 Emanatsiooni mõjutavad tegurid	10
1.4.2 Emanatsiooni mõõtmine	11
1.5 Ekshalatsioon	12
1.5.1 Ekshalatsiooni mõjutavad tegurid	12
1.5.2 Ekshalatsiooni kiiruse mõõtmine	13
1.6 Radooni aktiivsuskontsentratsiooni mõõteseadmed	13
1.6.1 Passiivsed mõõteseadmed	14
1.6.2 Aktiivsed mõõteseadmed	15
2. Eksperimentaalne osa	18
2.1 Massiekshalatsioon	21
2.1.1 Radon Monitor RM3-B	21
2.1.2 Metoodika	22
2.1.3 Lekked	24
2.1.4 Tulemused	25
2.2 Emanatsioon	27
2.2.1 Mõõteseade	27
2.2.2 Metoodika	28
2.2.3 Tulemused	29
2.2.4 Emanatsiooni ja ekshalatsiooni tulemuste analüüs	31
Tänuavaldused	33
Kasutatud kirjandus	34
Lihtlitsents lõputöö reprodutseerimiseks ja lõputöö üldsusele kättesaadavaks tegemiseks	36

Sissejuhatus

Eesti suur hulk inimesi on kuulnud kiirgusohklikust gaasist radoon ning selle mõjust inimesele, kuid sajandeid tagasi see nii ei olnud. 16. sajandist alates märgati Kesk-Euroopas, et allmaakaevurid surevad hingamisteede haigustesse palju sagedamini kui teised. Alles 20. sajandil hakati seostama kopsuvähi teket radooniga ning 1950. aastaks oldi selles veendunud. 1988. aastal nimetaski Rahvusvaheline Aatomienergia Agentuur IAEA radooni kantserogeeniks. [1]

1980ndatest alates on toimunud palju uuringuid radooni ja tema mõju kohta [1]. Ka tänasel päeval on radoon aktuaalne ning seda kinnitab 5. detsembril 2013 vastu võetud ning 6. veebruaril 2018 jõustuv põhiliste ohutusnormide direktiiv 2013/59/EURATOM, millega kehtestatakse põhilised ohutusnormid kaitseks ioniseeriva kiirguse eest ning selles on mainitud ka radooni kui kopsuvähi tekitajat. [2]

Aastasest kiirgusdoosist umbes 43 % on põhjustatud radoonist ning seetõttu on ta põhiline ioniseeriva kiirguse allikas. Suur osa radoonist on pärit maa seest, kus ta tekib maapinnas oleva uraani lagunemise ühe laguproduktina. Uraan ei jaotu pinnases ühtlaselt ning sellest tulenevalt on osad piirkonnad suurema kiirgusohuga kui teised. [3]

Käesoleva töö teoreetilises osas on ülevaade looduslike radionukliidide sisaldavatest materjalidest, eelkõige mustast liivast, radoonist ja tema mõjust tervisele. Lisaks sellele tutvustatakse emanatsiooni ja ekshalatsiooni määramise meetodeid ning radooni sisalduse määramiseks kasutatavaid seadmeid.

Töö teises pooles uuriti järgmisi Eestist pärit liivaproove: Lohusalust 1970ndatel aastatel võetud liivaproov, Lohusalust 2016. aastal võetud liivaproov ning Pärnu rannast 2017. aastal võetud liivaproovid veepiirilt ja kaldalt. Need sõeluti ning saadi järgmised fraktsioonid: jäme fraktsioon, $> 500 \mu\text{m}$, $> 250 \mu\text{m}$, $> 150 \mu\text{m}$, $> 106 \mu\text{m}$, $> 75 \mu\text{m}$, $> 38 \mu\text{m}$ ja $0 \dots 38 \mu\text{m}$.

Töö teises pooles leitakse Eestist pärit liivaproovide erinevate fraktsioonide ($> 500 \mu\text{m}$, $> 250 \mu\text{m}$, $> 150 \mu\text{m}$ ja integraalne) massiekshalatsiooni tegurid ja emanatsioonikoefitsientid. Ekshalatsioonitegurite hindamiseks kasutades akumulatsiooni meetodit. Emanatsioonikoefitsientid leitakse gamm-spektrite analüüsimise tulemusena. Mõõdetud spektrite põhjal hinnatakse ka proovide suhtelist aktiivsust. Saadud tulemuste põhjal leitakse liivaterade suuruse ja leitud suuruste vahel seaduspärasusi.

1. Teoreetiline osa

1.1 NORM materjalid

NORM materjalideks nimetatakse looduslikke radionukliide sisaldavaid materjale (alles töötlemise tagajärjel NORM). Põhilisteks radionukliidideks on uraan-238 (U-238), toorium-232 (Th-232) ning nende lagunemisritta kuuluvad radioaktiivsed tütarelemendid ja radioaktiivne kaalium-40 (K-40). Need radionukliidid ning mõned nende tütarelemendid on pika poolestusajaga ning seega saab neid vaadelda konstantse aktiivsusega kiirgusallikana. [4, 5]

Enamus radionukliide on pärit Maa maakoorest ja vahevööst, kus need on ebaühtlaselt jaotunud. Maavarasid kaevandades ja neid kasutades avame end nende kiirgusallikate kiirgusele. Lisaks sellele, maavarade töötlemise ja kasutamise käigus radionukliidid võivad kontsentreeruda. Valdkonnad, kus tekivad NORM materjalid:

- Joogivesi ja selle käitlemine;
- Metallurgia;
- Nafta- ja gaasitööstus (tootmine);
- Söetööstus (kaevandamine ja põletamine);
- Ehitusmaterjalide tootmine;
- Väetiste tootmine (fosforväetis);
- Mineraalliivad (haruldased muldmetallid, titaan ja tsirkoonium)
- Taaskasutus.

Niisiis inimesed oma igapäevase tegevuse käigus puutuvad kokku NORM materjalidega, mis on ioniseeriva kiirguse allikad. [4, 5]

1.2 Must liiv

Mustaks liivaks nimetatakse musta värvusega liivasid. Esimene (ja levinuim) tüüp mustasid liivasid on vulkaanilise päritoluga, tekkides basaldi, vulkaanilise klaasi, andesiidi murenemisel. Seda tüüpi liiv koosneb järgmistest mineraalidest: pürokseenid, amfiboolid, raudoksiidid. [6]

Teist tüüpi must liiv esineb enamasti mandritel, on tumeda värvusega ning sisaldab raskeid mineraale, mille erikaal on üle 2,9 kg/l. Need mineraalid on suhteliselt murenemiskindlad, nt turmaliin, magnetiit, granaat, rutiil, ilmeniit (raudtitaanoksiid), tsirkoon, epidoot, stauroliit. Seda tüüpi liivades on rasked mineraalid heleda kvartslia sees, kuid soodsatel tingimustel (üldiselt vooluvee, lainete ja tuule tõttu) rasked mineraalid kuhjuvad ning moodustavad randades ja settelasundites tumedaid triipe. Ka Eestis leidub raskeid mineraale, nende seas on tsirkoon, monatsiit, ksenotiit, ilmeniit, granaat, turmaliin. [6-8]

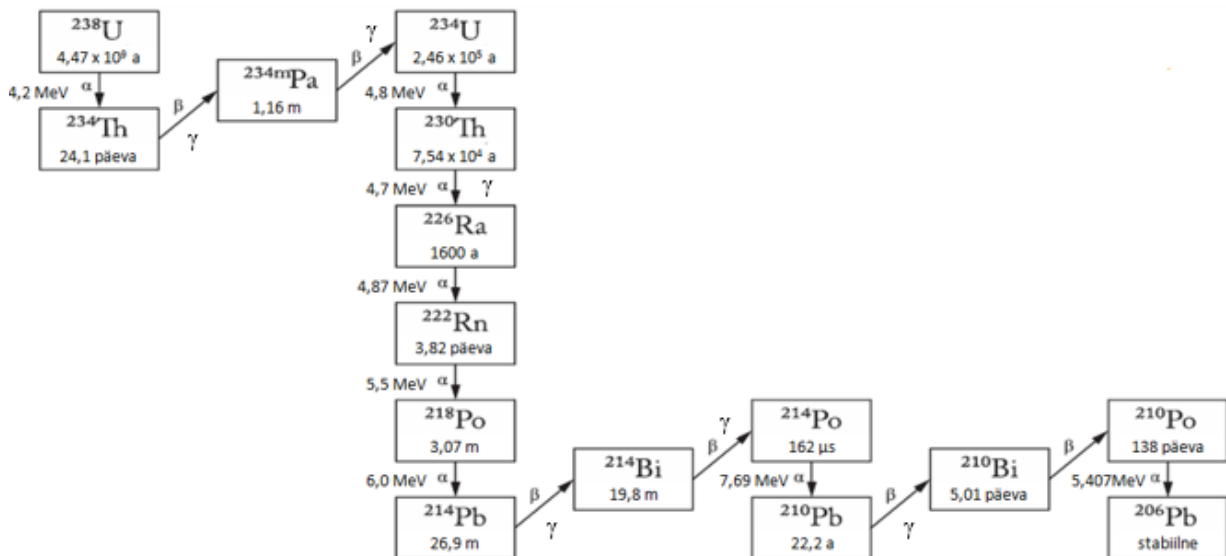
Mõnesid raskeid mineraale (tsirkoon, ilmeniit, rutiil) kaevandatakse tsirkooni ja titaani saamiseks. Nende mineraalide kristallvõred võivad sisaldada radioaktiivsete elementide uraani,

tooriumi ning nende tütarde aatomeid. Kergemad mineraalid (päevakivi ja kvarts) sisaldavad uraani ja tooriumi vähem, kuid sisaldada kõrgendatud määral radioaktiivset kaaliumi. Töötlemise tulemusel tekib sellest liivast NORM materjal, mille kasutamisel tuleb jälgida, et sellest tehtud tooted, eelkõige ehitusmaterjalid, vastaks kiirgusnõuetele ning töötlemise käigus tekkinud radioaktiivsed jäätmed ladustataks nõuetekohaselt. [7]

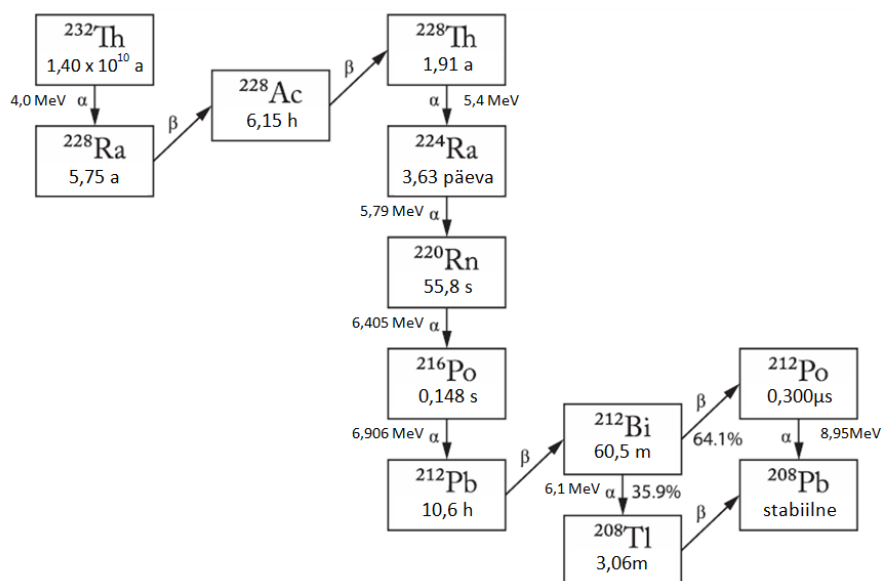
1.3 Radoon

Radoon on keemiline element, järjekorranumbriga 86. Omadustelt on radoon lõhnatu, värvitu, raske ja vees lahustuv inertsgaas. Radoonil on mitmeid isotoope, kuid tuntuimad on Rn-222, Rn-220 ja Rn-219, mis tekivad erinevates radioaktiivse lagunemise ridades. Need read on järgmised: uraanirida, tooriumirida ning aktiiniumirida (vt Joonis 1-3). Nendes ridades radoon on ainus gaasiline tütarelement, mistõttu võib ta levida konveksioonivooludega. Õhu sisse hingamisel ja söömisel satuvad radoon ja tema tütreid organismi, kus nende lagunemisel kiirgav ioniseeriv kiirgus avaldab mõju organismile.

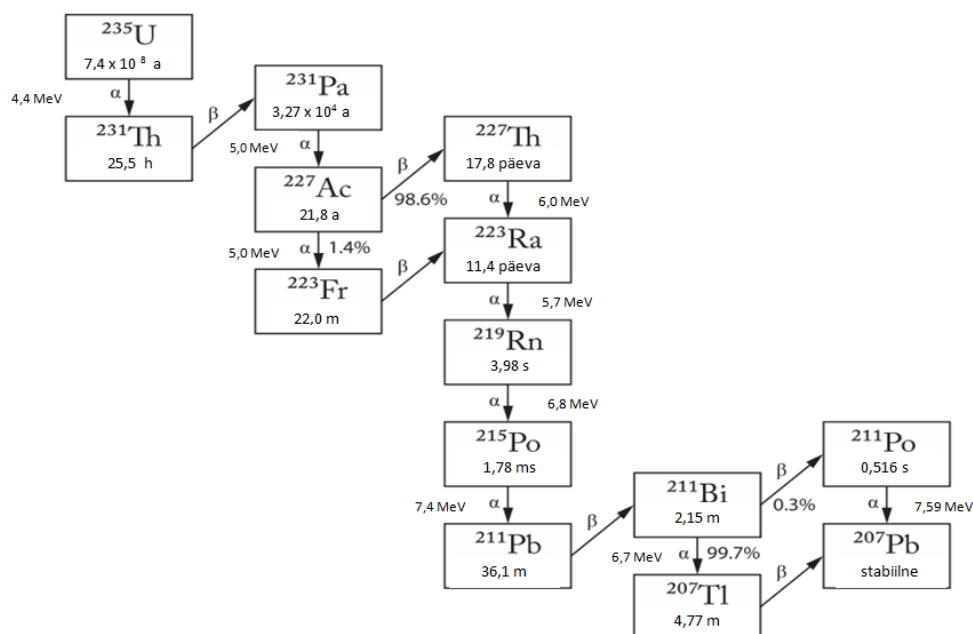
Radooni isotoobid omavad erinevaid poolestusaegu. Neist pikim poolestusaeg (3,82 ööpäeva) on isotoobil Rn-222. Torooni (Rn-220) poolestusaeg on 55,8 s ning aktinoonil (Rn-219) 3,62 s. Üldiselt radooni all käsitletakse isotoopi Rn-222, kuna on teiste radooni isotoopidega võrreldes stabiilsem, millest tulenevalt on tema levimisulatus tunduvalt suurem. [9]



Joonis 1. Uraanirida. Sellel on näha uraani ($U-238$) rea elementide poolestusajad ning lagunemise viisi(id) (α , β - või γ -lagunemine) [9, 10] ning α -lagunemise käigus välja kiiratud energiad [11].



Joonis 2. Tooriumirida. Sellel on näha tooriumi (Th -232) rea elementide poolestusajad ning lagunemise viis (α - või β -lagunemine) [9] ning α -lagunemise käigus välja kiiratavate α -osakese energiad [11].



Joonis 3. Aktiiniumirida. Sellelt on näha aktiiniumi rea elementide poolestusajad ning lagunemise viis (α - või β -lagunemine) [9] ning α -lagunemise käigus välja kiiratavad energiad [11].

1.3.1 Radooni ohtlikkus

Radoon on värisgaas ning seega ta mingeid ühendeid ei moodusta. Tema ohtlikus peitub lagunemise käigus organismi kiiratavas α -kiirguses, kuid veel suurem oht peitub organismi jäänud radooni tütarde, mis seal lagunedes (eriti α -lagunemise käigus) suurendavad organismi

jõudnud kiirgusdoosi. Kiirituse tulemusena võivad tekkida vabad radikaalid ja DNA ahelate purunemine. Rakud parandavad lagunenu DNA ahelaid, vahel kaasnevad sellega mutatsioonid geenides, mis võivad põhjustada vähki. Seevastu radooni lagunemisel tekkiv alfakiirgus organismist väljapool ohtu ei avalda, kuna paber ning nahk suudavad peatada alfaosakese. Lisaks sellele on tema levimiskaugus õhus väike (1-2 cm). Sisse hingates aga neeldub osakese energia organismis (eelkõige kopsudes ja hingamisteedes). Kuna alfaosake on massiivne, siis tema poolt tekitatav rakukahjustus on suur (seetõttu on ka tema kiirguse kaalufaktor 20 ehk siis ekvivalentdoos on 20 korda suurem neeldunud doosist, kuid gammakiirgusel, röntgenkiirgusel ja beetakiirgusel on see faktor 1). [3, 12]

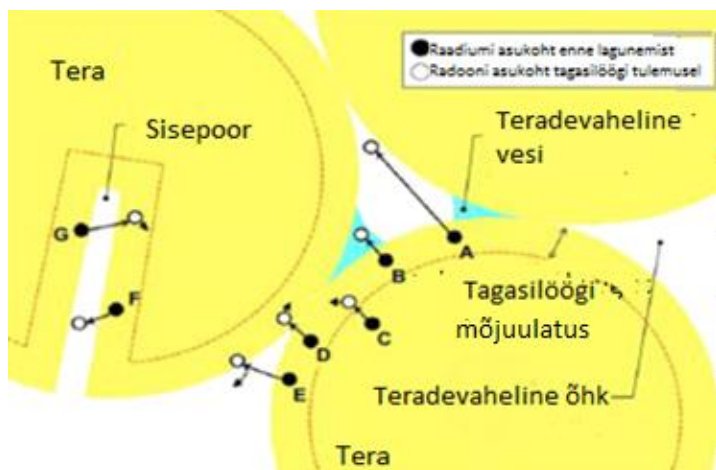
Aastal 1988 nimetas IAEA (Rahvusvaheline Aatomienergia Agentuur) radooni inimese kantserogeeniks. Sellest kümnendist alates on viidud läbi palju uuringuid radooni, suitsetamise ja kopsuvähi omavahelise sõltuvuse kohta ning on leitud, et see on ligikaudu lineaarne, iga 100 Bq/m³ kohta tõuseb kopsuvähki haigestumise risk 10-20%. [1]

Lisaks sellele leiti, et suitsetajatel on tunduvalt suurem risk haigestuda kopsuvähki, kui mitteduitsetajatel. Seejuures ka suitsetamise maha jätnutel on küllaltki suur tõenäosus võrreldes mitteduitsetajatega, haigestuda kopsuvähki. Suitsetajate kõrgem risk on põhjustatud sellest, et suitsu aerosooliosakeste külge kleepuvad radooni tütrede (Po-218, Pb-214, Po-214, Bi-214 ja Pb-210), mis õhu sisse hingates kinnituvad kopsu bronhi seintele. Bronhi seintel radooni tütarelemendid lagunevad täielikult ning seega põhjustavad tunduvalt suurema doosi. [1, 13]

1.4 Emanatsioon

Emanatsiooniks nimetatakse kivimi mineraaliterades või pinnase osakestes raadiumi lagunemisel tekkinud radooni aatomite väljumist teradevahelisse alasse. Arvuliselt iseloomustab seda emanatsioonikoefitsient, mis näitab mineraali terades sisalduva raadiumi lagunemisel tekkinud radooni aatomite suhet teradevahelisse alasse levinud radooni aatomitesse. [9, 10]

Raadiumi aatomi lagunemisel kiiratakse α -osake. Lagunemisel tekkinud radooni aatomid omavad sama suuri kuid vastassuunalisi impulsse – tagasilöögi impulss, mis avaldub tõukuvate aatomite kineetilise energiana. Radooni aatomi kineetiline energia on tagasilöögi energia. Selle energiaga on määratud radooni aatomi tagasilöögi mõjuulatus (Joonis 4).

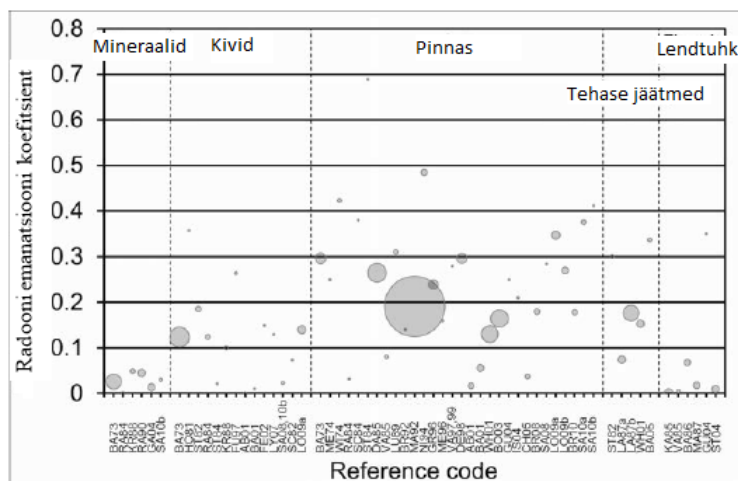


Joonis 4. Radooni emanatsiooni skeem. Emanatsiooniga on tegemist juhtudel A, B, E, F ning C, D ja G ei ole [14].

1.4.1 Emanatsiooni mõjutavad tegurid

Erinevad emanatsiooni variandid on kujutatud Joonis 4. Raadiumi lagunemisel tekkinud radoon pääseb välja ainult mineraali pealmisest kihist, mis on määratud tagasilöögi ulatusega. Tagasilöögi ulatus sõltub materjalist. Näiteks Rn-222 jaoks (tagasilöögi energia 86 keV) on see õhus 53 μm , vees 77 nm ja kvatsis 34 nm. [9]

Seega emanatsiooni mõjutavad tera suurus, raadiumi jaotus terakeses ning veesisaldus (vt Joonis 4). Seevastu looduses ei ole terakesed ideaalsed ja ühesuguse suurusega kerakesed, mistõttu emanatsiooni mõjutavad veel teradevahelise õhuruumi mõõtmed ja kuju. Nagu näha jooniselt 5, siis emanatsioonikoefitsiendi väärtused varieeruvad suurel määral ning seepärast tuleb uurida igat konkreetset materjali eraldi.

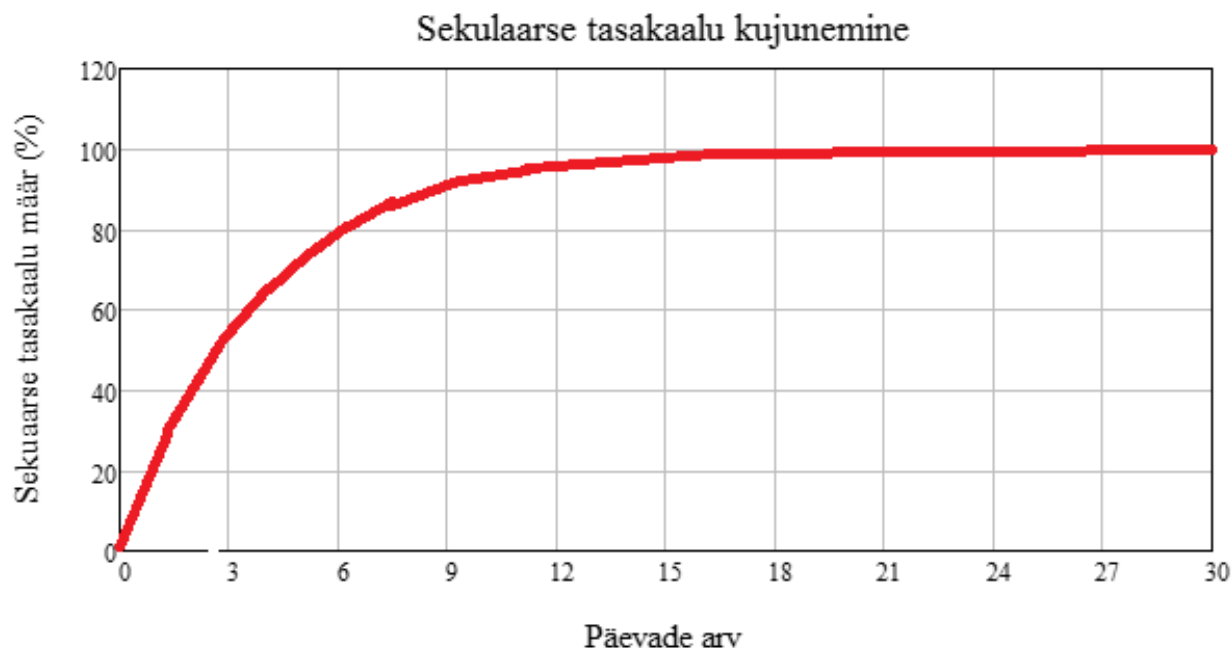


Joonis 5. Erinevate materjalide emanatsioonikoefitsient [9].

1.4.2 Emanatsiooni mõõtmine

Emanatsiooni koefitsiendi mõõtmiseks on üldiselt 2 võimalust: võrrelda lahtise ja suletud proovi gammaspiktreid või mõõta proovi radiumi sisaldust ja radooni ekshalatsiooni abil.

Gammaspikroskoopilist meetodit kasutades võrreldakse omavahel lahtist proovi ning suletud proovi, kus on tekkinud sekulaarne tasakaal (Joonis 6) Ra-226 ja tema tütarelementide vahel [9]. Tasakaalu tekkimist kirjeldab piirangule lähenev eksponentsiaalfunktsioon.



Joonis 6. Sekulaarne tasakaalu tekkimine Rn-222 jaoks (poolestusaeg 3,82 päeva).

Emanatsiooni koefitsient avaldub järgnevalt:

$$E = \frac{N_{\text{tasakaal}} - N_{\text{lahtine}}}{N_{\text{tasakaal}}} , \quad (1)$$

kus E on emanatsiooni koefitsient;

N_{tasakaal} on Pb-214 ja Bi-214 gammaspiktri joonte kaalutud keskmine lugemite arv ajaühikus tasakaaluolekus (suletud proov);

N_{lahtine} on Pb-214 ja Bi-214 gammaspiktri joonte kaalutud keskmine lugemite arv ajaühikus algseisundis (lahtine proov).

Emanatsioonikoefitsiendi arvutamisel uuritakse järgmisi Pb-214 ja Bi-214 gammajooni 295,2 keV (Pb-214), 351,9 keV (Po-214), 609,3 keV (Bi-214), 1120,3 keV (Bi-214), 1764,5 keV (Bi-214) [15].

Teine emanatsioonikoefitsiendi määramismeetod kasutab otseselt emanatsioonikoefitsiendi definitsiooni, mis avaldub valemiga järgmiselt:

$$E = \frac{V \cdot C}{M \cdot R} , \quad (2)$$

kus V on mõõtesüsteemi efektiivne ruumala (süsteemi ruumala, kus on maha lahutatud proovi ruumala) (m^3);

C on radooni kontsentratsioon (Bq/m³);

V·C on mõõtesüsteemis registreeritud lagunemiste arv ajaühikus ehk proovist eraldunud radooni aktiivsus (Bq);

M on proovi (kogu)mass (kg);

R on proovi raadiumi aktiivsuskontsentratsioon (Bq/kg);

M·R on proovis raadiumi lagunemiste arv ajaühikus ehk proovi raadiumi (kogu)aktiivsus (Bq). [9]

Selle meetodi puhul tuleb samuti oodata 4 nädalat, kuni saabub sekulaarne tasakaal raadiumi ja radooni vahel.

Tasakaalu on võimalik saavutada ka lühema aja jooksul. Sellisel juhul tuleb mõõtesüsteemist läbi puhuda. Emanatsioonikoefitsiendi arvutusvalem võtab siis järgmise kuju:

$$E = \frac{(v + \lambda \cdot V) \cdot C}{\lambda \cdot M \cdot R} \quad (3)$$

kus v on radoonivaba õhu (või radooni sisalduse võib lugeda nulliks) voolukiirus (m³/s);

λ on radooni (Rn-222) radioaktiivse lagunemise konstant (1/s);

V on mõõtesüsteemi efektiivne ruumala (süsteemi ruumala, kus on maha lahutatud proovi ruumala) (m³);

C on radooni kontsentratsioon (Bq/m³);

M on proovi (kogu)mass (kg);

R on proovi raadiumi aktiivsuskontsentratsioon (Bq/kg). [9]

1.5 Ekshalatsioon

Ekshalatsiooniks nimetatakse radooni eraldumist ning ühikuks on Bq·s⁻¹. Seda võib vaadelda nii pinnaühiku kohta (Bq·m⁻²·s⁻¹), kui ka massiühiku kohta (Bq·kg⁻¹·h⁻¹). Ekshalatsiooni kiirus võimaldab meil hinnata, kui suureks võib kujuneda radooni ja tema tütarde mõju inimestele. Ehitusmaterjalide tootmisel on mugavam kasutada massiekshalatsiooni nende kiirgusohutuse tagamiseks. [9, 10]

1.5.1 Ekshalatsiooni mõjutavad tegurid

Maapinnast ekshalatsiooni kiirust mõjutavad põhiliselt järgmised tegurid:

- raadiumi aktiivsuskontsentratsioon materjalis (Bq/kg);
- kuiva materjali ruumtihedus (kg/m³);
- emanatsioonikoefitsient;
- radooni difusioonikoefitsient(m²/s);
- maapinna pealiskihi materjali paksus (m).

Seejuures, nagu eelnevalt mainitud, emanatsioonikoefitsiendi mõjutavad niiskussisaldus ja osakeste mõõtmised. Peale selle lisandub mõjutavaks faktoriks veel poorsus, kuna difusioonikoefitsiendi mõjutavad nii poorsus kui ka niiskus. [9]

1.5.2 Ekshalatsiooni kiiruse mõõtmine

Ekshalatsiooni kiiruse mõõtmiseks on üldiselt 3 uurimisviisi: akumulatsioon, õhu läbivoolu meetod ja radooni neeldumine.

Akumulatsiooni meetodi korral asetatakse kamber (akumulaator) uuritava pinna peale nii, et väike osa kambri on pinna sees, et vältida lekkeid. Akumulatsioonikambri ülemises osas ava või kraan, mille kaudu on võimalik akumulaatori õhu radoonisisaldust mõõta. Radooni kontsentratsiooni mõõtmiseks kasutatakse üldiselt stsintillatsioonimeetodit või alfaspektrometriat. [9]

Antud meetodi puhul tuleb arvestada tagasidiffusiooni pinnasesse ning võib esineda ka radooni neeldumist akumulaatori materjalis. Tagasidifusioon on suurem väiksemate ja madalamate akumulaatorite korral, kuid need võimaldavad paremini registreerida lokaalseid fluktuatsioone ekshalatsioonis. Suuremapõhjalised akumulaatorid on paremad madalate voogude korral, kuna võimaldavad suuremal kogusel radoonil koguneda. [9]

Õhu läbivoolumeetod kasutab ka akumulaatorit, kuid sellisel juhul on akumulaatoril 2 ava, pumba abil suunatakse õhk akumulaatorist läbi ja saavutatakse niiviisi püsiv radooni kontsentratsioon. Mõõtesüsteemi radooni kontsentratsiooni mõõdetakse poolintegraalse meetodi abil, nt stsintillatsiooni kambri. Selle meetodi puhul tuleb tagada, et kambri sees ja väljaspool kambrit oleks õhurõhk sama. Ekshalatsiooni kiirus on võrdeline välja pumbatud õhu radoonisisalduse ja õhuvoolu kiirusega. [9]

Kolmas põhiline ekshalatsiooni kiiruse mõõtmismeetod kasutab materjali, mis absorbeerib radooni. Tavaliselt on selleks materjaliks aktiivsüsi (vt 1.6.1.3 Aktiivsüsi). Niisketes keskkonnatingimustes võib osutuda vajalikuks imendunud veega arvestamine, kuna see vähendab aktiivsöe efektiivsust. Seetõttu tuleks kaaluda aktiivsöe kanister enne ja pärast eksponeerimist. [9]

1.6 Radooni aktiivsuskontsentratsiooni mõõteseadmed

Radooni mõõteseadmeid saab liigitada mitmeti. Üks variant on jaotada neid kogumisviisi ja detektori elektritarbe järgi passiivseteks ja aktiivseteks. Teine variant on neid jaotada mõõtmistüübi järgi integreeritud mõõtmisteks, pool-integreeritud mõõtmisteks ning pidevmõõtmisteks.

Integreeritud mõõtmismeetodit kasutatakse, kui õhu aktiivsuskontsentratsioon on suurem kui 10 Bq/m^3 . Loomuliku difusiooni teel pääseb õhk detektorini, mõõtmise kestvus on mõned nädalad kuni mõned kuud ning leitakse selle perioodi keskmine aktiivsuskontsentratsioon. [9, 10]

Pool-integreeritud mõõtmismeetodi mõõtmisperiood on lühem võrreldes integreeritud mõõtmismeetodiga, tüüpiliselt mõned minutid kuni mõned tunnid. Erinevalt integreeritud meetodist, radooni kontsentratsioon arvutatakse teatud kindlate ajavahemike tagant ning proovikogumine võib toimuda ka pumba abil. [9]

Sarnaselt integreeritud mõõtmisega, kasutatakse pidevmõõtmist juhul, kui õhu radooni kontsentratsioon on üle 10 Bq/m^3 ning proovikogumine võib olla aktiivne (pumbaga) ja passiivne. Selle mõõtmismeetodi puhul kasutatakse elektroonilist mõõteseadet, lühikese ajavahemiku jooksul tehakse palju mõõtmisi ning see lubab jälgida radooni kontsentratsiooni ajalist kulgu. Pidevmõõtmist on võimalik kasutada ka pool-integreeritud mõõtmismeetodi korral, kui mõõtmistulemusi keskmistatakse, et vähendada süstemaatilisi kõrvalekaldeid.

1.6.1 Passiivsed mõõteseadmed

Passiivseteks mõõteseadmeteks on seadmed, mille detektorid ei kasuta elektrit. Üldiselt kasutatakse neid mõõtmistes, kus radooni kontsentratsioonid on madalad ja soovitakse saada pikema ajavahemiku keskmist. Lisaks sellele on nad suhteliselt odavad. Allpool on mõned passiivsete detektorite kirjeldused.

1.6.1.1 Trekidetektor

Trekidetektorit võib veel nimetada kiledetektoriks, tahkiselise tuumaosakeste jälje detektoriks (SSNTD) ning filmdosimeetriks. Radooni lagunemisel eralduv alfaosake pidurdub detektoris, jättes detektori kile materjalisse jälje. Kile valmistatakse üldiselt tselluloosnitraadist (LR-115, Daicell, DNC), polükarbonaadist (Makrofol, Lexan) või polüallüül-diglükool-karbonaadist (CR-39, PADC). Esiialgu on jäljed liiga väikesed (umbes 5 nm), kuid peale töötlemist söövitava ainega (üldiselt KOH või NaOH [9]), muutuvad jäljed mikroskoobiga nähtavaks (19-20 μm), kuna jälje kohalt toimub söövitamine umbes 10 korda kiiremini. Jälgede arvu kokku lugedes on võimalik leida radooni kontsentratsioon, kuna jälgede arvu tiheduse ja radooni kontsentratsiooni vahel on lineaarne seos (kui taustamüra maha lahutada). [1, 10, 16, 17]

Plastdetektorid on suhteliselt odavad ning annavad usaldusväärsed tulemused pikemaajase mõõteperioodi radooni keskmisele kontsentratsioonile. [16]

1.6.1.2 Elektreet ionikamber

Elektreet mõõdab integraalselt radooni sisaldust. Elektreet ionikambred on disainitud mõõtma erineva ajaperioodi. Radoonikontsentratsiooni 150 Bq/m^3 on tavaline lühiajaline mõõteseadet on mõeldud mõõtma 2-15 päeva ning pikaajaline 3-12 kuud [1]. ning on üheaegselt nii elektivälja allikas kui ka andur. Elektreet on elektriliselt laetud dielektrikust (tavaliselt Teflon) ketas (diameetriga ligikaudu 1 cm ja paksus 1 mm). Dielektrikust ketas paigutatakse kambrisse, kus radooni alfalagunemise tulemusena õhk kambris ioniseerub ning põhjustab elektreedi pinget langust. Teades pinget langust (mõõdetud näiteks kontaktivaba patareitoitelise elektreedi lugejaga) ning eksponeerimisaega (tekkinud ionide arvu), on võimalik määrata radooni kontsentratsioon kambris. Tema negatiivseks omaduseks on see, et kambris α -lagunemise käigus õhk ioniseerub, mille tulemusena väheneb elektreedi pinget ehk registreeritakse gammakiirgust, mis ei ole tingitud radooni lagunemisest. [9, 17]

Elektreeti kasutab radooni mõõteseade E-PERM (*Electret Passive Environmental Radon Monitor*). [17]

1.6.1.3 Aktiivsüsi

Aktiivsöel on omadus absorbeerida radooni (ja ka veeauru) ning seetõttu kasutatakse seda, et koguda õhust radooni ning hiljem määrata radooni sisaldust gammaspektroskoopia, vedelikstsintillatsiooni või radiomeetri abil. [1]

Enne mõõtmiste alustamist aktiivsöe kanistriga, hoitakse seda kuivatuskapis umbes 105 °C juures 12 tundi (kuni mass enam ei muutu), et aktiivsütt puhastada veeaurust, radoonist ning selle laguproduktidest [10]. Mõõtmiste kestvus on kuni 7 päeva, misjärel tuleb aktiivsöe kanister sulgeda. Seejärel tuleb oodata 3 tundi, et tekiks tasakaal radooni ja tema laguproduktide vahel ning siis on võimalik mõõta. Kuna radooni poolestusaeg on 3,82 päeva, siis tuleks mõõtmiste analüüs teha võimalikult ruttu. [1]

Aktiivsöemeetodil on võimalik mõõta, kasutades söekanistrit Radon-Box 10 ja dosimeetrit-radiomeetrit DGM-1500 (vt Joonis).



Joonis 7. Aktiivsöe meetodi korral kasutatavad mõõteseadmed Radon-Box 10 ja DGM-1500.

1.6.2 Aktiivsed mõõteseadmed

Aktiivseteks mõõteseadmeteks nimetatakse seadmeid, mille detektor vajab elektrit ning lisaks on neil võime registreerida radooni kontsentratsiooni ajalisi kulgu mõõtmisperioodi vältel [1]. Järgnevalt on välja toodud mõned näited aktiivsetest mõõteseadmetest.

1.6.2.1 Pindbarjäär-detektor

Pindbarjäär-detektor detektor (*surface barrier detector*) kuulub pooljuht ehk tahkisdetektorite (*solid-state*) hulka. Detektor asub silindrikujulises süsteemis, kus on 2 filtrit. Esimene neist

puhastab sisenevat õhku radooni tütardest, teine kogub endasse sisse kasvanud radooni tütreid, mida mõõdetakse pindbarjäärdetektori abil. Teine filter võib olla asendatud metallpinnaga, millel on negatiivne laeng ja mis kogub enda peale positiivselt laetud Po-218. Kuid sarnaselt eelmise variandiga, lugem saadakse pindbarjäärdetektori abil, kus tekkinud elektriimpulsi amplituud (elektriimpulss tekib detektoris p-n siirde tulemusel) on võrdeline alfaosakese energiaga. Kuna detektor eristab α -osakeste energiad, siis on võimalik eristada selle detektori abil isotoope. Radooni kontsentratsioon arvutatakse tütarelementide arvu ning sissekasvuperioodi abil. [9] [17]

Seda detektori tüüpi kasutab minu mõõtmistes kasutatud mõõteseade Radon Monitor RM3-B tootjalt Alnor (vt Joonis 8).



Joonis 8. Tahkisedetektorit kasutav Alnor mõõteseade Radon Monitor RM3-B.

1.6.2.2 Stsintillatsiooni kamber ehk Lucase kamber

Lucase kamber on suletud silinder, mis on seest kaetud luminofooriga (tavaliselt hõbedaga aktiveeritud tsinksulfiid ZnS-Ag), mis alfaosakesega kokku puutudes tekitab sähvatuse. Tekkinud valgussähvatused registreeritakse, võimendatakse fotokordistiga, impulsid loendatakse ning seejärel teisendatakse saadud tulemus. [9]

Enne uuritava õhu Lukase kambrisse pääsemist läbib see filtri, mis eemaldab õhust tolmu ning radooni tütreid. Kambris tekib sekulaarne tasakaal 3 tunniga, misjärel iga radooni aatomi lagunemise tulemusel tekib 3 alfaosakest, mis registreeritakse luminofoori abil. Lukase kambriga saab mõõta ka õhu radooni (ja torooni) kontsentratsiooni pidevmõõtmisel, kui õhku kambrist läbi pumbata või lasta sel kambrisse difundeerida. [18]

Stsintillatsioonikambri meetodiga ei ole otseselt võimalik eristada radooni (Rn-222) ja torooni (Rn-220), kuid see on võimalik kasutades torooni ja radooni eluigade (toroonil 55,8 s ja radoonil 3,83 päeva) erinevust. [9]

Stsintillatsioon ei pea toimuma ainult tahkises. Vedelikstsintillatsiooni abil saavutatakse 4π geometria, tänu millele on võimalik saada suurem loendamise efektiivsus. [19]



Joonis 9. Lukase kambrit kasutatav mõõteseade radooni monitor Radon Scout PMT¹.

1.6.2.3 Ionisatsioonikamber

Ionisatsioonikamber on metallist silinder, mille keskele on asetatud anood. Radioaktiivsel lagunemisel tekivad ioonid, mis liiguvad elektroodide poole ja põhjustavad elektrivoolu. Tasakaaluseisundis on ionipaaride tekkekiirus ja kadumise kiirus võrdsed (rekombineerumise võib jätta arvestamata ning eeldakse, et kõik tekkinud ioonid kogutakse elektroodide poolt) ning seega ionisatsioonivool annab infot lagunemiste arvu kohta. Ionisatsioonivoolu mõõdetakse tavaliselt elektromeetrilise seadmega, kuna tavapäraste mõõteseadmete jaoks on vool liiga nõrk. [9, 17]

1.6.2.4 Gamm-spektroskoopia

Gamm-spektroskoopia võimaldab mõõta uuritava materjali koostist temas sisalduvate γ -aktiivsete radionukliidide abil. Otseselt saab mõõta ainult neid radionukliide, mille lagunemisel tekib gammakiirgus. Igal radionukliidil on talle omane kiirgusspekter. Kiirguse registreerimiseks on 2 võimalust. Esimesel juhul gammakiirgus põhjustab stsintillatsiooni ja tekkinud valguse registreerib fotokordisti. Teisel juhul tekib elektriline impulss pooljuht-detektoris ning impulsi amplituudi suurus on võrdeline gamma kiire energiaga. [19]

Stsintillatsioonimeetodi lahutusvõime on väiksem kui kõrglahutusega gamm-spektroskoopi detektor. Üks paremat lahutust võimaldav detektori materjal on suure puhtusastmega germaanium (*high purity germaanium- HPGe*), mis võimaldab eristada lähedasi gammapiike ning seetõttu saada täpsem tulemus. [19]

Kõrglahutusega gamm-spektroskoopia detektorit hoitakse vedela lämmastiku temperatuuril (umbes 78 K), et vähendada müra. Detektor varjestatud umbes 10 cm paksuse pliiist kestaga, et vähendada väliste kiirgusallikate (nt loodusliku taustkiirgus ja kosmiline kiirgus) mõju mõõtetulemusele ning lisaks on seest kaetud umbes [19] ning vooderdatud 2 mm paksuse vasest (Cu) voodriga, et suruda maha plii (Pb) karakteristlikku kiirgust.

¹ https://www.sarad.de/product-detail.php?lang=en_US&catID=&p_ID=38

2. Eksperimentaalne osa

Käesoleva töö käigus uuriti 4 Eestist pärit liivaproovi, mis on pärit Lohusalust ja Pärnu rannast. Lohusalu liivaproovid võttis Rein Koch umbes 40 aastase vahega. Esimene Lohusalu proov (LS-70) võeti 1970ndatel aastatel, kui juhuslikult jäi silma võrdlemisi tume liiv. Liiva võeti tookord paar ämbritäit, millest sõeluti umbes 2.5 kg (vt LS-70 proovi võtmise ämbrist). Alumiiniumkaasis integraalne liivaproov, kust köögisõelaga praht välja korjatud (Joonis 10). Tolle aja kohta koordinaate ei ole, kuid on teada, et järgmine proov (Lohusalu 2016) võeti selle liiva leiukoha lähistelt. Teine liivaproov (Lohusalu 2016) võeti 19.07.2016 kohast, mille koordinaadid on 59° 23' 91'' N, 24° 12' 26'' E (koordinaadid mõõdetud seadmega Magellan GPS 300).



Joonis 10. LS-70 proovi võtmise ämbrist. Alumiiniumkaasis integraalne liivaproov, kust köögisõelaga praht välja korjatud.

Pärnu ranna liivaproovid võtsin ma ise 22. märtsil 2017 õhtul kella 9 paiku. Koordinaadid leiti telefoniga (Sony Xperia Z), kasutades rakendusi Maps (Google) ja GPS Coordinates². Nende aritmeetilise keskmisena saadi veepiiri liivaproovi koordinaatideks 58° 22' 16'' N, 24° 30' 26'' E ja kalda liivaproovi koordinaatideks 58° 22' 16'' N, 24° 30' 2'' E (vt Joonis 12). Veepiiri liivaproov võeti rannajoonelt, mõne sentimeetri paksusest kihist, kuna sügavamad kihid olid veel külmunud. Kalda liivaproov võeti umbkaudu 20 m kauguselt ligikaudu 15 cm paksusest kihist.

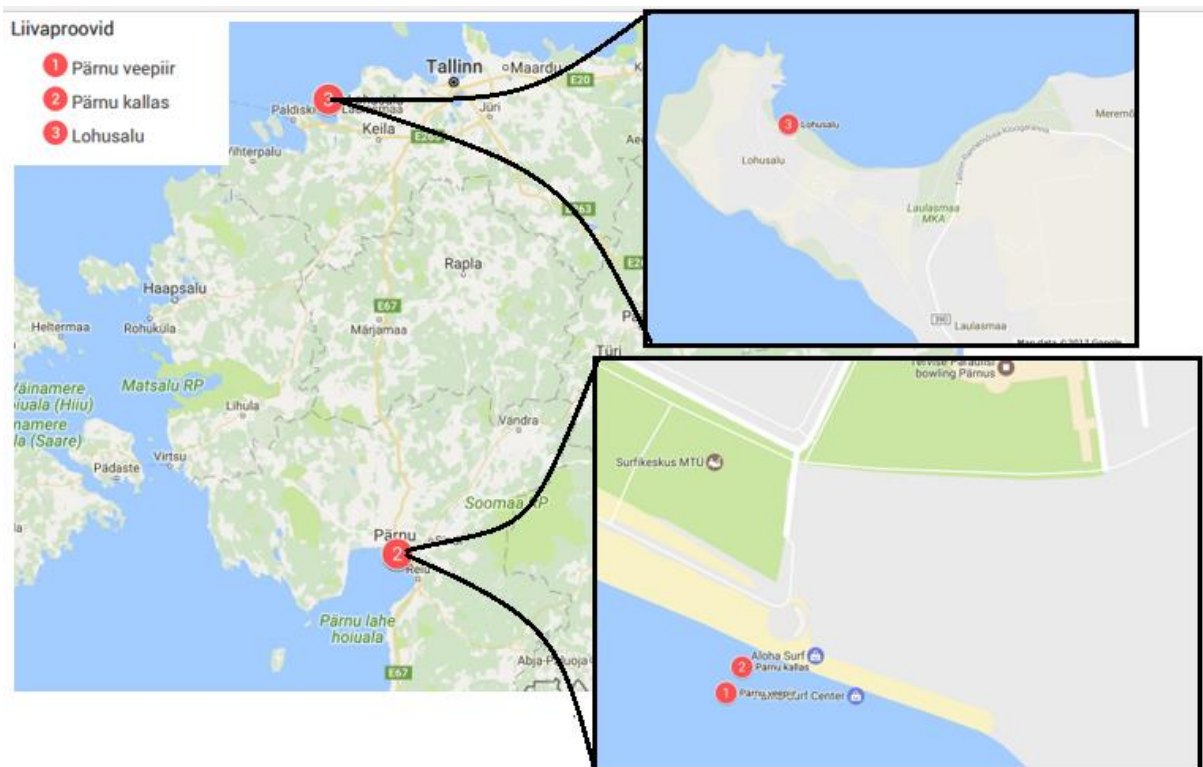


Joonis 11 Pärnu liivaproovid enne ja pärast kuivatamist:

a) Märg liiv. Vasakpoolne on veepiiri liiv ning parempoolne kalda liiv;

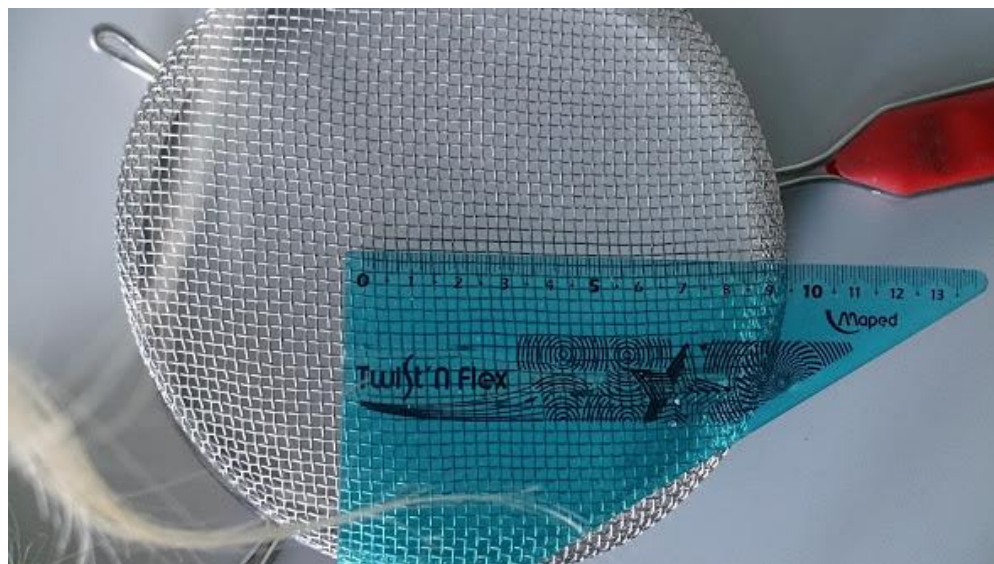
b) Kuivatatud liiv. Vasakpoolne on kaldalt pärit liiv ning parempoolne veepiiri liiv.

² <https://play.google.com/store/apps/details?id=com.latitudelongitude.gpscoordinates&hl=en>



Joonis 12. Liivaproovide asukohad.

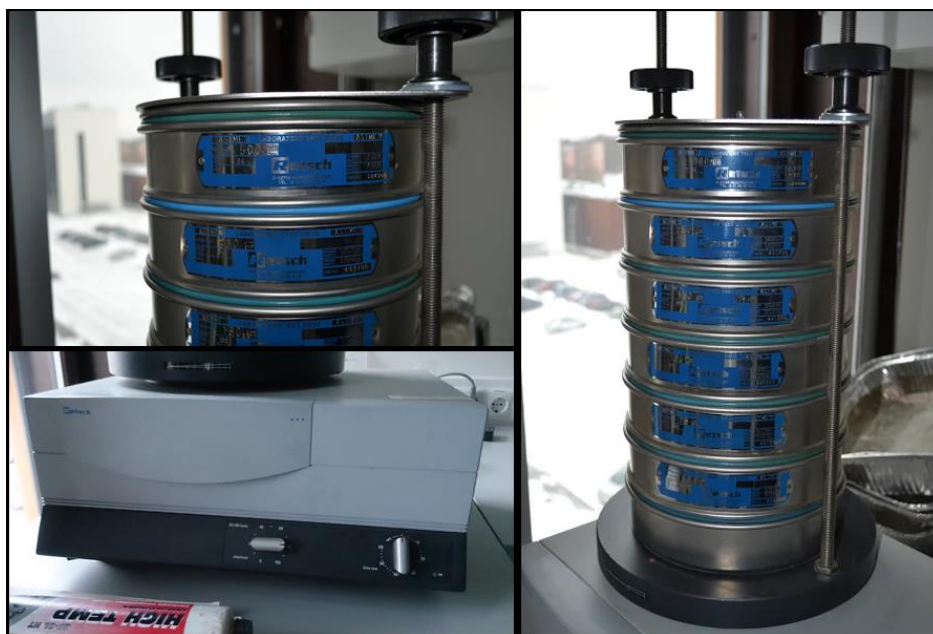
Erinevate liivafraktsioonide uurimiseks sõeluti liiv. Jämeda fraktsiooni eraldamiseks (üldiselt taimne praht) kasutati tavalist köögisõela, mille traatide vahe oli umbes 2,5 mm (Joonis 13).



Joonis 13. Jämeda fraktsiooni eraldamiseks kasutatud köögisõel.

Peenemate fraktsioonide eraldamiseks kasutati vibraatorit Retsch Vibratory Sieve Shaker AS200 Basic, mille peal olid sõelad (Laboratory Test Sieve tootjalt Retsch) ava mõõtmetega 500 μm , 250 μm , 150 μm , 106 μm , 75 μm ja 38 μm . Liivaproovid sõeluti mitmes jaos, korruga umbes 10 minutit. Pikemaajasel sõelumisel oli suur oht, et sõelumise käigus pude kvartsliid jahvatatakse peenemateks osakesteks, mille tulemusel liiva suurusjaotust moondatakse.

Erinevad liivafraktsioonid kaaluti kaaluga Ohaus Explorer EX6201 ning suleti minigrip kotikestesse.



Joonis 14. Retsch Vibratory Sieve Shaker AS200 Basic koos sama tootja sõeltega.

Liivafraktsioonide jaotust uurides selgus, et LS-70 liivaproovis domineerib fraktsioon $>150 \mu\text{m}$ ning Lohusalu 2016 proovis $>250 \mu\text{m}$ ning LS-70 sisaldab rohkem ka teisi peenemaid fraktsioone kui Lohusalu 2016 proov (vt Tabel 1).

Seevastu Pärnu kalda liivaproovis domineerib fraktsioon $>500 \mu\text{m}$ ning veepiiri liivaproovis $>150 \mu\text{m}$. Kalda proov sisaldab veepiiri prooviga võrreldes rohkem kõige peenemaid fraktsioone $0...38 \mu\text{m}$ ja $>38 \mu\text{m}$. Selle põhjuseks on ilmselt lainete tegevus ning see, et veepiiri liivaproov on pärit õhemast kihist kui kalda liivaproov.

Tabel 1. Liivaproovide suurusjaotus.

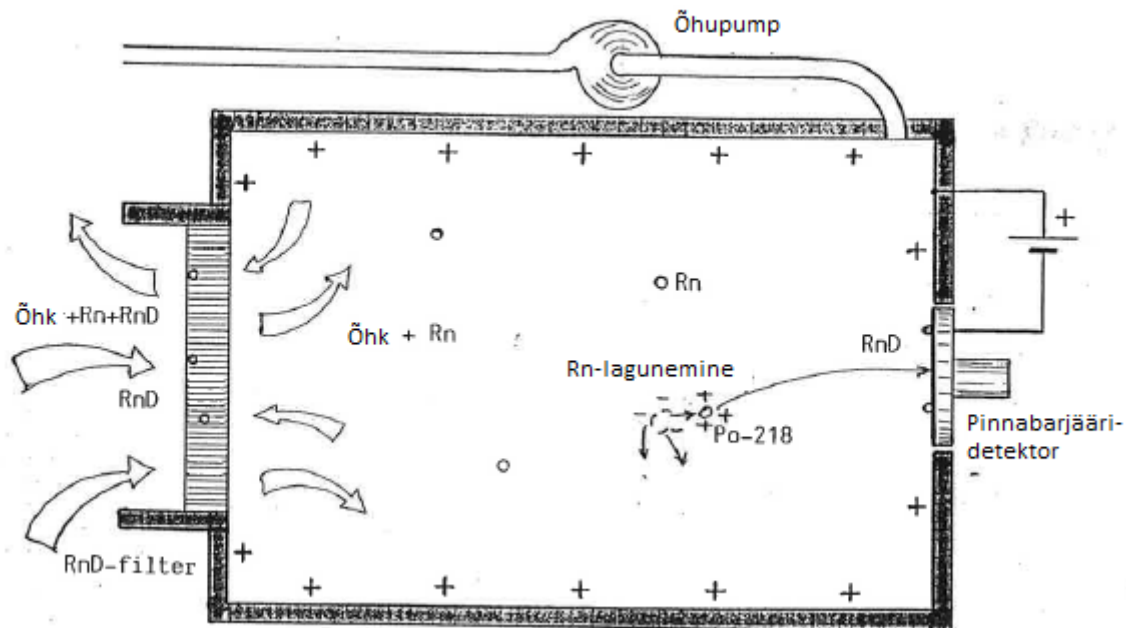
Liivaproovi fraktsiooni osakaal koguproovist								
Fraktsioon	LS-70		Lohusalu 2016		Pärnu veepiir		Pärnu kallas	
Integraalne (grammides)	2479.4		4254.9		3966.5		3251.4	
Jäme fraktsioon	22.7	0.9%	65.7	1.5%	15.4	0.4%	167.9	5.2%
$>500 \mu\text{m}$	46.4	1.9%	674.1	15.8%	545.0	13.7%	1630.5	50.1%
$>250 \mu\text{m}$	835.6	33.7%	2034.0	47.8%	1382.3	34.8%	634.8	19.5%
$>150 \mu\text{m}$	1477.3	59.6%	1055.7	24.8%	1965.3	49.5%	725.7	22.3%
$>106 \mu\text{m}$	85.5	3.4%	89.5	2.1%	50.9	1.3%	41.8	1.3%
$>75 \mu\text{m}$	3.9	0.16%	3.6	0.08%	6.7	0.17%	4.6	0.14%
$>38 \mu\text{m}$	3.0	0.12%	0.8	0.02%	1.7	0.04%	2.2	0.07%
$0...38 \mu\text{m}$	1.9	0.077%	0.3	0.007%	0.2	0.005%	0.5	0.015%
		99.87%		92.22%		100.03%		98.67%

2.1 Massiekshalatsioon

2.1.1 Radon Monitor RM3-B

Massiekshalatsiooni jaoks radooni kontsentratsioon mõõtmised tehti kasutades Studsvik Instrument tütarfirma Alnor radoonimonitori Radon Monitor RM 3-B, seeria numbriga 415 (vt Joonis 8)) ja mis kalibreeriti 2011. aastal. Seadmel on sisseehitatud tsirkulatsioonipump, mille pumpamiskiirus on 5 l/min ja mis võimaldab saavutada ühtlast radoon kontsentratsiooni uuritavas süsteemis. [20]

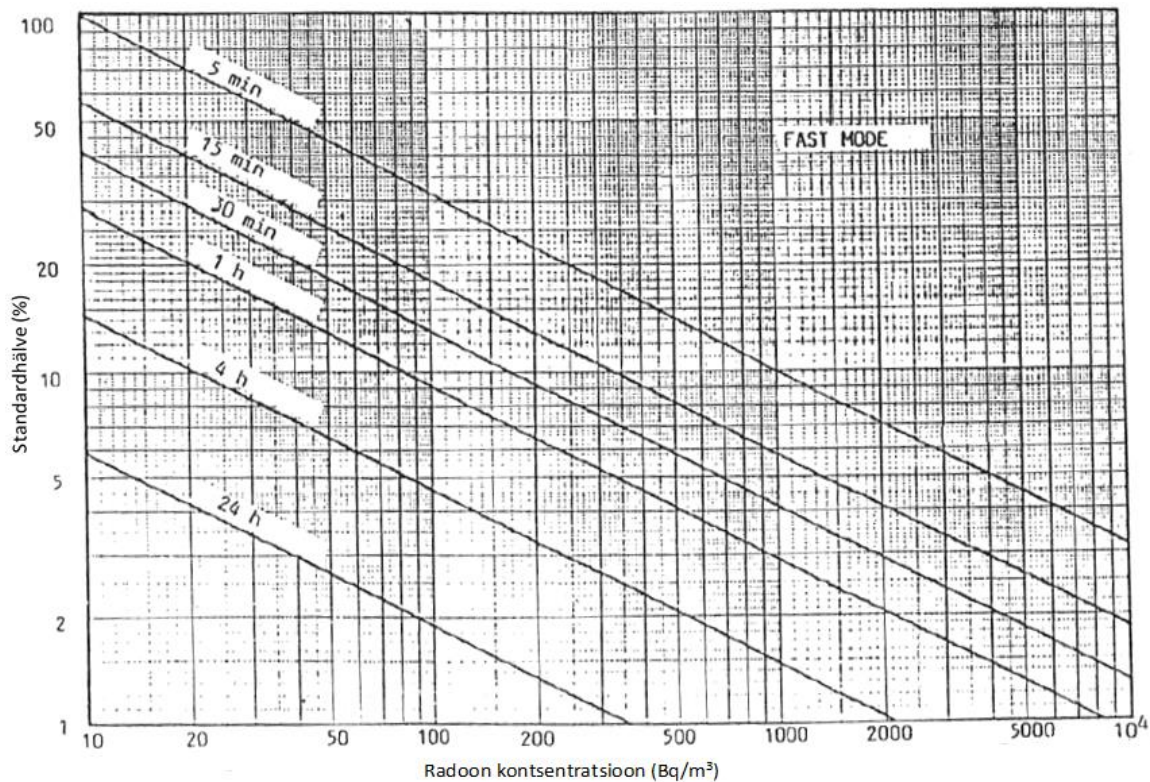
Radoonimonitor mõõdab radooni sisaldust pooljuhtdetektori abil alfaspektromeetriliselt. Mõõteseadme töö põhineb sellel, tsirkulatsioonipump pumpab uuritava õhu proovikambrisse (suurega 1,2 l) (vt Joonis 15). Enne kambrisse jõudmist puhastatakse sisse tulev õhk filtriga radooni tütarelementidest. Proovikambri sein on laetud positiivselt, pindbarjäärdetektor negatiivselt (detektor on isoleeritud kambri seintest). Radooni ja tema tütarde lagunemisel tekkinud positiivsed ioonid (tütreid Po-218 ja Po-214) liiguvad detektori suunas (kuna kambri seinte ja detektori vahel on elektriväli), misjärel sadestuvad detektori pinnakihil. Pinnakihil tütarde alfalagunemisel pooljuhtdetektor registreerib alfaosakese energia ja muudab selle elektriliseks signaaliks, mille amplituud on võrdeline osakese energiaga. [20]



Joonis 15 Radoonimonitori kogumiskamber koos õhupumba, detektori ja filtriga, mis kogub endasse radooni tütreid (RnD)

Antud mõõteseadme määramatus (vt Joonis 16) sõltub mõõterežiimist ja radooni kontsentratsioonist. FAST režiimis registreeritakse ainult radoonitütreid Po-218 (poolestusaeg 3 min) ning SLOW režiimis ka Po-214 (poolestusaeg 40 min). Poolestusaegadest tulenevalt on neil erinev sekulaarsesse tasakaaluseisundisse jõudmise aeg vastavalt 20 minutit (Po-218) ning

3 tundi (Po-214) mõõtmiste algusest (ning sellest tulenevalt FAST režiimis saadud 5 min intervalliga saadud mõõtetulemustest kolme esimest ei arvestatud). Mõõtmistes kasutati FAST režiimi, mille standardhälbeid kirjeldab Joonis 16.



Joonis 16. Radoonimonitori manuaalis antud määramatus [20].

2.1.2 Metoodika

Liivaproovide radooni massiekshalatsiooni teguri mõõtmiseks kasutati akumulatsioonimeetodit. Alumiiniumist radoonikambrisse (Joonis 17b) lisati 0,3 liitrit liivaproovi (Joonis 17a), seejärel kuivatatud kuivatuskapis (Joonis 17c,d) 105 °C juures vähemalt 12 h. Seejärel lasti proovidel jahtuda ning kambrid suleti. Lisaks pandi keermete peale teflonist keermeteip (Joonis 17e), et hiljem oleks kergem kaant lahti keerata ning vähendada lekkeid. Märkigi üles sulgemise aeg.

Enne radooni kontsentratsiooni mõõtmise alustamist lasti radoonil sisse kasvada ca 24 h. Seejärel ühendati radoonikamber radoonimonitoriga (Joonis 18a,b), kasutades polüpropüleenist voolikuid (läbimõõduga 8 mm ning kogupikkusega 0,9 m). Radooni ühtlase jaotuse tagamiseks pumbati kogu süsteemi ulatuses 2 minutit. Peale tsirkulatsiooni katkestamist suleti taas radoonikamber (Joonis 18b), peale mida mõõdeti RM3-B mõõtekambrisse jäänud radooni aktiivsust FAST režiimis 1 h. Mõõteseadet printis tulemusi intervallidega 5 min, 15 min, 30 min ja 1 h (Joonis 18c).

Enamasti mõõdeti ühel päeval 3 erinevat kambrist. Peale mõõtmist puhastati radoonikamber eelmise mõõtmise radooni jääkidest. Selleks pikendati radoonimonitori ekraanipoolset voolikut (õhu sisselase) ja pandi vooliku teine ots aknast välja (Joonis 18d) ning puhuti läbi välisõhuga

mõõteseadme tsirkulatsioonipumpa kasutades. Kuna igat mõõtmist tehti vähemalt 3 korda, siis kambrid puhuti läbi kahe mõõtmise vahel. Selleks kasutati laboris olevat suruõhku (Joonis 18e). Ideaalis peaks küll kasutama ventileerimiseks radoonivaba õhku, aga üldiselt on välisõhu radoonisaldus selleks piisavalt väike, et seda mitte arvestada.



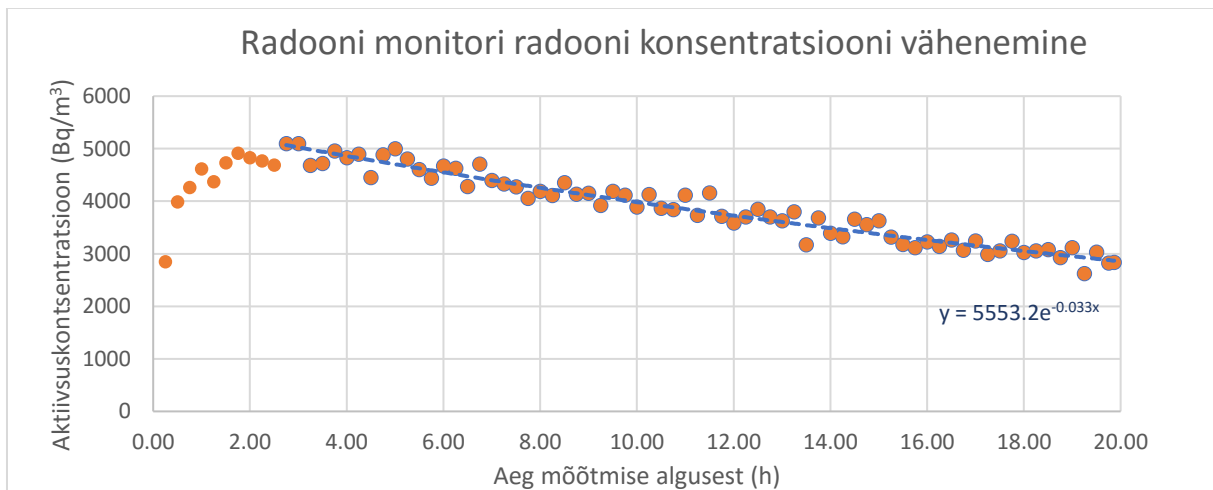
Joonis 17. Ettevalmistused radooni mõõtmiseks: a) 0,3 l liivaproovi mõõtmine; b) radoonikambrid koos kaantega, millel 2 kuulkraani; c) kasutatud kuivatuskapp (Fermaks); d) radoonikamber (sõeladega suletud) liivaprooviga kuivatuskapis; e) teflonteip radoonikambri keermetel enne kaane peale keeramist.



Joonis 18. a) radoonimonitoril vooliked küljes, vool on sees (ülemises vasakus nurgas oranž nupp, parempoolne on pump), kuid ooterežiimis (vasakpoolne oranž kandiline nupp), tulemused tulevad iga 30 min tagant; b) vooliked radoonikambri küljes, kraanid suletud; c) termopaberil tulemused; d) radoonimonitori ventileerimine välisõhuga; e) radoonikambrite ventileerimiseks kasutatud suruõhupüstol.

2.1.3 Lekked

Käesoleva töö raames hinnati ka radoonimonitori RM3-B lekketegurit suletud tsirkulatsioonipumba korral. Selleks kasutati radooni allikat, milleks on vanasse vedelgaasi ballooni paigutatud uraanirikas diktoneemakildi tükk. Arvutuslikult on selle allika keskmine sisaldus radoonisisaldus 5500 Bq/m^3 . Sellega saavutati mõõteseadmes kõrge radooni kontsentratsioon. Radooni allikas ühendati radoonimonitoriga (sarnaselt radoonikambriga), pumbati radoonirikas õhk mõõteseadmesse 2 minuti jooksul ning siis suleti RM3-B siseneva ja väljuva õhu (voolikud suleti kummist korgiga). Seejärel registreeriti radoonikontsentratsiooni vähenemist 20 h jooksul 15 minutiliste vahedega.

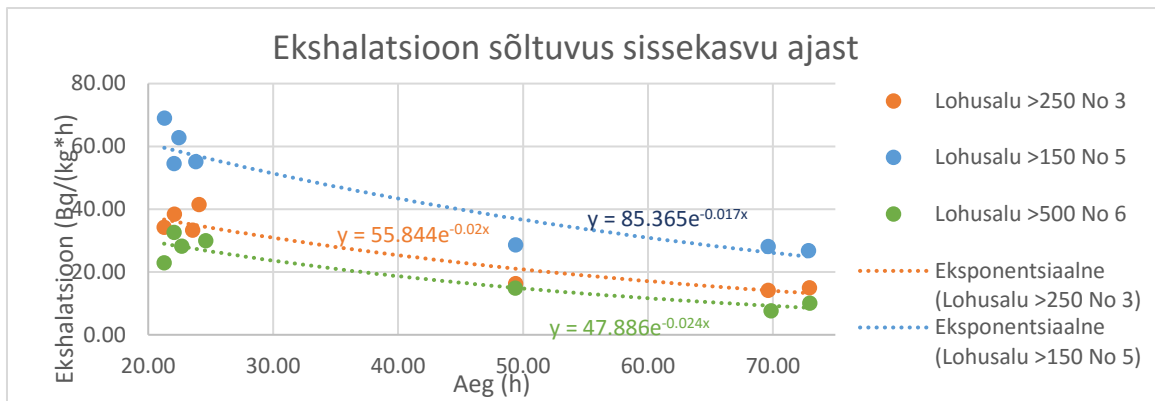


Joonis 19. Radoonimonitori lekke uurimine. Oranžid punktid tähistavad mõõtepunkte (iga 15 min tagant mõõdetud). Sinine katkendjoon on eksponentsiaalne lähendus kustumisele, alates maksimaalsest kontsentratsioonist.

Paljud kustumist väljendavad protsessid omavad eksponentsiaalset sõltuvust. Seetõttu leiti Exceli abil mõõtepunktile eksponentsiaalne lähenduskõver. Mõõtmistulemuste põhjal (alates maksimaalsest aktiivsuskontsentratsioonist) saadi lähenduskõvera $C(t)=5553,2 \cdot \exp(-0,033 \cdot t)$, mille järgi radoonimonitori lekketegur on $0,033 \text{ h}^{-1}$.

Lisaks mõõteseadme lekketegurile hinnati ka radoonikambrite lekketegureid. Radoonikambrite leke avastati peale seda, kui liivaproovid olid jäetud nädalavahetuseks kambritesse sisse kasvama ning peale mida tulemused olid tunduvalt väiksemad (2-3 korda).

Ligikaudsete lekketegurite jaoks kasutati Lohusalu 2016 liivaproovide tulemusi ning lähendatud neid eksponentsiaalse sõltuvusega (Joonis 20).



Joonis 20. Radoonikambrite leke uurimine.

Eksponeentsiaalse lähenduse tulemusena saadi, et radoonikambrite lekketegurid on järgmised: 0,02 1/h (kamber No 3), 0,017 1/h (kamber No 5) ja 0,024 1/h (kamber No 6). Seega radoonikambrite lekketegur on ligikaudu kolmandiku võrra väiksem radoonimonitori lekketegurist (kambrite aritmeetiline keskmine lekketegur 0,020 1/h), kuid kuna sissekasvu periood (~22 h) on tunduvalt pikem mõõteperioodist (1 h), siis võib jätta mõõteseadme lekke arvestamata, kuid peaks arvestama radoonikambritest tulenevat leket.

2.1.4 Tulemused

Radooni massiekshalatsiooni arvutasin järgmise valemi järgi (eeldatud, et algne radooni kontsentratsioon oli nullilähedane, mis kambri tuulutamisega enne sissekasvu peaks olema tagatud):

$$E = \frac{C \cdot V}{M \cdot t} \cdot \frac{\lambda \cdot t}{1 - \exp(-\lambda \cdot t)} \quad (4)$$

kus V on mõõtesüsteemi efektiivne ruumala (süsteemi ruumala, kus on maha lahutatud proovi ruumala) (m^3);

C on radooni kontsentratsioon (Bq/m^3);

M on proovi (kogu)mass (kg);

λ on radooni ($Rn-222$) radioaktiivse lagunemise konstant ($1/s$);

t on sissekasvu aeg. [9]

Ekshalatsioonimõõtmistel efektiivne ruumala oli 2,945 l, radooni ($Rn-222$) lagunemise konstant on $2,0984 \cdot 10^{-6}$ 1/s ehk 0,00755424 1/h. Erinevate liivaproovide (0,3 l) massid leiab tabelist 2.

Tabel 2. Radoonikambri liivaproovide massid.

	~ 0,3 liitri liiva mass (kg)			
Fraktsioon	LS-70	Lohusalu 2016	Pärnu veepiir	Pärnu kallas
Integraalne	0,7002		0,4696	0,5168
>500 μm		0,5049	0,4576	0,4969
>250 μm	0,5725	0,5051	0,4608	0,4676
>150 μm	0,7352	0,5726	0,4499	0,448
Keskmine	0,6693	0,5275	0,4594	0,4823

Radoonikambri liivaproovide masside võrdlemisel Tabel 2. Radoonikambri liivaproovide massid (Tabel 2) selgub, et Lohusalu liivaproovid on raskemad kui Pärnu liivaproovid. Teades veel liivaproovide massiekshalatsiooni tegureid (Tabel 3), saab väita, et Lohusalu liivaproovid sisaldavad rohkem radioaktiivset musta liiva, kui Pärnu liivaproovid.

Lohusalu liivaproovide massiekshalatsiooni teguri määramise tulemusel selgus, et väiksemad liivafraktsioonid on suurema radoonisaldusega ning seega sisaldavad rohkem musta liiva (seda kinnitas ka väiksemate fraktsioonide tumedam värvus).

Tabel 3. Mõõdetud liivaproovide massekshalatsioonid (laienmääramatus antud katteteguriga $k=2$).

	Massiekshalatsioon {mBq/(kg·h)}							
Fraktsioon	LS-70	Laiend- määramatus	Lohusalu 2016	Laiend- määramatus	Pärnu veepiir	Laiend- määramatus	Pärnu kallas	Laiend- määramatus
Integraalne	112,79	16,05			40,24	11,78	29,95	6,07
>500 μm			29,98	9,63	33,19	14,76	34,33	9,42
>250 μm	79,24	10,24	36,91	7,91	31,05	10,40	29,43	11,11
>150 μm	81,23	11,82	60,39	15,52	28,15	8,86	37,54	18,71

Pärnu ranna liivaproovide massiekshalatsiooni tegurid on mõõtemääramatuse piires võrdsed ning on samas suurusjärgus kui Lohusalu 2016 liivaproovi suured fraktsioonid (> 500 μm ja >250 μm).

LS-70 ja Pärnu veepiiri ekshalatsioonimõõtmise tulemusena tundub, et integraalsed fraktsioonid omavad suuremat ekshalatsioonitegurit kui erinevad fraktsioonid eraldi, kuid selleks kindlaks tegemiseks on vaja teha rohkem mõõtmisi erinevate liivaproovidega. Käesoleva töö raames tehtud mõõtmistel on liiga suured määramatused, et midagi kindlamat väita.

Rakendades mõõtesüsteemi lekete uurimise tulemusena saadud lekketegureid ekshalatsioonimõõtmise tulemustele, saab ekshalatsiooniteguritele uued hinnangud (Tabel 4) Parandatud ekshalatsioonitegurite uurimisel selgus, et Lohusalu 2016 liivaproovi suuremad fraktsioonid (> 500 μm ja > 250 μm) on natukene suurema massiekshalatsiooniga. Radoonikambri lekkeid arvestades kadus erinevus LS-70 liivaproovi fraktsioonide > 150 μm ja > 250 μm massiekshalatsiooni tegurite vahel.

Tabel 4. Radoonikambri lekkeid arvestavad ekshalatsiooni tegurid (laiendmääramatus katteteguriga $k=2$).

Fraktsioon	Parandatud ekshalatsiooni tegurid {mBq/(kg·h)}							
	LS-70	Laiend- määramatus	Lohusalu 2016	Laiend- määramatus	Pärnu veepiir	Laiend- määramatus	Pärnu kallas	Laiend- määramatus
Integraalne	198,52	34,88			71,16	19,89	53,47	10,98
>500 μm			54,11	18,13	47,25	21,13	49,08	12,42
>250 μm	123,54	18,93	58,22	12,10	49,30	17,74	48,99	17,69
>150 μm	121,23	10,98	88,28	20,80	41,40	10,69	62,59	23,78

2.2 Emanatsioon

2.2.1 Mõõteseade

Mõõteseadmena kasutati BSI planaardetektorit GPD-50400. See on HPGe pooljuhtdetektoriga gammaspektromeeter, mille detektorit jahutatakse vedellämmastikuga. Detektori juures on väljatransistoril põhinev eelvõimendi, mille signaal liigub spektromeetrise *Multispectrum*. Selles seadmes olev analoogprotsessor võimendab eelvõimendi signaali ning muudab selle lugemiteks, kust edasi läbib signaal analoog-digitaal muunduri. Muundurist tulnud signaal liigub puhvermällu. Puhvermälus olevad andmed saab kätte arvutis oleva programmi MSPA abil. MSPA võimaldab jälgida ning juhtida spektromeetri tööd. [21]

Detektori lahutusvõime on energia 5,9 keV juures 570 eV ning 610 eV energia 59,6 keV juures [21] ning on kalibreeritud kasutades IAEA referentsmaterjale RGU-1, RGTh-1 ja RGK. Gammaspektromeeter võimaldas uurida liivaproovide gammaspektrit energiavahemikus 13-619 keV.

Detektor on varjestatud 10 cm paksuse pliist kestaga ning seest vooderdatud 2 mm Cu voodriga (Joonis 21. Planaardetektor väljast ja seest.).



Joonis 21. Planaardetektor väljast ja seest.

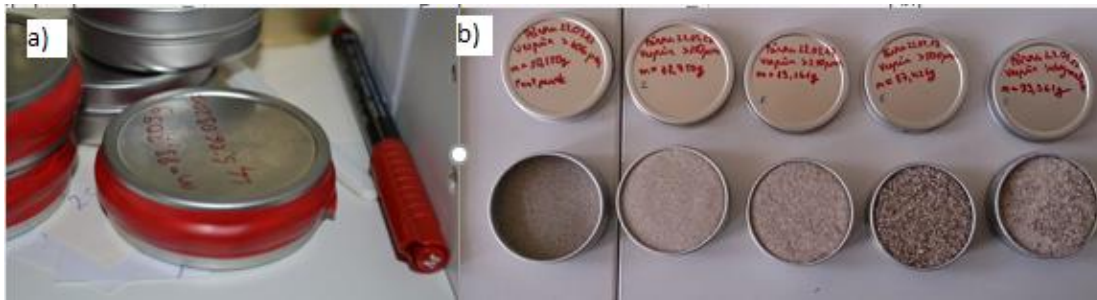
2.2.2 Metoodika

Emanatsiooni leidmiseks võrreldi tuntud geomeetriaga purgis lahtist ja suletud (sekulaarses tasakaalus) liivaproovi gammaspktreid.

Esimese asjana kaaluti liivaproovid 57 cm³ suurustesse metallpurkidesse. Selleks kõigepealt kaaluti tühjad metallpurgid (mass kirjutati purgi põhja peale) ning seejärel täideti liivaprooviga metallpurgid ning kirjutati kaane peale liivaproovi andmed (vt Tabel 7 – proovide massid ja Joonis 23b). Mõõtmiseks kasutati kaalu Ohaus Explorer (Joonis 22). Siis pandi liivaproov kuivatuskappi 105 °C juurde vähemalt 12 tunniks, et kuivatada ning puhastada sissekasvanud radoonist liivaproov. Jahtunud liivaproovile pandi kaan peale (lahtine liivaproov) ning mõõdeti BSI planaardetektoriga GPD-50400 tavaliselt 24 h vältel.



Joonis 22. Emanatsioonimõõtmistel kasutatud kaal Ohaus Explorer .

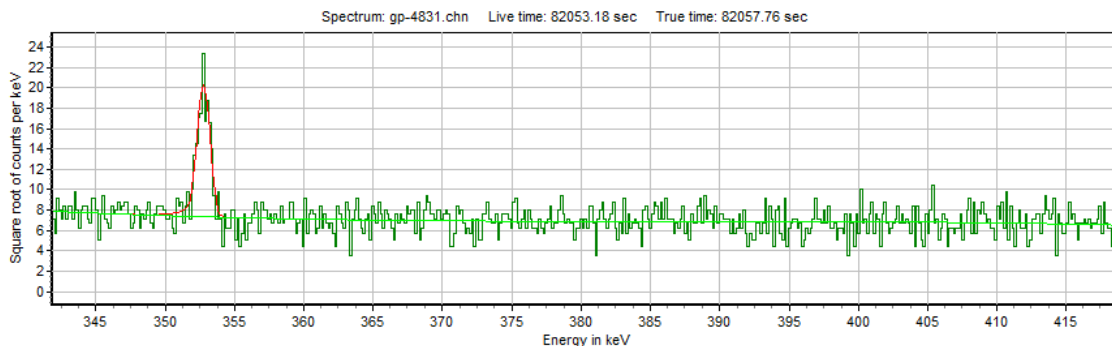


Joonis 23. a) Suletud liivaproov ning marker, millega peale kirjutati; b) Pärnu veepiiri lahtised liivaproovid metallpurkides.

Peale mõõtmist suleti metallpurgid korralikult ja tihendati, kasutades plastiliini ja isoleerteipi, et plastiliin püsiks paigal ning ei määriks (Joonis 23a). Purgi kaanele sai kirjutatud sulgemiskuupäev. Suletud liivaproovi mõõdeti uuesti vähemalt 27 päeva möödudes, kui oli tekkinud sekulaarne tasakaal radaooni ja raadiumi järel.

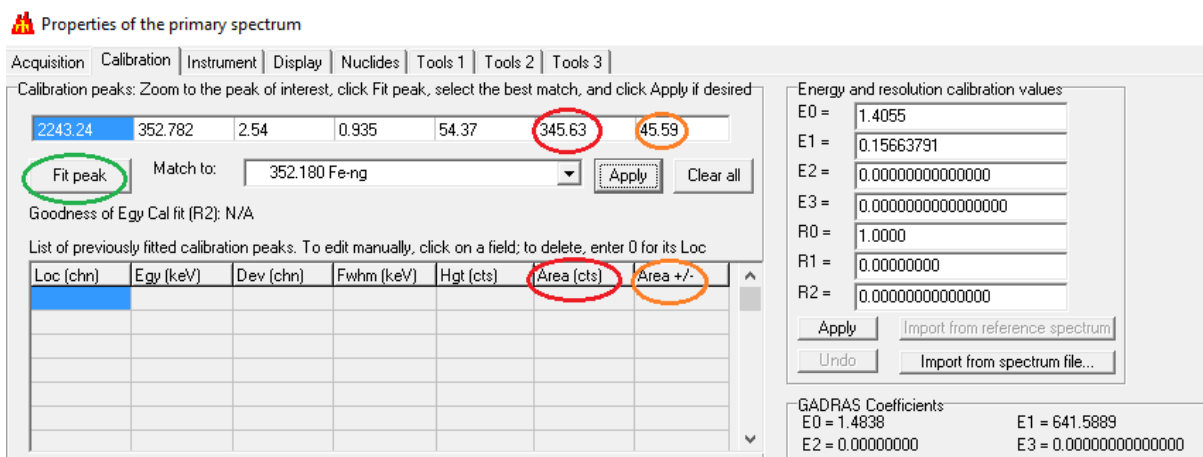
2.2.3 Tulemused

Gammaspektrite töötlemiseks kasutati tasuta alla laetavat tarkvara Cambio 4.0 Release 120822, mis on alla laetav lehelt <https://hekili.ca.sandia.gov/Cambio/>. Selle programmi abil määrati gammaspektri joonte alune pindala (Joonis 24), mis on võrdne mõõtmisperioodi jooksul saadud lugemite arvuga.



Joonis 24. Gammaspektri joone lugemite arv on määratud rohelse ja punase rohelse vaheline ala.

Spektri joone määramiseks kasutati funktsiooni *Fit peak* (Joonis 25 -roheline ovaal), mis leidis gammapiigi ning lahutas maha taustamüra. Joonis 25 punasega on tähistatud lugemite arv ning oranžiga selle määramatus.



Joonis 25. Lugemite arvu leidmiseks kasutatud Cambio tööriist ja väljad. Roheliselt tähistatud nupp leidis lugemite arvu, punasega näidatud suurus on selle spektrijoone pindala ja oranž määramatus.

Emanatsioonikoefitsiendi leidmiseks kasutati spektrijooni Pb-214 jooni 296 keV ja Bi-214 joont 609 keV. Nende põhjal leiti määramatustega kaalutud lugemite arvu ja määramatuse lugemite arvule. Kuna valemis (1) on vaja lugemite arvu ajaühikus, siis jagati lugemite arv läbi mõõteperioodiga (Joonis 24 - Live time spektri kohal) ning rakendatud valemit (1).

Tulemused on järgmistes tabelites:

Tabel 5. Liivaproovide emanatsioonikoefitsiendid, laiendmääramatus antud katteteguriga $k=2$.

	LS-70	Laiend- määramatus	Lohusalu 2016	Laiend- määramatus	Pärnu veepiir	Laiend- määramatus	Pärnu kallas	Laiend- määramatus
Integraalne	0,0228	0,0004			0,140	0,053	0,449	0,107
>150 μm	0,0023	0,0001	0,094	0,009	0,00012	0,00005	0,428	0,178
>250 μm	0,0456	0,0020	0,103	0,011	0,074	0,023	0,188	0,106
>500 μm			0,0057	0,0010	0,134	0,035	0,019	0,004

Tabel 6. Aritmeetilised keskmised emanatsioonikoefitsiendile ja tema määramatusele.

	Lohusalu keskmine	Laiend- määramatus	Pärnu keskmine	Laiend- määramatus	Keskmine	Laiend- määramatus
Integraalne			0,2947	0,0797	0,2041	0,0533
>150 μm	0,0481	0,0044	0,2140	0,0888	0,1310	0,0466
>250 μm	0,0744	0,0066	0,1312	0,0646	0,1028	0,0356
>500 μm			0,0770	0,0194	0,0532	0,0133

Kokkuvõtvast tabelist on näha, et emanatsioonikoefitsient osakeste suurenedes väheneb. See on tingitud sellest, et ühtlase raadiumi jaotuse korral liivateras tagasilöögiulatusega määratud pinnakihi ruumala ei kasva nii ruttu kui liivatera ruumala.

Saadud tulemuste puhul on näha, et integraalse liivaproovi emanatsioonikoefitsient on kõige suurem. See on ilmselt tingitud sellest, et liivaterakesed paiknevad korrapäratumalt ning seetõttu radooni aatomid neelduvad vähem teistes liivaterades.

Võrreldes Pärnu ja Lohusalu liivaproove, on näha, et Pärnu liivaproovid on mitu korda suurema emanatsioonikoefitsiendiga. Selle põhjuseks võib olla see, et liivad on erinevat tüüpi. Pärnu liiv on kruusasem ja Lohusalu liiv mineraalsem (sellele viitab tumedam toon ja suurem tihedus, mis on tingitud mustast liivast). Leitud emanatsioonikoefitsiendid on kooskõlas Joonis 5 olevate väärtustega.

Emanatsioonikoefitsiendi määramiseks leitud lugemite arv ajaühikus on hea indikaator liivaproovi radioaktiivsuse hindamiseks. Jagades saadud väärtused veel proovi massiga, on võimalik võrrelda erinevaid fraktsioone. Saadud tulemused on esitatud

Tabel 7. Kinnise liivaproovide lugemite arv sekundis.

Proov	Mass (g)	1/s	1/(kg·s)
LS-70 integraalne	124,495	0,4255	3,4182
LS-70 >150 µm	133,851	0,4900	3,6610
LS-70 >250 µm	112,791	0,1518	1,3457
Lohusalu 2016 >150 µm	102,752	0,1187	1,1553
Lohusalu 2016 >250 µm	87,141	0,0113	0,1301
Lohusalu 2016 >500 µm	90,407	0,0041	0,0456
Pärnu veepiir integraalne	93,361	0,0035	0,0370
Pärnu veepiir >150 µm	88,95	0,0020	0,0227
Pärnu veepiir >250 µm	89,161	0,0023	0,0260
Pärnu veepiir >500 µm	87,426	0,0037	0,0425
Pärnu kallas integraalne	98,471	0,0056	0,0566
Pärnu kallas >150 µm	87,692	0,0027	0,0309
Pärnu kallas >250 µm	87,46	0,0027	0,0304
Pärnu kallas >500 µm	86,551	0,0034	0,0399

Saadud tulemustest on näha, et LS-70 ja Lohusalu 2016 fraktsioon > 150 µm liivaproovid on väga aktiivsed võrreldes ülejäänud proovidega (1-2 suurusjärku). Lohusalu 2016 fraktsioon > 250 µm on keskmise aktiivsusega. Lohusalu 2016 fraktsioon > 500 µm on sarnase aktiivsusega kui Pärnu liivaproovid. Seejuures Pärnu kalda liivaproov on natukene suurema aktiivsusega kui veepiiri liivaproov.

2.2.4 Emanatsiooni ja ekshalatsiooni tulemuste analüüs

Nii emanatsiooni kui ekshalatsiooni mõõtmisel kaaluti kindla ruumalaga liivaproov. Nende andmete järgi leiti proovide tihedused, mis on esitatud tabelis 8.

Tabel 8. Liivaproovide tihedused (g/m^3), kus vasakpoolne lahter on emanatsioonimõõtmiste andmete põhjal ja parempoolne ekshalatsioonimõõtmiste andmete põhjal (ebatäpsem, kuna mõõteklaasi oli lai ja kõrge, mis tegi liivaproovi tasandamise keeruliseks ja koguse mõõtmise ebatäpseks).

	LS-70		Lohusalu 2016		Pärnu veepiir		Pärnu kallas	
	Integraalne	2,18	2,33			1,64	1,57	1,73
>150 μm	2,35	2,45	1,80	1,91	1,56	1,50	1,54	1,49
>250 μm	1,98	1,91	1,53	1,68	1,56	1,54	1,53	1,56
>500 μm			1,59	1,68	1,53	1,53	1,52	1,66

Tihedusi analüüsid selgus, et Pärnu liivaproovidel integraalne fraktsioon omab kõige suuremat tihedust ning emanatsiooniproovide põhjal tihedus osakeste suurenedes väheneb.

Lohusalu liivaproovides eristus selgelt suurem aktiivsuse tase (Tabel 7). Lisaks olid aktiivsemad liivaproovid ka tumedama värvusega ning suurema tihedusega (Tabel 8). See aga tõestab, et Lohusalu liivaproovides leidis suurel määral raskeid elemente sisaldavat musta liiva. Suhteliselt väikse emanatsioonikoefitsiendi tõttu LS-70 liiv ei kujuta väga suurt ohtu võrreldes temas sisalduvate radionukliidide hulgaga, kuna suurem osa lagunemistest toimub mineraali sees, kus ta mõju ei avalda.

Tänuavaldused

Töö autor soovib tänada oma juhendajaid Rein Koch'i ja Alan Tkaczyk'ut nende abi eest, eriti tänaks Rein Koch'i, kes andis lugemiseks nii palju artikleid, et kõiki ei jõudnud lugedagi. Veel soovib autor tänada külalisprofessorit Belfastist Dr Zoltan Sas'i, kes aitas ekshalatsiooni-mõõtmise meetodikat valida ja Tartu Ülikooli Füüsika Instituudi Keskkonnalabori töötajaid, kes aitasid laborisse pääseda, et saaks ekshalatsiooni mõõtmisi läbi viia. Ning veel suuremad tänud Maria Leierile ja Kaisa Putkule, et abistasid BSI planaardetektoril viimaste liivaproovide vahetamist.

Kasutatud kirjandus

- [1] World Health Organization, *WHO handbook on indoor radon : a public health perspective* (World Health Organization, Geneva, 2009).
- [2] Euroopa Liidu Nõukogu, *Direktiiv 2013/59/EURATOM (2013)*.
- [3] Kiirguskeskus, *Kiirgus, inimesed ja keskkond*, (Mixi Kirjastus OÜ, Tallinn 2006).
- [4] Eksperthinnang, "Looduslike 5 Eestis tekkivad looduslike radionukliididega saastunud materjalid ja nende käitlemise 5 Eestis tekkivad looduslike radionukliidideLooduslike radionukliidide sisaldavate ja looduslike radionukliididega saastunud materjalide käitlemise valikud," (2010) <http://www.envir.ee/sites/default/files/materjalidepuhastamine.pdf>. D. (23. aprill 2017).
- [5] World Nuclear Association, (2016) <http://www.world-nuclear.org/information-library/safety-and-security/radiation-and-health/naturally-occurring-radioactive-materials-norm.aspx>. (20. aprill 2017).
- [6] S. Sepp, "Sandatlas," <http://www.sandatlas.org/what-is-black-sand/>. (24 aprill 2017).
- [7] R. J. Meijer, "Heavy minerals: from 'Edelstein' to Einstein," *Journal of Geochemical Exploration* 62, 81-103 (1998).
- [8] A. Raukas, R. Koch, K. Jüriado ja J.-I. Järvelill, "Anomalous radioactivity level and high concentrations of heavy minerals in Lemme area, South-West Estonia," *Baltica* 2, 93-104 (2014).
- [9] Y. Ishimori, K. Lange, P. Martin, Y. Mayya ja M. Phaneuf, *Technical Reports Series No. 474 Measurement and Calculation of Radon Releases from NORM Residues* (International Atomic Energy Agency IAEA, Vienna, 2013).
- [10] Keskkonnaministeerium, *Radooni aktiivsuskontsentratsiooni mõõtmine (RAM 2106)*.
- [11] Eesti Standardikeskus, *Eesti Standard EVS-ISO 11665-1:2015* (Tallinn, 2015).
- [12] T. Turtiainen, „Radoon ja tervis,“ Radooni aktiivsuskonsentratsiooni mõõtmine, Tallinn, 3-4. mai 2016. http://www.envir.ee/sites/default/files/elfinder/article_files/radoon_5_radoon_ja_tervis_0.pdf.
- [13] A. Jantsikene, R. Koch, „Radoonist ja veel ühest selle määramise meetodist,“ *Keskkonnatehnika* 6, 19-21 (2009).
- [14] I. E. E. Aassya, D. H. Shabaan ja E. M. Ibrahima, „Environmental impacts of waste produced from processing of different uraniferous rock samples,“ *Journal of Radiation Research and Applied Sciences* 9, 303-309 (2016).

- [15] M. K. Seddeek, H. M. Badran, T. Sharshar ja T. Elnimr, „Characteristics, spatial distribution and vertical profile of gamma-ray emitting radionuclides in the coastal environment of North Sinai,“ *Journal of Environmental Radioactivity* 84, 21-50 (2005).
- [16] V. A. Nikolaev ja R. Ilic, „Etched track radiometers in radon measurements: a review,“ *Radiation Measurements* 30, 1-13 (1999).
- [17] K. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 4th ed., (Wiley, New York, 2010)
- [18] J. Miles, „Methods of radon measurement and devices,“ (2004).
http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/36/010/36010924.pdf .
- [19] International Atomic Energy Agency, *IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications No. IAEA/AQ/19 Analytical Methodology for the Determination of Radium Isotopes in Environmental Samples*, (IAEA, Vienna, 2010).
- [20] *Short form manual on RADON MONITOR MONITOR RM3-A with a addendum for RADON MONITOR RM3-B*, Alnor Instrument AB (1989).
- [21] BSI, *Gamma-ray Spectrometer Based on GPD-50400 Detection Unit. Passport and operating manual* (Balitic Scientific Instruments, Riga, 2003).

Lihtlitsents lõputöö reprodutseerimiseks ja lõputöö üldsusele kättesaadavaks tegemiseks

Mina, Anne Serv,

1. annan Tartu Ülikoolile tasuta loa (lihtlitsentsi) enda loodud teose
EESTI RANNALIIVADE RADOONI EMANATSIOON JA EKSHALATSIOON.

mille juhendajad on Rein Koch ja Alan Henry Tkaczyk,

- 1.1.reprodutseerimiseks säilitamise ja üldsusele kättesaadavaks tegemise eesmärgil, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace-is lisamise eesmärgil kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni;
 - 1.2.üldsusele kättesaadavaks tegemiseks Tartu Ülikooli veebikeskkonna kaudu, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace'i kaudu kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni.
2. olen teadlik, et punktis 1 nimetatud õigused jäävad alles ka autorile.
 3. kinnitan, et lihtlitsentsi andmisega ei rikuta teiste isikute intellektuaalomandi ega isikuandmete kaitse seadusest tulenevaid õigusi.

Tartus, **26.05.2017**