

METODA ČVRSTIH NUKLEARNIH TRAG DETEKTORA I PROCJENA GODIŠNJE EFEKTIVNE DOZE RADONA

METHOD OF SOLID STATE NUCLEAR TRACK DETECTORS AND ESTIMATION OF ANNUAL EFFECTIVE RADON DOSE

dr. sc. Amela Kasić, vanredni profesor
dr. sc. Amira Kasumović, vanredni profesor
Univerzitet u Tuzli, Prirodno-matematički fakultet
Tuzla

REZIME

Radon je prirodno prisutan radioaktivni plemeniti gas koji se može akumulirati u zatvorenim objektima. Koriste se različite mjerne metode za određivanje koncentracije aktivnosti radona u zraku. U radu je opisana metoda čvrstih nuklearnih trag detektora, i predstavljeni su rezultati mjerenja u hidroterapijskim blokovima banja Bosne i Hercegovine. Vrijednosti koncentracije aktivnosti radona su bile u intervalu (16,85–158,55) Bq m⁻³. Procijenjena godišnja efektivna doza za radnike i pacijente u ispitivanim banjama Bosne i Hercegovine je bila u intervalu (0,12-1,14) mSv, (1,27-11,99) μSv, respektivno.

Ključne riječi: koncentracija aktivnosti radona, banje Bosne i Hercegovine, godišnja efektivna doza, metoda čvrstih nuklearnih trag detektora

ABSTRACT

Radon is a naturally occurring radioactive noble gas that can accumulate in closed buildings. Different measurement methods are used to determine the radon activity concentration in the air. This paper describes the method of solid state nuclear track detectors and presents the results of measurements in hydrotherapy blocks of spas in Bosnia and Herzegovina. The values of radon activity concentration were in the interval (16,85-158,55) Bq m⁻³. The estimated annual effective dose for workers and patients in the spas in Bosnia and Herzegovina was in the interval (0,12-1,14) mSv, and (1,27-11,99) μSv, respectively.

Keywords: radon activity concentration, spas of Bosnia and Herzegovina, annual effective dose, method of solid state nuclear track detectors

1. UVOD

Radon je radioaktivni, inertni gas i direktni je produkt radioaktivnog raspada radija (²²⁶Ra) uz emisiju alfa čestice. Prosječna vrijednost doze koju čovjek primi godišnje od inhalacije radona iznosi oko 1,3 mSv, što predstavlja više od 50% prosječne doze koju čovjek primi godišnje od svih prirodnih radioizotopa (prosječna doza za stanovništvo u Evropi iznosi 2,4 mSv), a dva puta veću vrijednost u odnosu na dozu koju čovjek primi godišnje od vještačkih izvora jonizujućeg zračenja (0,6 mSv) [1].

Prirodni radionuklidi nalaze se u svim stijenama Zemljine kore i omotača: magmatskim,

sedimentnim i metamorfnim, sa najvećim prisustvom u perifernom dijelu litosfere, u granitnoj ljusci, na dubini 10 do 15 km. Materijali koji sadrže uranij, su izvori radona, s obzirom da radon nastaje raspadom radija koji je potomak uranija. Neke stijene imaju povećanu koncentraciju uranija, kao što su granit, svijetle vulkanske stijene, sedimentne stijene koje sadrže fosfat i metamorfne stijene [1,2]. Zemljište je glavni izvor radona u zatvorenom prostoru, dok manji dio ovog radioaktivnog gasa dolazi od građevinskog materijala, podzemnih voda i zemnog gasa. Među najznačajnije faktore koji utiču na koncentraciju radona u zatvorenom prostoru su prirodni faktori, gdje spada koncentracija radona u zemljištu koja zavisi od hemijskog, geološkog sastava kao i vlažnosti, poroznosti i propusnosti zemljišta. Veliki uticaj na koncentraciju radona ima i razlika pritisaka unutar i izvan zatvorenog prostora, te vlažnost vazduha i razlika temperatura. Način gradnje, broj spratova i etaža, prisutnost pukotina na građevinskim objektima koji imaju značajan uticaj na koncentraciju radona spadaju u antropogene faktore.

Radon u građevinske objekte može ući na razne načine, uključujući podove, pukotine u betonu i temeljnim zidovima, odvođe, otvore oko odzračnih i vodovodnih cijevi, česme, posebno one pod tušem i spojeve na građevini. Radon se uglavnom nakuplja u nižim i najmanje ventilisanim prostorijama građevinskog objekta, kao što je podrum. Jačina ventilacije je faktor koji utiče na smanjenje koncentracije aktivnosti radona u zatvorenom prostoru, a izražava se u broju izmjena cjelokupnog vazduha u prostoru u toku jednog sata. Pri tome ventilacija se sastoji od: infiltracije, prirodne i vještačke ventilacije [3,4,5].

Vijeće Evropske unije 2013. godine donosi direktivu 2013/59/Euratom gdje naglašava potrebu praćenja koncentracije radona u kućama i radnim mjestima. Ta direktiva odnosi se na zemlje članice Evropske unije. Referentni nivo srednje godišnje koncentracije radona za radne prostorije u svakoj državi članici ne smije biti viši od 300 Bq m^{-3} , osim u slučaju specifičnih okolnosti [6]. Kako je radon više rastvorljiv u vodi nego lakši plemeniti gasovi, smatra se da radon iz vode ima značajan doprinos ukupnoj koncentraciji radona u zatvorenom prostoru. Rastvorljivost radona u mastima je sto puta veća nego u krvi, a rastvorljivost u krvi četiri puta veća nego u vodi, što je od velikog uticaja na ljekovito djelovanje radona. Sadržaj radona u prirodnim vodama je različit i dosta varira, tako da je u običnim pijaćim i riječnim vodama oko $3,7 \text{ Bq l}^{-1}$, a u morskoj $1,1 \text{ Bq l}^{-1}$. Koncentracija radona od $0,37 \text{ Bq l}^{-1}$ karakteristična je za jezera i rijeke, a od $(3,7-370) \text{ Bq l}^{-1}$ za podzemne vode. Koncentracije radona u vodi bogatoj radonom mogu biti različite i kretati se od 185 Bq l^{-1} za nisko-koncentrirane vode, do preko 3000 Bq l^{-1} za visoko-koncentrirane vode. Američka agencija za zaštitu okoline (eng. Environmental Protection Agency, EPA) je 1991. godine postavila maksimalni nivo kontaminacije vode radonom i on iznosi 11 Bq l^{-1} [7].

U radu je opisana pasivna tehnika mjerenja koncentracije aktivnosti radona pomoću čvrstih nuklearnih trag detektora, te predstavljeni i analizirani rezultati mjerenja u prostorijama za hidroterapiju banja Bosne i Hercegovine.

2. MATERIJAL I METODE

Metoda nuklearnih trag detektora ima široku primjenu i zauzima posebno mjesto u kontroli radioaktivnosti u okolini, gdje je sve veća potreba mjerenja koncentracije radioaktivnog gasa radona u vazduhu. Metode mjerenja kratkoživčeg radioaktivnog izotopa radona, ^{222}Rn , su dosta dobro ustanovljene korištenjem nuklearnih trag detektora [8]. Najpoznatiji detektori nuklearnih tragova su filmovi od celuloznog nitrata (LR-115 i CN 85), polikarbonata, te polialildiglikol karbonata (CR-39). Nijedan od poznatih polimera ne može detektovati beta čestice i gama zračenje, jer je za stvaranje traga na filmu detektora potrebna viša energija. Detektor tragova CR-39/PADC (eng. Poly-Allyl Diglycol Carbonate, PADC) je termički otporna smola dobivena postupkom polimerizacije. To su najčešće korišteni alfa trag detektori

u čvrstom stanju. Ovi detektori su jednostavni za upotrebu, ne zahtijevaju korištenje elektronike prilikom detekcije, i nazivaju se i integrirani uređaji. Detektori CR-39 su pogodni za dugotrajna mjerenja radona, od par dana do nekoliko mjeseci (tri do šest mjeseci), pri čemu dobijeni rezultati predstavljaju srednje koncentracije radona na datoj lokaciji za određeni interval mjerenja.

CR-39 detektori su u obliku plastične pločice dimenzija 10 mm×10 mm×1 mm. Otporni su na temperature do 110 °C i relativnu vlažnost u opsegu (5-95)%. Ovi detektori imaju nizak prag detekcije, osjetljivost im je do 2,0 (tragova cm⁻²)/(kBq m⁻³ h), početni fon je 0,3 traga/mm², a granica zasićenja veća od 12000 kBq h m⁻³. Tokom mjerenja koncentracije radona na istraživanim lokalitetima detektor se postavlja u difuzione komore, prilikom čega su detektorske pločice pomoću gumenog ljepila zakačene na unutrašnjost čepa komore. Na čepu komore se nalazi etiketa sa ID brojem koji odgovara broju ugraviranom na detektorskoj pločici postavljenoj u komori (Slika 1.).#

Osnovni mehanizam rada čvrstih nuklearnih trag detektora je u tome što jonizujuće čestice pri prolasku kroz izolatorski materijal izazivaju strukturne promjene u datom materijalu. Ta oštećena mjesta pod dejstvom hemijskog i elektrohemijskog nagrizanja se brže rastvaraju od mjesta gdje čestice nisu prošle. Usljed toga se formiraju defekti koji predstavljaju tragove prolaza jonizujućih čestica i vidljivi su optičkim mikroskopom. Ti tragovi su veoma malih dimenzija, nazivaju se latentni tragovi i relativno su stabilni na normalnim temperaturama. Prečnik nastalih tragova je samo desetak nanometara ili manji, i mogu se vidjeti jedino pomoću elektronskog mikroskopa. Ovakvi tragovi mogu preživjeti čak i na visokim temperaturama, zavisno od sredine u kojoj se nalaze i intenziteta jonizacije.



a)

Slika 1. a) CR-39 detektor



b)

b) CR-39 detektor i difuziona komora

Oblik i veličina tragova koji nastaju nakon izlaganja detektora zavise od brzine nagrizanja čitave zapremine filma, v_B , i brzine nagrizanja traga duž putanje čestice, v_T . Odnos ova dva parametra daje kritični ugao nagrizanja, θ_c , koji predstavlja najmanji mogući ugao upadne čestice na površinu detektora pri kojem će ona ostaviti trag na filmu. Zavisno od vrijednosti upadnog ugla, oblik traga će se mijenjati od kružnog do eliptičnog. Trag će se uvećati nagrizanjem samo ako brzina nagrizanja duž traga prevaziđe brzinu kojom se nagriza (skida) površina.

Nakon izlaganja detektori se hemijski obrađuju, u prikladnoj lužnatoj (NaOH, KOH) ili kiseljoj otopini (HF ili HNO₃), pri konstantnoj temperaturi. Nagrizanjem se prekinuti polimerni lanci otapaju i na taj način se mala oštećenja proširuju za faktor 10² - 10³ te nastaju tragovi vidljivi optičkim mikroskopom. Ovim postupkom se novonastali tragovi fiksiraju čime postaju neosjetljivi na promjene temperature te trajno ostaju na površini detektora.

Postupak hemijskog nagrizanja detektora, te automatskog očitavanja tragova detektora je

proveden upotrebom mjernog sistema RadoSys (RadoSys Company, Mađarska). Za pripremu rastvora za hemijsko nagrizanje detektora potrebno je 4 litra destilovane vode i 1 kg čistog NaOH (sa granulama manjim od 10 mm). Priprema rastvora i proces nagrizanja se obavljaju u RadoBath (RB4), termostatiranom kupatilu za hemijsko nagrizanje tragova na detektorima (Slika 2.a), u koji se postavlja disk, na kojem se nalaze plastični držači sa detektorima. Prilikom pripreme vodenog rastvora NaOH u posudu kupatila RB4 se najprije ulije 4 litra destilovane vode, koja se zagrije do 60 °C, a zatim isključi grijač. Kada voda dostigne odgovarajuću temperaturu, granule NaOH se ubacuju preko lijevka u termostatirano kupatilo. Ubacivanje se vrši postepeno, svake tri minute po jedna kašika. Nakon pripreme rastvora, postavlja se disk sa detektorima u kupatilo. Prije samog postavljanja diska temperatura kupatila mora biti 90 °C. Hemijsko nagrizanje detektora traje 4,5 [h]. Na displeju RadoBath jedinice se može pratiti odbrojanje vremena nagrizanja i temperatura. Poslije završetka nagrizanja, ispusti se rastvor u laboratorijske termo-otporne boce. Nakon toga slijedi neutralizacija, koja se priprema dodavanjem 200 ml 15% ili 20% sirćetne kiseline u 4 l destilovane vode. Proces neutralizacije se, takođe, pokreće tasterom na displeju jedinice i traje deset minuta. Posljednja faza je ispiranje sa 4 l destilovane vode da bi se uklonili eventualni ostaci hemikalija. Disk sa držačima se izvadi iz jedinice za nagrizanje i ostavi na sušenje nekoliko sati. Zadnja faza je očitavanje detektora koja se vrši upotrebom jedinice RadoMeter (Slika 2.b), koja se sastoji od automatizovanog mikroskopa i računara sa namjenski instalisanim programima. Vrijeme snimanja jednog detektora traje oko 90 sekundi, a analiza tragova se provodi na površini detektora od oko 50 mm² [9,10].



Slika 2. a) RadoBath RB4, termostatirano kupatilo za hemijsko nagrizanje detektora, b) Mikroskop za očitavanje detektora

Koncentracija aktivnosti radona se određuje na osnovu očitane gustine tragova i vremena izlaganja, te kalibracionog faktora detektora. Na osnovu izmjerenih vrijednosti koncentracije aktivnosti radona u prostorijama za hidroterapiju procijenjena je godišnja efektivna doza koju prime radnici i pacijenti pri inhalaciji radona. Godišnja efektivna doza je izračunata na osnovu relacije (1):

$$AED = C \cdot F \cdot T \cdot D \quad (1)$$

gdje je: *AED* - godišnja efektivna doza koja potiče od inhalacije radona u zatvorenom prostoru (mSv), *C* - koncentracija aktivnosti radona (Bq m⁻³), *F* - faktor ravnoteže radona (0,4–za zatvoreni prostor), *t* - prosječan broj sati u godini, *D* - dozni konverzioni faktor za radon (9 nSv Bq⁻¹ h⁻¹ m³) [11,12]. Prilikom izračunavanja godišnje efektivne doze za radnike i pacijente uzeto je da broj sati boravka u prostorijama tokom godine iznosi 2 000 [h] i 21 [h], respektivno [13].

3. REZULTATI ISTRAŽIVANJA I DISKUSIJA

Mjerenje koncentracije aktivnosti radona u vazduhu izvršeno je u šest banja na području Bosne i Hercegovine. Mjerenja su izvršena na lokalitetima: Banja Ilidža, Banja Slatina, Banja Vrućica, Banja Dvorovi, Banja Aquaterm i Banja Gata. U Tabeli 1. su prikazane srednje vrijednosti koncentracije aktivnosti radona izmjerene u hidroterapijskim blokovima istraživanih banja, koji se koriste u terapeutske svrhe. Rezultati mjerenja ovom metodom su pokazali da se vrijednosti koncentracije aktivnosti radona u hidroterapijskim prostorijama ispitivanih banjskih lokaliteta nalaze u intervalu od $16,85 \text{ Bq m}^{-3}$ do $158,55 \text{ Bq m}^{-3}$. Najviša vrijednost ($158,55 \pm 29,55$) Bq m^{-3} je dobivena u hidroterapijskom bloku na lokaciji br. 2, Banja Slatina, što je manje od vrijednosti koncentracije aktivnosti radona u Niškoj Banji, Srbija ($140\text{-}2810$) Bq m^{-3} [14]. Najmanja vrijednost koncentracije aktivnosti radona je dobivena u hidroterapijskom bloku na lokaciji br. 5, Banja Aquaterm, ($16,85 \pm 3,75$) Bq m^{-3} , što je manje od vrijednosti koncentracije aktivnosti radona u banjama na području Slovenije, ($25\text{-}279$) Bq m^{-3} [15].

Tabela 1. Srednje vrijednosti koncentracije aktivnosti radona na ispitivanim lokalitetima

Redni broj	Lokalitet	C (Bq m^{-3})
1.	Banja Ilidža	$33,15 \pm 6,85$
2.	Banja Slatina	$158,55 \pm 29,55$
3.	Banja Vrućica	$17,1 \pm 7,4$
4.	Banja Dvorovi	$49,12 \pm 9,72$
5.	Banja Aquaterm	$16,85 \pm 3,75$
6.	Banja Gata	$56,9 \pm 11,00$

Vrijednosti dobivene za koncentraciju aktivnosti radona su korištene za procjenu inhalacione godišnje efektivne doze. U Tabeli 2., se nalaze vrijednosti godišnje inhalacione doze za radnike i pacijente u banjama Bosne i Hercegovine. Procijenjena godišnja efektivna doza za radnike i pacijente se nalazi u intervalu od $(0,12\text{-}1,14)$ mSv i $(1,27\text{-}11,99)$ μSv , respektivno.

Tabela 2. Vrijednosti godišnje inhalacione doze za radnike i pacijente na ispitivanim lokalitetima

Redni broj	Lokalitet	AED _{radnici} (mSv)	AED _{pacijenti} (μSv)
1.	Banja Ilidža	$0,24 \pm 0,05$	$2,51 \pm 0,52$
2.	Banja Slatina	$1,14 \pm 0,21$	$11,99 \pm 2,23$
3.	Banja Vrućica	$0,12 \pm 0,05$	$1,29 \pm 0,56$
4.	Banja Dvorovi	$0,35 \pm 0,07$	$3,71 \pm 0,73$
5.	Banja Aquaterm	$0,12 \pm 0,03$	$1,27 \pm 0,28$
6.	Banja Gata	$0,41 \pm 0,08$	$4,30 \pm 0,83$

4. ZAKLJUČAK

Značajnu ulogu u ukupnom ozračivanju stanovništva između ostalog ima sadržaj radionuklida u vodi za piće, ali i vodi koja se koristi i za druge svrhe. To se prvenstveno odnosi na vodu koja se koristi u bazenima za kupanje, kao i kadama i kupatilima za inhalaciju u rekreaciono-lječilišnim centrima. Doza ozračivanja organizma od radionuklida unijetih vodom za piće zavisi od njihove količine u vodi, njihovog metabolizma i kinetike u organizmu. Kada se radi o vodi koja se koristi za kupanje i terapiju, najveći doprinos dozi dolazi od inhalacije radona. Tokom istraživanja u ovom radu izvršena su mjerenja koncentracije aktivnosti radona u

vazduhu hidroterapijskih blokova, u banjama Bosne i Hercegovine, koja su manja od referentne vrijednosti, 300 Bq m^{-3} [6]. Procijenjena godišnja efektivna doza u ispitivanim hidroterapijskom blokovima, za radnike i pacijente je većinom značajno manja nego godišnja doza prirodne radijacije od 1 mSv.

5. REFERENCE

- [1] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR): Sources and effects of ionizing radiation, UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, Annex B: Exposures from natural radiation sources. UNSCEAR, New York, 2000.
- [2] Baskaran, M.: Radon: A tracer for geological, geophysical and geochemical studies, Basel: Springer, Vol. 367, 2016.
- [3] Esan, D.T.; Sridhar, M.K.C.; Obed, R. et al.: Determination of Residential Soil Gas Radon Risk Indices Over the Lithological Units of a Southwestern Nigeria University, Scientific Reports 10, 7368, 2020.
- [4] Pavlenko T.; German, O.; Ksenov, A. et al.: Radon remediation efficiency assessment in the Kirovograd region, Ukraine, Nuclear Technology & Radiation Protection, Vol. 33, No. 3, 2018, pp. 317-323
- [5] Kasić, A.; Sakić, Z.; Kasumović, A.: Measurement of indoor radon concentrations and doses assessment in the area of Tuzla Canton, Bosnia and Herzegovina, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 333, 2024, pp. 2621–2628
- [6] Council of the European Union: Council Directive 2013/59/Euratom of 5 December 2013 laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, and repealing Directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom, Official Journal of the European Union, 13, 2014, pp. 1-73
- [7] National Research Council (US) Committee on Risk Assessment of Exposure to Radon in Drinking Water: Risk assessment of radon in drinking water, National Academies Press, Washington (DC), 1999.
- [8] Nikezić, D.: Merenje faktora ravnoteže kratkoživećih radonovih potomaka trag detektorima, XXV Simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Društvo za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, 30. septembar – 02. oktobar 2009, Kopaonik, Srbija; Ed. Ciraj-Bjelac, O.; ISBN 978-86-7306-112-2, pp. 9-19
- [9] Durani, S.; Ilić, R.: Radon Measurements by Etched Track Detectors: Application in Radiation Protection, Earth Sciences and the Environment, Singapore, Word Scientific, 1997.
- [10] RadoSys, User's manual, RadoSys Company, Hungary
- [11] Bituh, T.; Marovic, G.; Petrincec, B. et al.: Natural radioactivity of ^{226}Ra and ^{228}Ra in thermal and mineral waters in Croatia. Radiation Protection Dosimetry, Vol. 133, Issue 2, 2009, pp. 119-123
- [12] Marović, G.; Senčar, J.: Exposure to Natural Radioactivity from Thermal Waters in Croatia, Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, Vol. 67, 2001, pp 35-41
- [13] International Commission on Radiological Protection (ICRP): Limits for intakes of radionuclides by worker, ICRP Publication 30, Annals of the ICRP, Pergamon Press Oxford, 1979.
- [14] Nikolov, J.; Todorovic, N.; Pantic, T. P. et al.: Exposure to radon in the radon spa Niška Banja, Serbia, Radiation Measurements, Vol. 47, Issue 6, 2012, pp. 443-450
- [15] Vaupotić, J.; Kobal, I.: Radon exposure in Slovenia spas, Radiation Protection Dosimetry, Vol. 97, Issue 3, 2001, pp. 265-270