

1.5 Migrace radionuklidů v životním prostředí

Distribuce radionuklidů v terénu závisí na druhu terénu a meteorologických vlivech, které souvisí především se zeměpisnou polohou. V oblastech se zvýšeným množstvím srážek dochází k většímu usazování a vymývání radionuklidů z atmosféry proti oblastem, kde jsou srážky vzácné. Rovněž vítr způsobuje rozptylování radionuklidů, zatímco v chráněných oblastech jsou pro koncentraci radionuklidů příznivější podmínky. Některé skupiny radionuklidů se v důsledku obdobných chemických vlastností prvků chovají v životním prostředí podobně.

Radionuklidy uvolněné do životního prostředí se rozptylují vlivem proudění a difúze. V důsledku toho klesá koncentrace radionuklidů se vzdáleností od zdroje. Kromě rozptylování, působí na uvolněný radioaktivní materiál v životním prostředí usazování, které způsobuje jednak gravitační usazování (pro částičky větší než 20 μ m), jednak chemické sorpce a srážky. Kdyby došlo v jednom místě biosféry k současnému uvolnění několika radionuklidů, bude jejich prostorová a časová distribuce různá, v závislosti na vlastnostech těchto radionuklidů. Koncentrace každého radionuklidu v životním prostředí je dána relativními rychlostmi jeho příjmu a ztrát a ty závisí na fyzikálně – chemických vlastnostech radionuklidu. Snadno rozpustné radionuklidy jsou v ekosystému transportovány rychleji a doba jejich pobytu je přímo závislá na fyzikálním a biologickém poločasu jejich přeměny.

Obecně lze říci, že příjem radionuklidu do daného ekologického systému se zvyšuje s vyšším zastoupením radionuklidů v materiálu, se zvětšující se rozpustností, s chemickou a radiologickou aktivitou a se zmenšující se velikostí částic.

Radionuklidy ^{222}Rn (radon) a ^{220}Rn (thoron) patří k hlavním zdrojům přírodní radioaktivity, a to jak atmosféry, tak i vody. Ve vnější atmosféře vykazují oba radionuklidy vertikální profil koncentrace s maximem u zemského povrchu, odkud jejich koncentrace klesá k neměřitelně nízkým hodnotám až ve stratosféře. Na rozdíl od radonu jsou jeho dceřiné produkty chemicky mnohem aktivnější a zachycují se na prachové částice ve vzduchu,

přičemž většina aktivity se váže na částice o průměru menším než $0,35 \mu\text{m}$. V závislosti na velikosti částic může se vdechovaný prach ukládat buď v bronchiálním epitelu nebo v alveolární tkáni. Větší částice mají tendenci ukládat se v bronchiálním epitelu horní části plic, odkud jsou odstraňovány pohybem řasinek řádově během hodin. Prachové částice uložené v alveolární tkáni jsou dostatečně malé a zůstávají v plicích déle. Dojde-li k inhalaci vzduchu obsahujícího dceřiné produkty radonu, dochází, vzhledem k jejich krátkému poločasu přeměny, velmi pravděpodobně k jejich přeměně uvnitř plicní nebo bronchiální tkáně dříve, než mohou být odtud vydechnuty, nebo jinak odstraněny. Nejvýznamnější radionuklidy (z hlediska velikosti dávky) předanými plicní nebo bronchiální tkáni jsou dceřiné produkty radonu t.j. ^{218}Po , ^{214}Pb a ^{214}Po , které se přeměňují dále emisí částic α a β . Celková ztráta energie v plicích od těchto dceřiných produktů je asi 500 krát větší než ztráta energie od radonu samotného.

Thoron / ^{220}Rn / je plynný člen thoriové řady, který pod vlivem podstatně kratšího poločasu přeměny ve srovnání s radonem proniká do atmosféry méně významně než radon a jeho dosah nad zemským povrchem činí jen několik desítek metrů. Průměrný obsah thoronu v atmosféře je asi o řád nižší než obsah radonu. Thoron a jeho dceřiné produkty nepřispívají významně k ozáření plic a bronchiální tkáně.

Mezi nejdůležitější nekovy z hlediska radioaktivity v životním prostředí patří vodík a uhlík. Globálně nejrovnoměrněji rozšířeným radionuklidem z této skupiny je tritium ^3H (12,26r). Tritium vzniká v plynné formě, brzy oxiduje a tvoří tritiovou vodu $^1\text{H}^3\text{HO}$. V této podobě proniká do řek a oceánů a v atmosféře je obvykle přítomno ve formě vodní páry. Tritium zachovává metabolismus vody a jeho kritickým orgánem u člověka jsou měkké tkáně. K migraci ^3H dochází v důsledku větru, vypařování, molekulové výměny, gravitačního proudění a srážek, které jsou v troposféře převládajícím mechanismem. Tritium se ze stratosféry dostává do troposféry a odtud se srážkami a koloběhem vody dostává až do podzemních rezervoárů, případně velkých hloubek oceánů. Přechod tritia z troposféry do rostlin je poměrně komplikovaný. Přibližně platí, že koncentrace tritia ve

vegetaci je rovna koncentraci $^3\text{H}^3\text{HO}$ v troposféře. Tritiová voda je výborným radioaktivním indikátorem pro H_2O . Normální koncentrace v životním prostředí je přibližně 10^{18} atomů ^1H na několik atomů ^3H .

Vzhledem k tomu, že ^3H je radionuklid vodíku, jsou chemické vlastnosti tritiové vody v podstatě stejné jako u vody obyčejné. Následkem toho je tritium, vpravené do organismu ingescí, rozšířeno ve všech tekutinách těla. Totéž platí pochopitelně i o tělech živočichů a o rostlinách. Kromě ingesce se dostává do organismu také inhalací, případně i pokožkou.

Dalším významným radionuklidem ze skupiny nekovů je radionuklid ^{14}C , který podobně jako ^3H představuje radionuklid vnitřní kontaminace. Jeho poločas přeměny je 5568 let.

Vzniklý ^{14}C je převážně vždy přítomen jako CO_2 . Z troposféry se dostává do rezervoárů, především do oceánů (82%) a do ostatních složek životního prostředí (18%). Hlavním migračním mechanismem jsou výměnné procesy, přičemž průměrná střední doba pobytu ^{14}C v atmosféře je asi 7 roků. Zelené rostliny absorbují oxid uhličitý z atmosféry a proto koncentrace ^{14}C v nich závisí na koncentraci ^{14}C v obklopující atmosféře a na době vegetační aktivity rostlin. Během fotosyntézy produkují rostliny cukry a škroby, které vždy obsahují jisté množství radioaktivního ^{14}C ; ten pak s potravou přichází do lidského organismu, kde je přítomen ve všech sloučeninách obsahujících uhlík – v proteinech, uhlovodících, tucích, enzimech i nukleových kyselinách, tedy v celém těle.

Vzhledem k tomu, že celkové množství uhlíku v těle je přibližně konstantní (asi 12,6 kg u člověka vážícího 70 kg) je množství akumulovaného ^{14}C do jisté míry po dobu života v rovnováze s jeho hmotností. Výše uvedených skutečností se využívá ke zjištění stáří odumřelých organismů.

Dalším radionuklidem důležitým pro životní prostředí je ^{40}K . Draslík je významný biogenní prvek, jehož radionuklid ^{40}K je významným zdrojem přirozené vnitřní kontaminace člověka a v menší míře také zdrojem vnějšího ozáření. Měrná aktivita ^{40}K v přírodě se pohybuje kolem $30 \text{ kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$. Draslík se do organismu dostává potravinovým řetězcem. Tělo člověka vážícího 70

kg obsahuje asi 140 g draslíku, přičemž většina je uložena ve svazech. Celková aktivita ^{40}K v lidském těle činí zhruba 3,7 kBq a v krvi člověka je jeho aktivita odhadována v rozmezí 6 až 13 Bq.l⁻¹. Vzhledem k velkému rozšíření draslíku v živé přírodě je ^{40}K hlavní radioaktivní složkou potravy i lidských tkání [4].

Radionuklidy rádia představují jedny z nejdůležitějších přirozeně se vyskytujících radionuklidů, jmenovitě pak ^{226}Ra a ^{228}Ra . Při přeměně ^{226}Ra uloženého v kostech se uvolňuje ^{222}Rn , z něhož difunduje asi 67% do krve a je z ní vylučováno. Oba radionuklidy se snadno pohybují v životním prostředí a pro chemickou podobnost s vápníkem se rovněž ukládají v kostech, odkud se jen velmi pomalu uvolňují, takže chronický příjem může vést ke značné koncentraci rádia v kostech. K vnitřnímu ozáření přispívají především krátkodobé dceřiné produkty obou radionuklidů. Do rostlin se dostává rádiu kořenovým systémem a rychlost jeho příjmu je o něco nižší než v případě stroncia nebo vápníku. Do lidského organismu se rádiu dostává především s potravou a s pitnou vodou [10].

1.6 Radioaktivní rovnováha

Název „radioaktivní rovnováha“ je všeobecně používán, i když podstata tohoto pojmu je zcela jiná než u chemické rovnováhy. Není to rovnováha v termodynamickém slova smyslu a není také reverzibilní, tj. dosažitelná z obou stran. Vyjadřuje pouze skutečnost kinetické povahy, že dochází k určitému stacionárnímu stavu v tom smyslu, že určité veličiny, které charakterizují složky soustavy, resp. jejich poměry, se stávají konstantními, na čase nezávislými.

Radioaktivní přeměna radionuklidu může být jednoduchá, kdy dochází pouze k úbytku počtu atomů s časem, nebo složitá, kdy dochází jednak k přeměně mateřského radionuklidu v dceřiný, jednak dále k přeměně vzniklého dceřiného radionuklidu v nuklidy další. První případ je charakterizován dobře známým přeměnovým zákonem, který udává počet nuklidů $N(t)$ v čase t v závislosti na počtu nuklidů $N(0)$ na počátku přeměny.

$$N(t) = N(0) \cdot e^{-\lambda t}, \quad (1.1)$$

kde $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$ je tzv. přeměnová konstanta daného radionuklidu a $T_{1/2}$ je poločas jeho přeměny.

V poněkud složitějším případě, kdy se přeměňuje mateřský nuklid s konstantou λ_1 a dceřiný s konstantou λ_2 , dostaneme pro počet dceřiných atomů v čase t vztah

$$\lambda_1$$

$$N_2(t) = N_{1(0)} \frac{e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 - \lambda_1}, \quad (1.2)$$

kde $N_1(0)$ je počet mateřských atomů v čase $t=0$. Tento vztah platí obecně, avšak za předpokladu, že počet dceřiných atomů v čase $t=0$ byl nulový.

V závislosti na vzájemných velikostech přeměnových konstant mohou vzniknout tři zvláštní případy:

Je-li $\lambda_1 \ll \lambda_2$ (má-li mateřský atom značný poločas přeměny), pak ve vztahu bude $e^{-\lambda_1 t} \sim 1$, $(\lambda_2 - \lambda_1) \sim \lambda_2$ a tudíž

$$N_2(t) = N_{1(0)} \frac{\lambda_1}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 t}), \quad (1.3)$$

V rovnovážném stavu (tj. pro $t > 10T_{1/2}$) je množství dceřiných atomů dáno

$$N_2(t) = N_{1(0)} \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \quad (1.4)$$

Typickým příkladem tohoto případu je vznik dceřiného ^{222}Rn z mateřského radionuklidu ^{226}Ra .

Je-li $\lambda_1 < \lambda_2$, pak pro dostatečně dlouhou dobu t bude $e^{-\lambda_2 t}$ zanedbatelné ve srovnání s $e^{-\lambda_1 t}$ a

$$N_2(t) = N_{1(0)} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot e^{-\lambda_1 t} = N_{1(t)} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (1.5)$$

Z výrazu 1.5 je zřejmé, že za dostatečně dlouhou dobu dojde k vytvoření pseudorovnováhy, kdy se oba druhy atomů přeměňují s přeměnovou konstantou mateřského nuklidu.

V případě, kdy $\lambda_1 > \lambda_2$, vzrůstá množství dceřiných radionuklidů nejprve do maxima a potom se přeměňuje podle své vlastní přeměnové konstanty. Za dostatečně dlouhou dobu platí:

$$N_{2(t)} = - N_{1(0)} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t} \quad (1.6)$$

Tento případ lze charakterizovat přeměnou ^{218}Po na ^{214}Pb [11].

1.7 Fyzikálně – chemické vlastnosti radonu

Radon je nejtěžším homologem skupiny vzácných plynů a všechny tři jeho přirozené izotopy / ^{222}Rn , ^{220}Rn a ^{219}Rn / jsou radioaktivní a jsou členy tří přirozených přeměnových řad. Vzhledem k výskytu v přírodě je nejdůležitějším izotopem radonu ^{222}Rn . Například v ovzduší je jeho koncentrace přibližně 10x vyšší ve srovnání s ^{220}Rn , zatímco ^{219}Rn je možné ve vzduchu detekovat obtížně vzhledem k jeho krátkému poločasu přeměny a nízkému výskytu ^{235}U , který je mateřským nuklidem aktiniové řady [12–16].

Ve vodě je radon poměrně málo rozpustný, koeficient rozpustnosti při 18°C je 0,29 [12,13], jeho rozpustnost ve vodě klesá s rostoucí teplotou a koncentrací rozpuštěných solí. V organických rozpouštědlech je značně rozpustnější, nejlépe se rozpouští v sirouhlíku (23,1), hexanu (16,6), chloroformu (15,1) a toluenu (13,2) (koeficienty rozpustnosti při 18°C). Radon má bod varu $-61,8^\circ\text{C}$ a bod tání -71°C [12–14]. Při přechovávání plynného radonu je třeba mít na zřeteli, že difunduje přes pryž, polymery a k jeho dalším ztrátám může dojít také adsorpcí na skle. Radon se také snadno adsorbuje ze vzduchu na aktivní uhlí a silikagel, zvláště při snížené teplotě, což je využíváno při jeho izolaci ze vzduchu a měření.

Z roztoku může být radon odstraněn snadno povařením, rozprášením roztoku nebo při probublání vzduchem, případně jiným vhodným plynem. Přímá separace radonu z pevných látek je obtížná, exhalační schopnost je obvykle velmi nízká. Pokud jsou analyzované látky rozpustné, oddělí se radon nejlépe až po jejich rozpuštění. Jinak lze deexhalovat radon z roztaveného vzorku při teplotách až 2000 °C. Při tavení se používají obvykle tavící přísady, tavení se provádí v proudu dusíku nebo v uzavřené aparatuře.

K izolaci radonu ze vzduchu nebo jiných plynů se používají dva způsoby. Radon může být adsorbován na aktivním uhlí [12,17,18] a na silikagelu [19] nebo může být vymražen při teplotě kapalného vzduchu / -190°C /, případně kapalného dusíku / -196°C / [12,20,21]. Účinnost zachytu radonu na aktivním uhlí roste s poklesem teploty [9]; např. Lucas koncentroval radon na aktivním uhlí podchlazením na teplotu suchého ledu (CO_2) [13].

Darral a kol. [19] separoval radon z proudu dusíku na sloupci silikagelu chlazeném parami kapalného dusíku. K vymražení radonu z proudu vzduchu použil Kobal [20] skleněnou spirálu o délce 3 metry s vnitřním průměrem 5 mm, naplněnou skleněnými kuličkami. Spirála byla ponořena do kapalného dusíku. Kvantitativního vymražení radonu bylo dosahováno do průtoku vzduchu 5 litrů za minutu. Účinnost separace radonu z proudu vzduchu a jiných plynů je pro všechny uvedené způsoby závislá nejen na teplotě, ale také na průtoku plynu, velikosti náplně, geometrickém uspořádání atd. Proto je třeba pro používané experimentální uspořádání zkontrolovat výtěžek separace zařazením několika separačních jednotek do proudu analyzovaného plynu.

K úplné desorpci radonu z aktivního uhlí nebo silikagelu dochází až při zvýšené teplotě. V případě aktivního uhlí je potřeba teplota 350 – 500°C, zatímco v případě silikagelu stačí teplota 100°C [12]. Při stanovení radonu pomocí kapalných scintilátorů nemusí být radon ze silikagelu desorbován, po krátkodobém ohřátí sloupce silikagelu na 0°C může být silikagel i s radonem převeden beze ztrát přímo do měřicí nádoby s kapalným scintilátorem [19].

K oddělení radonu z vymrazovací aparatury stačí pokojová teplota, při které může být plynný radon vypláchnut proudem vhodného plynu přímo do detekční jednotky [20,21].

Při izolaci radonu ze vzduchu a dalších plynů je třeba předem odstranit některé nečistoty jako vlhkost, oxid uhličitý, chlorovodík, sirovodík atd., které mohou nepříznivě ovlivňovat nejen vlastní koncentrování radonu uvedenými způsoby, ale mohou také rušit při vlastním měření radioaktivity radonu a jeho dceřiných produktů [12]. Vodní pára může být z proudu vzduchu odstraněna chemickými vysoušedly, jako je P_2O_5 , $Mg(ClO_4)_2$ aj., nebo může být vymražena pomocí lázně ze suchého ledu a ethylalkoholu. Oxid uhličitý a další kyselé plyny se odstraní ze vzduchu při průchodu přes sloupec pevného KOH, NaOH. Sirovodík stržený do proudu dusíku spolu s radonem při analýzách minerálních vod je odstraňován z proudu plynu probubláním přes 10% roztok chloridu barnatého ve vodě.

1.8 Vybrané metody stanovení radonu ^{222}Rn

Stanovení ^{222}Rn je založeno na tom, že je to plyn, který při radioaktivní přeměně emituje záření alfa, přičemž se přeměňuje na krátkodobé dceřiné produkty, se kterými je po 3 – 4 hodinách v radioaktivní rovnováze [13]. Jeho krátkodobé dceřiné produkty ^{218}Po (RaA), ^{214}Po (RaC´)

jsou zářiče alfa , na rozdíl od ^{214}Pb (RaB) a ^{214}Bi (RaC) , které emitují záření beta a gama. Radiometrické stanovení ^{222}Rn se tedy provádí pomocí detekce záření alfa ^{222}Rn a jeho dceřiných produktů ^{218}Po , ^{214}Po . Nejčastěji se měří záření alfa ^{222}Rn v rovnováze s jeho krátkodobými dceřinými produkty, při druhém nepřímém způsobu se měří pouze záření alfa dceřiných produktů ^{218}Po , ^{214}Po , které jsou v rovnováze s ^{222}Rn . Stanovení ^{222}Rn pomocí měření záření beta nebo gama dceřiných produktů ^{214}Pb a ^{214}Bi se provádí jen zřídka. Stanovení ^{222}Rn může být ovlivňováno případnou přítomností zbývajících dvou izotopů radonu ^{220}Rn a ^{219}Rn , které se však do desíti minut přemění (poločas přeměny thoronu a aktinonu je 55,3 s resp. 3,92 s). Po této době mohou ještě při měření alfa nebo beta aktivity rušit přeměnové produkty thoronu a aktinonu, ale jejich aktivita je vzhledem k delšímu poločasu menší než 0,2% původní aktivity ^{220}Rn a ^{219}Rn [12].

Vzhledem k tomu, že radon je plyn, jsou pro detekci a stanovení ^{222}Rn zvláště vhodné vnitřní plynové detektory , mezi které patří ionizační komory, impulsní komory [22], proporcionální [23] nebo koronové [24] počítače a scintilační detektory [17,25–29]. Praktické použití vnitřních plynových detektorů je omezené v případech, kdy vlastní plynovou náplň tvoří speciální plyny (např. argon, methan, hélium, dusík) nebo jejich směsi, na jejichž čistotu jsou obvykle kladeny zvláštní požadavky. Ionizační komory nejsou zvláště citlivé na složení plynové náplně, kterou může být i vzduch. Největší potíže při měření ^{222}Rn pomocí ionizačních komor způsobují vodní páry, které musí být dokonale odstraněny, protože způsobují změnu vodivosti. Ionizační komory mohou mít objem až několik dm^3 a mohou být konstruovány ve dvojicích, aby bylo možné kompenzovat pozadí. Při měření se může plyný vzorek s ^{222}Rn převést celý do ionizační komory; jestliže komora není dostatečně velká nebo nelze převést ^{222}Rn kvantitativně do ionizační komory, je možné použít tzv. cirkulační metodu [13]. Od stanovení ^{222}Rn pomocí ionizačních komor opatřených citlivým elektrometrem se v poslední době upouští, protože se používají jednodušší, stabilnější a dostatečně citlivé systémy, založené na detekci jednotlivých impulsů.

Proporcionální a koronové detektory nebo impulsní komory registrující jednotlivé impulsy jsou zpravidla uzavřené kovové válce o objemu až několika dm^3 , naplněné speciálními plyny. Různé nečistoty, jako je vzduch, kyslík a vodní páry mohou značně ovlivňovat účinnost detekce [12].

V tomto směru jsou nejvýhodnější scintilační detektory [17,25–29]. Scintilační detektory Lucasova typu se ZnS (Ag) jsou obvykle tvaru válce o objemu 100 – 200 cm³, opatřené v horní části jedním nebo dvěma otvory s kohouty nebo pryžovými uzávěry, ve spodní části mají průhledné okénko ze skla nebo křemene, přes které jsou holým fotonásobičem registrovány jednotlivé impulsy. Pro dosažení reprodukovatelných výsledků doporučuje Lucas [17] , aby vnitřní povrch okénka byl vodivý. Při měření jsou tyto scintilační detektory umístěny ve světlotěsném krytu. Scintilační komůrky mohou být zhotoveny ze skla různého typu [17,25–29], plastické hmoty [28] nebo kovového materiálu [14,28]. Použitý materiál ovlivňuje především pozadí zhotovených komůrek [24,25], nejnižší četnost impulsů pozadí udává Lucas [17] pro komůrky vyrobené ze skla Kovar (0,0015 s⁻¹), pro běžné měření však postačují komůrky s pozadím 10x vyšším [25,26]. Vnitřní stěny komůrky s výjimkou okénka jsou pokryty vrstvou ZnS (Ag) . Lucas zjistil, že pozadí komůrek klesá s plošnou hmotností ZnS (Ag) naneseného na stěnách , a doporučuje nanést až 20 mg ZnS (Ag) na cm² vnitřního povrchu. Často se však používají komůrky s menší plošnou hmotností ZnS (Ag) [26,27]. Celková účinnost detekce ²²²Rn v rovnováze s krátkodobými dceřinými produkty je obvykle 0,75 – 0,85 [17,25–29].

Ke stanovení ²²²Rn mohou být také použity kapalně scintilátory různého typu [19, 30,31]. Při tomto způsobu stanovení ²²²Rn je možné detekovat záření alfa i beta ²²²Rn a jeho krátkodobých dceřiných produktů téměř se 100% účinností [31], což zvyšuje citlivost stanovení. Při měření je ²²²Rn rozpuštěn přímo v kapalném scintilátoru uzavřeném v měřicí lahvičce. Použití kapalinových scintilačních spektrometrů pro stanovení nízkých koncentrací ²²²Rn bylo dříve omezeno vyšším pozadím. V poslední době bylo dosaženo značného pokroku jak v konstrukci, tak i v technice měření pomocí těchto přístrojů , a proto byly popsány některé postupy stanovení ²²²Rn pomocí kapalných scintilátorů. Uvedené postupy využívají dobré rozpustnosti radonu v organických rozpouštědlech, které tvoří základ kapalných scintilátorů. Darral a kol. [19] koncentroval ²²²Rn z proudu dusíku na 3 g silikagelu chlazeném parami kapalného dusíku. Silikagel se zachyceným radonem krátce ohřál na 0°C a přesypal do měřicí lahvičky o objemu 20 cm³, obsahující 17 cm³ roztoku kapalného scintilátoru s toluenem. Měření prováděl po ustanovení rovnováhy mezi ²²²Rn a jeho dceřinými produkty. Při integrálním měření dosáhl účinnosti detekce asi 70%. Lepší citlivost stanovení

dosáhl při diskriminaci měřených impulsů. Při optimální diskriminaci byla nejmenší detekovatelná aktivita ^{222}Rn asi $3,7 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. K převedení radonu do kapalného scintilátoru použil Homme, Murakami [30] a Parks, Tsuboi [31] modifikace tzv. cirkulačních metod používaných při měření ^{222}Rn pomocí ionizačních komor [13]. Homme a Murakami [30] koncentrovali ^{222}Rn přímo v toluenovém scintilátoru při teplotě kapalného dusíku tak, že ^{222}Rn byl z analyzovaného roztoku vyublán proudem vzduchu, který při průtoku $200 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ cirkuloval po dobu 1 hodiny přes nádobku s kapalným scintilátorem o objemu 22 cm^3 . Autoři udávají že účinnost detekce záření alfa a beta ^{222}Rn a jeho rovnovážných dceřiných produktů byla téměř 100% a výtěžek separace radonu byl 78%. Parks a Tsuboi [31] používali scintilační roztok Insta-gel o objemu 18 cm^3 , přes který cirkulačně probublávali 20 cm^3 plynu s radonem, jenž deexhalovali z roztoku o objemu 1 dm^3 . Tímto způsobem byli schopni detekovat $37 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ^{222}Rn . Předpokládají, že při použití tvarové diskriminace měřených impulsů a toluenovém scintilátoru lze zvýšit citlivost stanovení až desetkrát.

Nepřímé stanovení ^{222}Rn , založené na měření jeho přeměnových produktů, je možné provést několika způsoby, přičemž lze detekovat záření alfa ^{218}Po , ^{214}Po nebo záření beta a gama ^{214}Bi , ^{214}Pb . Detekce záření beta dceřiných produktů ^{222}Rn se s výjimkou kapalných scintilátorů nepoužívá, protože je nepraktické připravovat pro tento způsob měření preparát, ve kterém je ^{214}Bi a ^{214}Pb v radioaktivní rovnováze s ^{222}Rn . Měření odděleného ^{214}Bi a ^{214}Pb je zase nevýhodné vzhledem k jejich krátkému poločasu přeměny. Stanovení ^{222}Rn pomocí gama – spektrometrického měření jeho přeměnových produktů se používá omezeně. Tento způsob měření se používá hlavně při nedestruktivním stanovení ^{226}Ra v pevných vzorcích životního prostředí [32]. Za zmínku v této souvislosti stojí Terningova metoda [33], který stanovoval ^{222}Rn pomocí integrálního měření záření gama jeho rovnovážných dceřiných produktů po extrakci ^{222}Rn z vodných roztoků do hexanu nebo toluenu.

Nejčastěji používané nepřímé metody stanovení ^{222}Rn jsou založeny na detekci záření alfa ^{218}Po a ^{214}Po . Využívají toho, že ionty těchto radionuklidů mají kladný náboj a mohou být koncentrovány při elektrodepozici na záporně nabitě elektrodě [12,34–37], jejíž celková aktivita se měří buď pomocí scintilátoru ZnS (Ag), nebo polovodičového křemíkového detektoru. Tento

nepřímý způsob detekce ^{222}Rn je využíván při konstrukci monitorů obsahu ^{222}Rn ve vzduchu [38–39] a ^{226}Ra ve vodě [40]. Druhý způsob detekce záření alfa ^{218}Po a ^{214}Po je založen na tom, že tyto přeměnové produkty ^{222}Rn jsou ve vzduchu vázány na drobné prachové částice, které se mohou oddělit filtrací přes vhodný filtr, jehož aktivita alfa se potom měří vhodným způsobem. Stanovení ^{222}Rn ve vzduchu tímto způsobem není příliš přesné [12], protože nemusí být ustavena rovnováha mezi ^{222}Rn a jeho dceřinými produkty, které navíc nemusí být zcela zachyceny na pevných částech obsažených ve vzduchu. Tohoto způsobu separace ^{218}Po a ^{214}Po s jejich následným měřením pomocí křemíkového bariérového detektoru bylo použito při konstrukci osobního dozimetru pracovníků v uranových dolech [41].

Z ostatních metod se ještě zmíníme o stopových dozimetrech (stopové dozimetry pevné fáze) a elektretech. Obě výše uvedené metody jsou využívány při integrální dozimetrii radonu. Stopové dozimetry doznaly v posledních dvaceti letech v jaderné fyzice a dozimetrii velkého rozmachu [42]. Jedná se o princip blízký známým nukleárním emulzím, kdy po vhodném naleptání se na povrchu plastického materiálu objeví místo vstupu částice α podobné malému kráteru. Plošná hustota nalezených kráterů je přímo úměrná objemové koncentraci dceřiných produktů radonu [43]. Pro tuto aplikaci mají stopové dozimetry takřka nejvhodnější vlastnosti také vzhledem ke skutečnosti, že jsou necitlivé na fotony a fading odezvy je zanedbatelný. Protože jde o registraci částic alfa, používá se nejčastěji nitrátů celulózy. Ty jsou schopny registrovat částice alfa v energetickém rozmezí asi od 80 keV do 5 MeV (podle druhu a způsobu výroby) s maximem účinnosti kolem 0,5 MeV. Proto je zapotřebí snížit vstupní energii částic alfa z ^{214}Po a ^{210}Po absorpcí ve vzduchu nebo jiném materiálu, např. organické fólii. Při vhodné volbě podmínek absorpce lze od sebe částice alfa obou radionuklidů i rozlišit, protože ^{214}Po má hlavní energetickou linii 7,68 MeV, zatímco ^{210}Po jen 5,30 MeV. Kromě nitrátů celulózy lze použít i acetáty celulózy, acetobutyryát celulózy, propionát celulózy a některé polykarbonáty, ovšem s tím, že citlivost těchto detektorů je nižší.

Dozimetrický systém na tomto principu byl vyvinut i v ČR ve spolupráci tehdejších Ústavu pro výzkum, výrobu a využití radioizotopů a Ústavu hygieny práce UP. Pracuje na principu hromadění krátkodobých dceřiných produktů radonu na filtru během prosávání atmosféry a jejich detekci pomocí

barevné fólie nitrátu celulózy (Kodak LR-115). V oblasti hustoty stop $5 \cdot 10^3 - 5 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$ je vyhodnocování automatizováno, měří se změny optické hustoty v komplementárním světle. Systém je určen pro dozimetrickou kontrolu horníků v uranových dolech [44] a v poslední době se využívá také pro proměňování koncentrace sumární energie částic alfa přítomných v obytných prostorech [45].

O uplatnění elektretů v dozimetrii ionizujícího záření byly dlouholeté snahy. Zatím nejúspěšnější aplikací je právě stanovení radonu. V tomto případě totiž elektret vystupuje ve dvojí úloze [46]. Jednak jako zdroj vysokého napětí ionizační komory, jednak jako detektor ionizačního proudu. Radonem uvolňované částice alfa ionizují atmosféru komůrky, díky potenciálu elektretu se vytvoří ionizační proud a ten úměrně své velikosti sníží původní náboj elektretu. Změna potenciálu je opět přímo úměrná objemové koncentraci radonu. V závislosti na uspořádání komůrky lze měřit jak radon tak i jeho přeměnové produkty. Při opětovném měření se vyhodnocuje difference napětí před a po expozici, a to tak dlouho, až náboj poklesne natolik, že se musí opětovným formováním obnovit [43].

Na základě uvedeného přehledu je možné uvést podrobněji některé doporučené metodiky stanovení ^{222}Rn v plynech, kapalinách a popř. v pevných látkách.

Nejčastějším stanovením ^{222}Rn v plynech je stanovení ve vzduchu. Pokud se provádí stanovení ^{222}Rn v ovzduší uranových dolů, podzemních jeskyní, sklepních nebo málo větraných místnostech, kde lze předpokládat vyšší koncentrace radonu, je možné stanovit ^{222}Rn tak, že měřený vzduch napustíme přímo do vyvakuovaného scintilačního detektoru (ionizační komory). Pokud je prostředí prašné nebo naopak s vysokou vzdušnou vlhkostí je nutné měřený vzduch přefiltrovat resp. vysušit.

Při stanovení ^{222}Rn v kapalinách přichází nejčastěji v úvahu stanovení ^{222}Rn ve vodě. Pokud by se jednalo o jiné kapaliny, je možno postupovat obdobně za předpokladu, že páry analyzované kapaliny negativně neovlivňují detekci záření alfa ve scintilačním detektoru. V opačném případě je třeba páry rozpouštědla z nosného plynu odstranit. Scintilační stanovení ^{222}Rn ve

vodách je založeno na tom, že radon může být z roztoku vyublán vhodným plynem (vzduchem, dusíkem, argonem), případně extrahován do vhodného rozpouštědla. Při deexhalaci stačí, aby objem plynu byl minimálně 4x větší než objem analyzovaného vzorku vody. Jak již bylo řečeno, ^{222}Rn může být přítomen ve vodných roztocích v širokém rozmezí koncentrací. Ke stanovení obvyklých a vyšších koncentrací ^{222}Rn ve vodě se používá speciální deemanační nádobka o celkovém objemu 25 cm^3 analyzovaného roztoku, opatřená ve spodní části jemnou fritou a přívodem plynu. Upravená deemanační nádobka se používá dosud nejen při stanovení ^{222}Rn , ale hlavně při emanometrickém stanovení ^{226}Ra . Radon se z uvedené deemanační nádoby převádí kvantitativně pomocí vzduchu do scintilačního detektoru o objemu 125 cm^3 , ve kterém je detekováno záření alfa ^{222}Rn a jeho dceřiných produktů. Odběr analyzovaného vzorku vody vyžaduje zvláštní pozornost, aby v jeho průběhu nedocházelo k deexhalaci radonu.

Stanovení ^{222}Rn v pevných látkách není obvyklé, vzhledem ke krátkému poločasu ^{222}Rn , jehož obsah v pevných látkách je zpravidla způsoben přítomností jeho mateřského radionuklidu ^{226}Ra v těchto materiálech. V poslední době se spíše věnuje pozornost stanovení exhalační rychlosti ^{222}Rn (radonové výdejnosti) hlavně ze stavebních materiálů [47–48]. Exhalační schopnost radonu z pevných látek je až na určité výjimky menší než 10% [12] a proto obsah ^{222}Rn v těchto látkách přibližně odpovídá obsahu ^{226}Ra , se kterým je ^{222}Rn v radioaktivní rovnováze. Ke stanovení ^{222}Rn v nejrůznějších typech pevných látek jsou nejvýhodnější nedestruktivní gama – spektrometrické metody, založené na detekci záření gama dceřiných produktů ^{222}Rn .

1.9 Účinky radonu a jeho dceřiných produktů na lidský organismus

V posledních letech, v období od prvního doporučení ICRP z roku 1959 [49], bylo vytvořeno několik modelů k určení distribuce dávky v plicích [50–55]. Všechny tyto modely se zřetelem na koncepci kritických orgánů se v hlavní míře zabývaly určením maximální dávky ve vrstvě bazálních buněk v bronchiálním epitelu, jež jsou pokládány za buňky kritické. V novém doporučení ICRP z roku 1977 [56] se upouští od staré koncepce kritického orgánu, jež zanedbává dávky a účinky v jiných, nekritických tkáních. Nová koncepce je založena na předpokladu bezprahové úměrnosti mezi dávkou a

účinkem. Měřítkem rizika poškození terčové tkáně již není doposud používaná hodnota maximální dávky, ale hodnota střední dávky středovaná přes všechny buňky stejné senzitivity. Zavádí se nová veličina, efektivní dávka, resp. efektivní dávkový ekvivalent definovaný vztahem:

$$H_E = \sum_T W_T \cdot H_T \quad (1.7)$$

$$\sum_T W_T = 1 \quad (1.8)$$

Efektivní dávkový ekvivalent je v podstatě váženou střední hodnotou dávkových ekvivalentů H_T v tkáních a orgánech lidského těla. W_T jsou normalizované hmotnostní faktory, které jsou úměrné rizikovému faktoru či radiosenzitivitě tkáně. Výše zmíněné koncepce jsou zakotveny v publikovaném doporučení ICRP o interní dozimetrii a limitech příjmu radioaktivních látek do těla [57]. Problematikou limitů pro pracovníky přicházející do styku s radonem a jeho dceřinými produkty se zabývá zvláštní doporučení ICRP 32 z roku 1981 [58].

Monitorování radonu a jeho produktů přeměny se ve většině případů omezuje na měření aktivity nebo latentní energie záření alfa bez ohledu na fyzikální stav inhalovaných radioaktivních atomů. Dceřiné produkty jsou při svém vzniku elektricky nabitě a mají tendenci přichytit se k částicám prachu přítomným v atmosféře. Některé z nich, speciálně atomy ^{218}Po (RaA), jsou však ve větší míře inhalovány ve formě volných atomů, pro které je mechanismus depozice v plicích trochu odlišný než v případě aerosolu. V prostředí s koncentrací částic prachu vyšší než 10^4 cm^{-3} je podíl volných atomů RaA menší než 10%, avšak v prostředí s nízkým obsahem prachových částic může dosáhnout i 30–50% [59].

Při stanovení efektivního dávkového ekvivalentu a profesionálních limitů příjmu a expozice dceřiných produktů radonu lze postupovat v zásadě dvěma způsoby: epidemiologicky nebo dozimetricky. Epidemiologický

přístup je založen na konkrétních údajích o výskytu plicní rakoviny u početného souboru horníků, zvláště z uranových dolů v bývalé ČSSR a Colorado v USA. Blíže se o tomto přístupu zmiňují např. [60–62].

Dozimetrický přístup, založený na dozimetrických modelech Jacobiho–Eisfelda a Jamesa–Birchalla [63,64], předpokládá lineární vztah

$$H_E = h_E \cdot E_1$$

(1.9)

mezi efektivním dávkovým ekvivalentem H_E s inhalovanou latentní energií alfa záření E_1 a konverzním faktorem h_E . Podle doporučení ICRP činí roční přípustný efektivní dávkový ekvivalent pracovníku se zářením:

$$H_{E,limit} = 0,05 \text{ Sv}$$

(1.10)

Z tohoto omezení plyne hodnota ročního limitu příjmu radonu

$$E_{1,limit} = H_{E,limit} / h_E$$

(1.11)

Pro dceřiné produkty ^{222}Rn a ^{220}Rn se hodnota h_E liší podle typu radionuklidu [65]:

$$h_E \text{ (vázané } ^{218}\text{Po)} \approx 1,3 \text{ Sv / J}$$

$$h_E \text{ (volné } ^{218}\text{Po)} \approx 12 \text{ Sv / J}$$

$$h_E \text{ (vázané } ^{214}\text{Pb)} \approx 1,5 \text{ Sv / J}$$

$$h_E \text{ (vázané } ^{214}\text{Bi)} \approx 1,4 \text{ Sv / J}$$

$$h_E \text{ (volné } ^{216}\text{Po)} \approx 20 \text{ Sv / J}$$

$$h_E \text{ (vázané } ^{212}\text{Pb)} \approx 0,6 \text{ Sv / J}$$

$$h_E \text{ (vázané } ^{212}\text{Bi)} \approx 0,9 \text{ Sv / J}$$

Z uvedených vztahů vyplývá, že příkon efektivního dávkového ekvivalentu od směsi dceřiných produktů ^{222}Rn odpovídající rovnovážnému ekvivalentu objemové aktivity $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ je roven $0,7-1,7\cdot 10^{-8} \text{ Sv}\cdot\text{hod}^{-1}$. To je až 100 krát vyšší hodnota než v případě inhalace radonu samotného ($\approx 1,7\cdot 10^{-10} \text{ Sv}\cdot\text{hod}^{-1}$ na $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$).

Radon jako inertní plyn není chemicky vázán ve tkáni. Aktivita radonu v lidském těle závisí na jeho rozpustnosti v tuku, jež je úměrná koncentraci radonu v okolním ovzduší. Kromě radonu obsaženého přímo ve tkáni je nutné počítat i s izotopy radonu obsaženými ve vzduchu plic. Ze středních hodnot měrných aktivit ^{222}Rn a ^{220}Rn ve tkáních lidského těla, z hodnot jejich efektivních energií [57] a z doporučených váhových faktorů je možné stanovit hodnoty příkonu efektivního dávkového ekvivalentu. Pro ^{222}Rn $H_E \approx 1,7\cdot 10^{-10} \text{ Sv}\cdot\text{hod}^{-1}$ a pro ^{220}Rn $H_E \approx 1,1\cdot 10^{-10} \text{ Sv}\cdot\text{hod}^{-1}$ při objemové aktivitě $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. Předpokládáme-li, že minutová ventilace je rovna $20 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1} = 1,2 \text{ m}^3\cdot\text{hod}^{-1}$, získáme následující hodnoty efektivního dávkového ekvivalentu na jednotku aktivity při inhalaci čistého radonu:

$$H_E \approx 1,4\cdot 10^{-10} \text{ Sv} \quad (^{222}\text{Rn})$$

(1.12)

$$H_E \approx 0,9\cdot 10^{-10} \text{ Sv} \quad (^{220}\text{Rn})$$

(1.13)

Porovnáním ročního limitu příjmu z dozimetrické a epidemiologické studie a s uvážením jistých nedostatků a nepřesností každé z těchto metod rozhodla se komise ICRP doporučit pro pracovníky roční limit příjmu latentní energie alfa záření krátkodobých dceřiných produktů ^{222}Rn rovný $0,02 \text{ J}$. Z ročního limitu příjmu je možné odvodit i maximální přípustnou koncentraci v ovzduší pro ekvivalentní objemovou aktivitu radonu $1500 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ [66,67].

Problém dávek D a dávkových ekvivalentů H , který obdrží obyvatelstvo ev. pracovníci s ionizujícím zářením je specifický a různorodý z hlediska norem, platících v té které zemi. Podle naší nejnovější normy [68,69] platí obecné základní limity ozáření. Jejich hodnoty byly stanoveny následovně:

- pro součet efektivních dávek ze zevního ozáření a úvazků efektivních dávek z vnitřního ozáření hodnota 1 mSv za kalendářní rok nebo výjimečně hodnota 5 mSv za dobu pěti za sebou jdoucích kalendářních roků
- pro ekvivalentní dávku v oční čočce hodnota 15 mSv za kalendářní rok
- pro průměrnou ekvivalentní dávku v 1 cm² kůže hodnota 50 mSv za kalendářní rok

Základní limity pro pracovníky se zdroji jsou:

- pro součet efektivních dávek ze zevního ozáření a úvazků efektivních dávek z vnitřního ozáření hodnota 100 mSv za dobu pěti za sebou jdoucích kalendářních roků (první pětiletka se počíná dnem 1.1.2000)
- pro součet efektivních dávek ze zevního ozáření a úvazků efektivních dávek z vnitřního ozáření hodnota 50 mSv za kalendářní rok
- pro ekvivalentní dávku v oční čočce hodnota 150 mSv za kalendářní rok
- pro průměrnou ekvivalentní dávku v 1 cm² kůže hodnota 500 mSv za kalendářní rok.

Pro osoby pracující v prostředí, kde je zvýšené riziko přírodního ozáření, čímž se rozumí zejména ty případy práce např. v lázních, vodárnách, jeskyních, dolech nebo podzemních prostorách, kdy ani po provedení nápravných opatření není možné objemovou aktivitu radonu v ovzduší snížit v době výkonu práce pod hodnotu 1000 Bq/m³, se uplatňují požadavky, jaké platí pro práci v kontrolovaném pásmu pracovišť se zdroji ionizujícího záření.

Pro ozáření produkty přeměny radonu jsou odvozeným limitem 3 MBq pro roční příjem ekvivalentní aktivity radonu (což odpovídá příjmu latentní energie produktů přeměny radonu 17 mJ) nebo 2,5 MBq.h.m⁻³ pro expozici produktům radonu nebo 1260 Bq.m⁻³ pro celoroční průměrnou ekvivalentní objemovou aktivitu radonu.

Nejsou-li známá data lépe odpovídající dané situaci, počítá se pro osoby nepracující se zdroji záření množství vdechovaného vzduchu v jednom roce následovně: věk do 1 roku 1000 m³, od 1 do 2 let 2000 m³, od 2 do 7 let 4000 m³, od 7 do 12 let 6000 m³, od 12 do 17 let 8000 m³ a pro osoby starší 17 let 8500 m³. Pro požití vody se počítá u dospělého muže 1 m³ za rok, u dospělé ženy a dítěte staršího 10 let 0,7 m³ za rok. Pracovníci se zdroji

záření vdechnou při práci trvající 2000 hodin 2000 m³ vzduchu a požijí 1 m³ vody.

V USA byla zavedena pro kontrolu ovzduší uranových dolů speciální jednotka, zvaná „pracovní hladina“ (WL) , definovaná jako libovolná kombinace dceřiných produktů ²²²Rn v litru vzduchu, které vytvoří částice alfa o celkové energii 1,3.10⁵ MeV. Toto je ekvivalentní koncentraci ²²²Rn o aktivitě 3,7.10³ Bq.m⁻³, která je v rovnováze se svými krátkodobými dceřinými produkty alfa. Ozáření plic jednou „pracovní hladinou“ vede k dávkovému ekvivalentu na bronchiální epitel 0,2 Sv za rok (o 2000 pracovních hodinách) [70]. Jako vedlejší jednotka se uvádí i WLM , která přepočítává WL obdrženou za jeden měsíc (při 8 pracovních hodinách denně – přibližně 170 hodin).

Jiní autoři [71,72] provádějí rozlišení mezi praktikami a zásahy jako pokus objasnit rozdílné principy rozhodování o kontrole a regulaci radiační expozice. Existují dva principiální problémy: potřeba mít k dispozici odhady rizik expozice radonu a dále pak hodnoty akční úrovně v případě přítomnosti plynného radonu.

Pro odhady rizik existovala nejistota jak u dostupných epidemiologických informací, tak i u výsledků vyplývajících z nového dozimetrického modelu dýchacího traktu. Komise ICRP dospěla k závěru, že bez ohledu na tyto neurčitosti či nejasnosti je epidemiologický přístup fundovanější než dozimetrický. ICRP převzala ze zprávy National Academy of Sciences BEIR IV jednotný parametr pro obyvatelstvo USA, složené rovným dílem z mužů i žen zaokrouhlený dolů na jednu signifikantní hodnotu a aplikovala jej na celosvětovou populaci.

Výsledným číselným údajem je riziko 8.10⁻⁵ mJh.m⁻³ což je 3.10⁻⁴ WLM⁻¹. Expozice musí být vyjádřeny v dozimetrických pojmech, protože přinejmenším v případě profesionálních expozic musí být vnější expozice připočteny k expozicím z vnitřního příjmu radionuklidů tak, aby byl dodržen soulad s dávkovými limity. Komise ICRP navrhla konvenci radiačních dávek, kdy by rizika vyplývající z expozice radonu byla dána na stejnou úroveň, jako jsou rizika spojená s obdržením efektivní dávky 1 mSv.WLM⁻¹, a to bez použití dozimetrie. Autoři [71] uvádějí dva údaje pro poškození či újmy způsobené jednotkovou efektivní dávkou: 5,6.10⁻⁵ mSv⁻¹ pro provozní

personál a $7,3 \cdot 10^{-5} \text{ mSv}^{-1}$ pro jednotlivce z řad obyvatelstva. Zprůměrování rizika vede ke stanovení konvenční dávky 5 mSv.WLM^{-1} u provozního personálu a 4 mSv.WLM^{-1} u obyvatelstva.