Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б. Н. Ельцина» Физико-технологический институт Кафедра экспериментальной физики

На правах рукописи

Мостафа Мостафа Юнесс Абдельфатах

Средства воспроизведения единиц объемной и эквивалентной равновесной объемной активности радона

Специальность 01.04.01 – Приборы и методы экспериментальной физики

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель профессор, д. т. н. Жуковский М. В.

Екатеринбург – 2019

оглавление

ВВЕДЕНИЕ	4
ГЛАВА 1. СОВРЕМЕННОЕ СОСТОЯНИЕ МЕТРОЛОГИЧЕСКОЙ БАЗЫ ИЗМЕРЕНИЙ ОБЪЕМНОЙ АКТИВНОСТИ РАДОНА И ЕГО ДОЧЕРНИХ ПРОДУКТОВ РАСПАДА	11
 1.1. Общие подходы к разработке первичных эталонов активности радионуклидов 	11
 1.2. Основные физические характеристики радона и его дочерних продуктов распада 	13
1.3. Характеристика методов измерения ОА и ЭРОА радона	17
 1.4. Состояние метрологии ОА радона и его продуктов распада в Российской Федерации 	32
 1.5. Первичные эталоны активности или объемной активности ра- дона 	36
1.5.1. Первичные эталоны активности радона на основе радиевого стандарта в виде раствора	36
 1.5.2. Первичные эталоны активности радона без использования радиевого стандарта 	38
1.5.3. Методы, основанные на определении коэффициента эмани- рования твердых источников	46
 1.6. Первичные эталоны объемной активности продуктов распада радона 	51
1.7. Постановка задачи исследования	52
ГЛАВА 2. ПЛАНИРОВАНИЕ, МЕТОДИЧЕСКОЕ И ТЕХНИЧЕ- СКОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДО- ВАНИЙ	56
2.1. Требования к разработке средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона	56
2.2. Основные элементы конструкции средства воспроизведения ОА и ЭРОА радона	57
2.2.1. Гамма спектрометр РКГ-01	57
2.2.2. Источники радона и дополнительная аттестация их активно- сти	62
2.2.3. Конструкция эманационной камеры	65
2.2.4. Конструкция камеры для отбора проб аэрозолей ДПР радона	67
2.2.5. Накопительная камера	71

2.3. Вспомогательное оборудование, используемое при разработке и испытаниях средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона	71
2.3.1. Радон-монитор AlphaGUARD PQ2000	72
2.3.2. Радиометры RAMON-01М и БДПА-01	77
2.4. Конструкция средства воспроизведения единицы объемной ак- тивности ОА радона	81
2.4.1. Средство воспроизведения единицы объемной активности ОА радона, работающее в проточном режиме	82
2.4.2. Средство воспроизведения единицы ОА радона, работающее в замкнутом режиме	86
2.5. Конструкция и принцип работы средства воспроизведения единицы ЭРОА радона	89
ГЛАВА 3. ХАРАКТЕРИСТИКИ СРЕДСТВ ВОСПРОИЗВЕДЕНИЯ ЕДИНИЦ ОА И ЭРОА РАДОНА	91
3.1. Характеристики средства воспроизведения единицы ОА радо- на, работающего в проточном режиме	91
3.2. Характеристики средства воспроизведения единицы ОА радо- на, работающего в замкнутом режиме	101
3.3. Характеристики средства воспроизведения единицы эквива- лентной равновесной объемной активности радона	106
ГЛАВА 4. ПЕРЕДАЧА РАЗМЕРА ЕДИНИЦЫ ИЗМЕРЕНИЯ ОА И ЭРОА РАДОНА ОТ СРЕДСТВ ВОСПРОИЗВЕДЕНИЯ ЕДИНИЦ К ПОВЕРЯЕМЫМ СРЕДСТВАМ ИЗМЕРЕНИЙ	116
4.1. Передача размера единицы измерения ОА радона на средстве воспроизведения, работающем в проточном режиме	116
4.2. Передача размера единицы измерения ОА радона на средстве воспроизведения, работающем в замкнутом режиме	124
4.3. Передача размера единицы измерения на средстве воспроиз- ведения ЭРОА радона	127
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	131
СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ	133
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	135

введение

Актуальность темы.

Радиоактивный газ радон – постоянный природный спутник человечества. Проблема облучения персонала и населения за счет природных источников ионизирующего излучения представляет значительный интерес в связи с тем, что данные источники излучения вносят основной вклад в формирование суммарной эффективной дозы облучения населения [1, 2]. За счет ингаляционного поступления радона и продуктов его распада создается более половины общей дозы облучения населения от природных источников излучения [3]. Всемирная организация здравоохранения (ВОЗ) признала, что радон является второй после курения причиной возникновения рака легкого [4]. Анализ оценки риска здоровью при облучении радоном, проведенный НКДАР ООН, показал, что от 10 до 14 % случаев рака легкого обусловлены облучение населения дочерними продуктами распада радона в жилищах [2]. Облучение радоном является следующей после курения основной причиной возникновения этого тяжелого заболевания.

Традиционно считается, что основной источник поступления радона в атмосферу помещений – грунт под зданиями [1, 5, 6], но в современных энергоэффективных зданиях значимым источником поступления радона может быть и его диффузионное выделение из ограждающих конструкций [7–9].

Поскольку основное радиационное воздействие на человека обусловлено не столько инертным газом радоном, сколько его дочерними продуктами распада, откладывающимися в респираторном тракте, не менее важной задачей является измерение эквивалентной равновесной объемной активности (ЭРОА) радона, служащей мерой интенсивности радиационного воздействия на человека.

Значимость проблемы обеспечения радиационной защиты персонала и населения привела к необходимости разработать различные методы и сред-

ства измерения ОА и ЭРОА радона в воздухе. Принципы работы средств измерения ОА радона весьма различны в зависимости от поставленных задач.

Для обеспечения единства измерений и повышения их точности в любой технической области необходимо создать систему, обеспечивающую передачу размера единицы измерения от первичного эталона к эталонным, а далее к рабочим средствам [10–12]. Измерения ОА и ЭРОА радона не составляют исключение. Для обеспечения качества измерений ОА радона в ряде стран были разработаны первичные эталоны активности или объемной активности радона, позволяющие воспроизвести с высокой точностью единицу измерения, не прибегая к эталону той же природы. Необходимо отметить, что официально утвержденный специальный эталон объемной активности радона в России отсутствует до настоящего времени. Эталоны активности или ОА радона, а также ЭРОА радона отсутствуют во многих странах, не имеющих официальных соглашений о признании эталонов с Европейским союзом или США. В связи с этим разработка простых в эксплуатации, имеющих приемлемую стоимость и обеспечивающих достаточную точность первичных эталонов ОА и ЭРОА радона представляет собой актуальную задачу.

Степень разработанности темы исследования.

Анализ методов и средств воспроизведения ОА радона, основанных на использовании эманирующих источников ²²⁶Ra, показал, что в них, как правило, не контролируется коэффициент эманирования радона в процессе работы. В первичных эталонах объемной активности ДПР радона производятся измерения объемной активности всех короткоживущих продуктов распада ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi (²¹⁴Po) путем одновременного измерения удельных активностей всех этих изотопов при помощи α - и γ -спектрометров. Конструкция таких средств и процедуры их практического применения весьма сложны и не всегда оправдана. Влияние самопоглощения α -частиц в фильтре может вносить заметные погрешности в измерения активности ²¹⁸Po и ²¹⁴Po. Необходимость одновременного использования α - и γ -спектрометров существенно усложняет конструкцию экспериментальной установки и увеличивает ее сто-

имость. При этом точность данных эталонов, определяемая суммарной неопределенностью ~2 % во многих случаях является избыточной для приборов, используемых в практических измерениях. Поскольку при измерениях основной интерес представляет ЭРОА радона, а не объемная активность отдельных ДПР радона, то для целей поверки достаточно разработать эталон, воспроизводящий именно эту величину.

Объектом исследования является газо-воздушная смесь, содержащая газ ²²²Rn и короткоживущие продукты его распада ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi (²¹⁴Po).

Предметом исследования являются средства воспроизведения ОА и ЭРОА радона с заданной точностью, не использующие при своей работе эталонные меры или измерительные приборы для контроля этих величин, отградуированные в данных единицах измерений.

Формулировка цели работы

Цель исследования состоит в научном обосновании и усовершенствовании косвенных методов измерений ОА и ЭРОА радона и разработки на этой основе макетных образцов прототипов специальных эталонов воспроизведения этих величин с допустимой неопределённостью, не превышающей 3 %, а также методик передачи размера этих величин образцовым и рабочим средствам измерений.

Задачи исследования

1. Обоснование косвенного метода воспроизведения ОА радона и разработка путей его реализации для метрологического обеспечения средств контроля этой величины с использованием в качестве источника радона специального эманирующего источника ²²⁶Ra, а в качестве основного измерительного средства гамма-спектрометра на базе HPGe-детектора.

2. Обоснование косвенного метода воспроизведения ЭРОА радона и разработка его реализации для метрологического обеспечения средств контроля этой величины путём измерения активности аэрозолей, осаждённых на фильтре, по активности ДПР радона изотопа ²¹⁴Bi с использованием в качестве основного измерительного средства гамма-спектрометра на базе HPGедетектора.

3. Создание и экспериментальное исследование макетных образцов прототипов специальных эталонов ОА и ЭРОА радона с определением источников и численных значений неопределенностей воспроизведения и передачи единиц ОА и ЭРОА радона образцовым и рабочим средствам контроля данных величин в природной среде.

4. Определение путей снижения наиболее значимых неопределённостей воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона при создании специальных эталонов этих величин на основе предложенных прототипов.

Научная новизна:

1. Предложен, научно обоснован и исследован косвенный метод воспроизведения единиц ОА радона для метрологического обеспечения средств контроля этой величины с использованием в качестве источника радона специального эманирующего источника ²²⁶Ra, а в качестве основного измерительного средства гамма-спектрометра на базе HPGe-детектора.

2. Предложен, научно обоснован и исследован косвенный метод воспроизведения единиц ЭРОА радона для метрологического обеспечения средств контроля этой величины путём измерения активности аэрозолей, осаждённых на фильтре, по активности ДПР радона изотопа ²¹⁴Ві с использованием в качестве основного измерительного средства – гамма-спектрометра на базе HPGe-детектора с определением сдвига равновесия в цепочке распада ДПР радона ²¹⁸Po \rightarrow ²¹⁴Pb \rightarrow ²¹⁴Bi.

3. Определены основные источники неопределенностей разработанных средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона и обоснованы пути снижения суммарной неопределенности воспроизведения этих величин до практически приемлемого уровня, не превышающего 3 %

4. Определены основные источники неопределенностей при передаче единиц ОА и ЭРОА радона от средств воспроизведения размера единиц к рабочим средствам контроля ОА и ЭРОА радона.

Теоретическая и практическая значимость исследования:

1. Теоретически и экспериментально обоснована возможность создания специальных эталонов единиц ОА и ЭРОА радона на основе единого средства измерений – γ-спектрометра высокого разрешения на основе детектора из особо чистого германия.

2. Предложены и экспериментально исследованы две возможные схемы установки для воспроизведения единиц ОА радона: проточная и непрерывная с использованием в качестве источника радона специального эманирующего источника ²²⁶Ra, а в качестве основного измерительного средства гамма-спектрометра на базе HPGe-детектора.

3. Впервые в России разработаны макетные образцы прототипов специальных эталонов единиц ОА и ЭРОА радона с непрерывным контролем коэффициента эманирования источника ²²⁶Ra, позволяющие создать государственные специальные эталоны этих величин с обеспечением суммарной стандартной неопределенности значений этих величин не более 3 %.

4. На основе предложенных прототипов специальных эталонов единиц ОА и ЭРОА предложены процедуры передачи размера единиц от эталонов к образцовым и рабочим средствам контроля этих величин, которые могут служить основой для разработки методик поверки этих средств с использованием данных эталонов

Методы исследований

Используются теоретические и экспериментальные методы исследования. В качестве основного экспериментального метода исследования в диссертационной работе использовано измерение активности эманирующего источника и аэрозольных фильтров при помощи гамма-спектрометрии с использованием детектора из особо чистого германия. При помощи данного метода проводится как контроль коэффициента эманирования источника ²²⁶Ra, служащего источником радона, так и активность ДПР радона, отобранных на аэрозольный фильтр.

Положения, выносимые на защиту:

1. Конструкция средства воспроизведения размера единиц ОА радона с непрерывным контролем коэффициента эманирования по отношению активностей 214 Pb/ 226 Ra и 214 Bi/ 226 Ra, в источнике позволяет получить контролируемую ОА радона в диапазоне 0,3–30 кБк/м³ с неопределенностью, не превышающей 3 %.

2. Конструкция средства воспроизведения размера единиц ЭРОА радона, с определением измеряемой величины единичным измерением активности 214 Ві при контроле сдвига равновесия в цепочке 218 Ро \rightarrow^{214} Рb \rightarrow^{214} Ві, позволяет получить контролируемую ЭРОА радона с неопределенностью, не превышающей 3 %.

3. Основными источниками неопределенности воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона являются неопределенность измерения активности ²²⁶Ra в эманирующем источнике (OA) и пуассоновская неопределенность скорости счета в пике полного поглощения.

4. При передаче размера единицы измерения ОА радона основными источниками суммарной неопределенности являются неопределенности средства воспроизведения, пуассоновская неопределенность количества зарегистрированных импульсов и, для трековых детекторов, неопределенности связанные с процессом обработки материала детектора. При передаче размера единицы измерения ЭРОА радона доминирующие источники суммарной неопределенности обусловлены конструктивными особенностями поверяемого прибора.

Достоверность полученных результатов

Достоверность полученных результатов обеспечивается научной обоснованностью исходных положений, лежащих в основе методов определения ОА и ЭРОА радона, их соответствием законам радиоактивного распада, использованием прецизионных средств измерений, эталонных мер, аттестация которых прослеживается до ведущих метрологических центров, хорошей воспроизводимостью данных измерений и использованием современ-

ных методов статистической обработки результатов экспериментальных исследований.

Рекомендации по использованию полученных результатов

Разработанные средства воспроизведения размера единиц ОА и ЭРОА радона позволяют создать эталоны с характеристиками, удовлетворяющими требованиям к первичным государственным эталонам данных единиц. Подобные средства востребованы как в Российской Федерации, где в настоящее время отсутствует Государственный специальный эталон ОА радона, так и национальными метрологическими службами других стран, где метрологическое обеспечение единства измерений ОА и ЭРОА радона отсутствует полностью.

Апробация работы

Результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на следующих научных конференциях: Первая международная молодежная научная конференция, посвященная 65-летию основания Физикотехнологического института, Екатеринбург, 2014; 8^{-th} International Conference on High Levels of Natural Radiation and Radon Areas. Prague, Czech Republic, 2014; 2nd International Conference «Radon in the Environment 2015, Kraków (Poland); 8^{-th} International Conference on Protection against Radon at Home and at Work, Prague, 2016; Fourth International Conference on Radiation and Applications in Various Fields of Research (RAD 2016), Niš, Serbia, Конференция «Биосферная совместимость атомной энергетики», Екатеринбург, 2017.

Публикации

По теме диссертационной работы имеется 10 публикаций, из них 3 входят в систему индексирования Web of Science.

Структура и объем работы

Диссертация состоит из введения, четырех глав, выводов, списка сокращений, списка использованных источников из 109 наименований. Работа изложена на 145 страницах, содержит 19 таблиц и 42 рисунка.

ГЛАВА 1. СОВРЕМЕННОЕ СОСТОЯНИЕ МЕТРОЛОГИЧЕСКОЙ БА-ЗЫ ИЗМЕРЕНИЙ ОБЪЕМНОЙ АКТИВНОСТИ РАДОНА И ЕГО ДО-ЧЕРНИХ ПРОДУКТОВ РАСПАДА

1.1. Общие подходы к разработке первичных эталонов активности радионуклидов

Метрология – наука об измерениях, методах достижения их единства и требуемой точности. Конечно, она тесно связана и развивается совместно с измерительной техникой. Измерительные приборы являются объектом исследований метрологии. Развивая общую теорию измерений, метрология основной упор делает на исследования способов достижения единства измерений. Метрология измерений ионизирующих излучений развивается совместно с ядерным приборостроением, использует приемы и методологию общей метрологии, занимается созданием методов и средств обеспечения единства измерений характеристик радионуклидов, потоков излучений и дозиметрических величин. Под единством измерений следует понимать такое состояние измерений, при котором их результаты выражаются в принятых для соответствующих величин единицах и согласуются между собой на уровне требуемой точности определения этих величин [10–13].

Значения физических величин, для которых установлены меры, выводят из опытных данных путем непосредственного сравнения их с мерами или с помощью измерительных приборов, отградуированных по мерам в принятых единицах. Такие измерения называют прямыми. Отличительным признаком прямых измерений в общем виде является явное или неявное использование меры измеряемой величины [10].

В тех случаях, когда для измерений данной величины создание или применение меры этой величины невозможно или нецелесообразно, выполняют косвенные измерения, при которых значение искомой физической величины определяют расчетом на основании результатов измерений других величин, связанных с определяемой известным соотношением. Все применяемые на практике радиоактивные источники и образцы должны быть в конечном счете «привязаны» в соответствии с поверочной схемой к первичному эталону единицы активности нуклидов. Иными словами, первичный эталон единицы активности нуклидов должен обеспечить возможность воспроизведения этой единицы для всех радионуклидов во всем используемом диапазоне значений активности, а также передачу размера единицы всему комплексу применяемых на практике радиоактивных источников и образцов. Следовательно, необходима эталонная аппаратура, основанная на использовании ряда методов абсолютного измерения этой величины.

При <u>прямом измерении</u> активности нуклидов сравнивают (с помощью подходящей компараторной установки) данный радиоактивный образец с эталонной мерой, либо измерение производится при помощи средства измерения, хранящего единицу или шкалу измеряемой величины.

Под косвенным измерением активности нуклида подразумевается метод, который позволяет определить значение этой величины путем измерения других, связанных с нею величин, связанными с искомой активностью функциональными зависимостями, не используя при этом какой-либо иной радиоактивный образец того же нуклида с активностью, известной на основании измерения ее другим независимым методом.

<u>Абсолютное измерение</u> – это измерение, основанное на прямых измерениях одной или нескольких основных величин и использовании значений фундаментальных физических констант [12]

Косвенные, а тем более, абсолютные методы измерений активности и производных от нее величин сложны, поскольку методики выполнения таких измерений требуют тщательного анализа источников систематической погрешности и способов их устранения или учета. Они, как правило, реализуются с помощью прецизионных установок, имеющих зачастую уникальный характер и предназначенных для эксплуатации в лабораторных условиях, которые отвечают определенным требованиям. Поэтому абсолютные и косвенные методы измерений в основном используются в научных исследованиях и в метрологической практике. В последнем случае абсолютные методы, как будет показано ниже, реализуются в эталонных установках.

Во всех других случаях используют методы относительных измерений. Эти методы значительно проще в практической реализации, методика измерения в них не требует анализа и оценки источников погрешности в том объеме, как это требуется для абсолютных методов. Средства измерений, реализующие такие методы, отличаются простотой работы с ними и сравнительно невысокой стоимостью.

1.2. Основные физические характеристики радона и его дочерних продуктов распада

Радон – самый тяжелый из инертных газов, не имеет цвета и запаха. Температура его сжижения равна –62 °С. В нормальных условиях плотность радона в 7,5 раза выше плотности воздуха. Радон-222 образуется в природе как продукт радиоактивного распада в радиоактивной цепочке, началом которой является 238 U, а радон-220 – продукт распада в цепочке 232 Th (рис. 1.1) [3].

При описании природных радиоактивных цепочек можно встретить не только стандартные обозначения радионуклидов, но и их исторические названия, встречающиеся как в литературе прошлых лет издания, так и в практической деятельности. В частности, для изотопа ²²²Rn распространено исторически использующееся название «радон», а для изотопа ²²⁰Rn – «торон».

В цепочке радиоактивного распада 235 U существует третий изотоп радона 219 Rn (актинон), однако в силу короткого периода полураспада – 3,96 с и малого содержания 235 U в окружающей среде с точки зрения радиационной безопасности он может представлять лишь теоретический интерес [14].



Рис. 1.1 Цепочки радиоактивного распада 238 U и 232 Th (приведены не только стандартные, но и традиционно сложившиеся обозначения элементов цепочек распада 238 U и 232 Th)

Продукты распада радона и торона представляют основной путь облучения легкого преимущественно за счет альфа-частиц, излучаемых несколькими ДПР, хотя при этом они испускают также бета-частицы и гаммаизлучение [4]. Энергии излучения изотопов радона и их дочерних продуктов распада представлены в справочной литературе. Так, в Публикации 107 МКРЗ приведены параметры корпускулярного излучения изотопов радона и их ДПР, а также энергии излучения и квантовый выход для гаммаизлучающих нуклидов [15] (табл. 1.1 и 1.2).

Таблица 1.1

Радиационные свойства изотопов ²²²Rn и его основных дочерних продуктов распада

Радионуклид	Период полу-	Тип распада	Энергия ча-	Энергия ү-
	распада		стиц, МэВ	квантов, МэВ
²²² Rn (Rn)	3,825 сут	α	5,4897	_
²¹⁸ Po (RaA)	3,05 мин	α	6,0025	_
²¹⁴ Pb (RaB)	26,8 мин	β	0,672 (48)*	0,242 (7,4)
			0,729 (42,5)	0,295 (19,3)
				0,352 (37,6)
²¹⁴ Bi (RaC)	19,7 мин	β	1,505 (17,7)	0,609 (46,1)
			1,540 (17,9)	1,12 (15,1)
			3,270 (17,2)	1,76 (15,4)
²¹⁴ Po (RaC')	1,637·10 ⁻⁴ c	α	7,6871	_
²¹⁰ Pb (RaD)	22 года	β	0,0165 (80,2)	0,0465 (4,3)
			0,063 (19,8)	
²¹⁰ Bi (RaE)	4,989 сут	β	1,161	_
²¹⁰ Po (RaF)	138,4 сут	α	5,3045	_
* В скобках – выход излучения (приведены данные для частиц и γ-квантов с				
максимальным выходом), %.				

Таблица 1.2

Радиационные свойства изотопов ²²⁰Rn и его основных дочерних продуктов распада

Радионуклид	Период полу-	Тип распада	Энергия ча-	Энергия ү-
	распада		стиц, МэВ	квантов, МэВ
²²⁰ Rn (Tn)	55,6 c	α	6,288	_
²¹⁶ Po (ThA)	0,146 c	α	6,7785	_
²¹² Pb (ThB)	10,64 ч	β	0,334 (85,1)	0,239 (43,3)
			0,573 (9,9)	0,300 (3,3)
²¹² Bi (ThC)	60,55 мин	α (35,93 %)	6,050 (25,2)	0,727 (6,6)
			6,090 (9,6)	1,62 (1,5)
		β (64,07 %)	1,519 (8,0)	
			2,246 (48,4)	
²¹² Po (ThC')	2,98·10⁻ ⁷ c	α	8,7849	_
²⁰⁸ Tl (ThC'')	3,053 мин	β	1,284 (23,2)	0,511 (22,6)
			1,517 (22,7)	0,583 (84,5)
			1,794 (49,3)	0,861 (12,4)
				2,61 (99,2)

Рассмотрим ряд основных понятий, используемых для описания состояния изотопов радона и их дочерних продуктов распада в атмосфере. Их использование в первую очередь обусловлено тем, что в цепочке распада радона в воздухе всегда существует значительный сдвиг равновесия между газообразным изотопом радона и его ДПР, обусловленный различными процессами, происходящими в атмосфере.

Для описания интегральной объемной активности дочерних продуктов распада радона в воздухе используется такое понятие, как «удельная потен-

циальная энергия альфа-излучения» – объемная активность короткоживущих дочерних продуктов радона и торона в воздухе, выраженная в единицах энергии альфа-излучения, испускаемого любой смесью короткоживущих дочерних продуктов ²²²Rn или ²²⁰Rn в единице объема воздуха при полном распаде дочерних продуктов ²²²Rn до ²¹⁰Pb или дочерних продуктов ²²⁰Rn до ²⁰⁸Pb [16, 17].

Эквивалентной равновесной объемной активностью (ЭРОА) радона для неравновесной смеси короткоживущих дочерних продуктов распада в воздухе называется такая объемная активность радона в полном равновесии с дочерними продуктами распада, которая имеет такую же величину удельной потенциальной энергии альфа-излучения, как и данная неравновесная смесь.

Эквивалентная равновесная объемная активность 222 Rn связана с объемными активностями 218 Po – 214 Bi, а 220 Rn соответственно с 216 Po – 212 Bi следующим соотношением:

$$A_{\Im KB}^{Rn} = A_{V0}^{Rn} \cdot F = 0,1046A_{V1} + 0,5161A_{V2} + 0,3793A_{V3}$$
(1.1)
$$A_{\Im KB}^{Tn} = A_{V0}^{Tn} \cdot F = 7 \cdot 10^{-6}A_{V1} + 0,9133A_{V2} + 0,0867A_{V3}$$

где через A_{V0}^{Rn} и A_{V0}^{Tn} обозначены соответственно объемные активности радона и торона, A_{V1} , A_{V2} и A_{V3} – соответственно объемные активности в Бк/м^{3 218}Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi (верхнее уравнение) и A_{V1} , A_{V2} и A_{V3} – соответственно объемные активности ²¹⁶Po, ²¹²Pb, ²¹²Bi (нижнее уравнение), Бк/м³. Численные значения коэффициентов отражают долевой вклад каждого продукта распада в общую потенциальную энергию альфа-излучения, отнесенную к распаду единицы активности газообразного ²²²Rn или ²²⁰Rn. Коэффициент равновесия *F* определяется как отношение ЭРОА радона к ОА радона. На практике коэффициент всегда *F*<1.

1.3. Характеристика методов измерения ОА и ЭРОА радона

Измерения ОА радона. Подробная характеристика современных методов измерения ОА и ЭРОА радона сделана в работах [17, 18]. Рассмотрим вкратце данные методы. Общая схема инструментальных методов измерений ОА радона представлена на рис. 1.2 [19]. Ретроспективные методы, позволяющие получить информацию о средних уровнях ОА в жилище за последние 10–40 лет [20–22], на настоящий момент не имеют достаточного метрологического обеспечения и в данной работе не рассматриваются.



Рис. 1.2. Общая схема инструментальных методов измерений ОА радона

Инспекционные методы измерения ОА радона (экспресс-методы) позволяют получить информацию о текущем значении данного параметра за относительно короткий интервал времени.

Использование ионизационных камер при измерениях ОА радона в целом аналогично их использованию при измерениях ОА других газов. В зависимости от уровня ОА радона измерения могут проводиться как в импульсном режиме, так и в токовом режиме. При использовании ионизационных камер для измерения ОА радона необходимо учитывать накопление ДПР радона, образующихся в объеме камеры на элементах ее конструкции (стенках, электродах, изоляторах и т. д.).

Сцинтилляционные камеры, или ячейки Лукаса, являются средством измерений, используемым только для измерений ОА радона [23]. Ячейка Лу-

каса представляет собой сосуд, стенки которого покрыты сцинтиллятором ZnS(Ag), имеющий окно для сопряжения с фотоэлектронным умножителем (рис. 1.3)



Рис. 1.3. Схема конструкции сцинтилляционной камеры (ячейка Лукаса) [24]

При проведении измерений при помощи сцинтилляционной камеры исследуемая проба воздуха отбирается в камеру после ее предварительного вакуумирования или путем прокачки через камеру пробы воздуха, не менее чем в 5 раз превышающей ее объем. Через некоторое время при распаде радона, находящегося в камере, образуются короткоживущие продукты распада, оседающие на стенках. При распаде α -излучающих ДПР радона ²¹⁸Ро и ²¹⁴Ро на стенках камеры возникают сцинтилляционные вспышки, регистрируемые фотоэлектронным умножителем.

Основной принцип регистрации радона в воздухе с помощью электростатической камеры основан на том, что около 90 % атомов дочерних продуктов распада имеют положительный заряд [25–29]. Оставшиеся 10 % атомов нейтральны или отрицательно заряжены. Если образующиеся ДПР поместить в электрическое поле, то будет наблюдаться их миграция вдоль силовых линий поля и собирание на поверхности детектирующего устройства.

Электростатическая камера представляет собой полый, чаще всего полусферический или цилиндрический сосуд. Объем электростатической камеры обычно составляет от 1 до 6 л. В камеру устанавливается детектор α излучения. Ранее использовались сцинтилляционные детекторы [26–28], однако в последнее время используются исключительно поверхностнобарьерные полупроводниковые детекторы, работающие в спектрометрическом режиме. Между стенкой камеры и детектором создается разность потенциалов в 1–4 кВ, чтобы положительно заряженные дочерние продукты распада радона двигались под действием электрического поля к детектору и оседали на его поверхности (рис.1.4).



Рис. 1.4. Принцип действия электростатической камеры

Радон поступает в измерительную электростатическую камеру либо путем прокачки воздуха через объем камеры, либо пассивно – путем диффузии через пористый материал, которым в этом случае окружают внешний электрод [26]. Образующиеся при распаде радона атомы ²¹⁸Ро на 90 % имеют положительный заряд и собираются (за время их жизни) под действием электрического поля на поверхности α-детектора.

Альфа-частицы, образующиеся при распаде ²¹⁸Po, регистрируются детектором. Использование поверхностно-барьерных полупроводниковых детекторов, работающих в спектрометрическом режиме, позволяет разделить α -частицы, образующиеся при распаде ²¹⁸Po и ²¹⁴Po. Таким образом уменьшается интервал времени между двумя измерениями, поскольку нет необходимости ожидать полного распада осевших на поверхность детектора дочерних продуктов распада перед началом следующего измерения.

Для инспекционных измерений ОА радона в России чаще всего используют приборы PPA-01M-01, PPA-01M-03 или более современные варианты серии «Альфарад плюс» («НТМ-защита», Россия), в которых в качестве детектора используется электростатическая камера [25, 29]. Диапазон измерений объемной активности ²²²Rn от 20 до 20000 Бк/м³. Проба анализируемого воздуха закачивается в измерительную камеру через аэрозольный фильтр с помощью воздуходувки. При отборе проб воздуха в помещении рекомендуется использовать патрон-осушитель, который наполнен силикагелем, поглощающим пары воды из контролируемого воздуха.

Из интегрирующих средств измерения ОА радона, представленных на рис. 1.2, в России нашли распространение и внесены в Государственный реестр средств измерений два типа детекторов – угольные адсорберы и трековые детекторы.

Особенностью воздействия радона является то, что его объемная активность и объемная активность ДПР могут меняться для одного помещения на несколько порядков в зависимости от изменения кратности воздухообмена. Для того чтобы учесть этот эффект, используют интегрирующие детекторы радона, т. е. детекторы, отклик которых пропорционален средней объемной активности радона за период измерений. В целях получения информации за период измерения 1–6 сут могут быть использованы детекторы, принцип действия которых основан на способности активированного угля поглощать радон из окружающей атмосферы. Это связано с удобством применения, возможностью регенерации и повторного использования активированного угля и меньшим временем экспонирования, т. е. более быстрым получением результата.

Метод угольных адсорберов основан на отборе пробы сорбционной колонкой с активированным углем, открытой с одного конца, с последующим измерением активности угля по β- или γ-излучению короткоживущих ДПР радона ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi. Адсорбция радона происходит пассивно, без использования принудительной прокачки. Метод промышленно реализован в измерительном комплексе «Камера-01» (НТЦ «Нитон», Россия) для мониторинга радона [30]. В комплексе используется активированный уголь марки СКТ-3, обладающий высокой сорбционной емкостью по радону. Регенерация угля для очистки от сорбированных молекул воды и радона осуществляется с помощью регенератора. Для корректировки сорбционной емкости сорбционной колонки контроль влажности воздуха проводится путем определения привеса ΔM (г) к массе активированного угля за время отбора пробы. Отбор проб происходит в течение 1-6 сут сорбционной колонкой, установленной в помещении. Через 3–12 ч после окончания пробоотбора измеряют активность радона в угле, засыпая уголь в блок детектирования В-излучения БДБ-13. Обработка накопленных импульсов, просмотр и оформление результатов измерений осуществляется при помощи специализированного программного обеспечения.

В последнее время для пассивной регистрации тяжелых заряженных частиц (α-частиц, осколков деления, частиц космического происхождения и др.) широкое применение находят так называемые твердотельные трековые детекторы [31–34]. Заряженные частицы, проходя через диэлектрики, теряют вдоль своего пути энергию и производят радиационные нарушения в веществе. В результате вдоль траектории частицы образуется область пространственного заряда. Как правило, эта область обладает повышенной химической растворимостью и называется скрытым, латентным, треком. Этот трек может быть обнаружен без предварительной обработки либо при помощи электронного микроскопа, либо спектрометрическими методами. Благодаря

отсутствию в диэлектриках свободных электронов область латентного трека достаточно стабильна и в зависимости от состава материала, температуры и влажности среды может сохраняться без изменений от нескольких суток до нескольких лет. При воздействии на диэлектрики с латентными треками специально подобранных растворителей происходит образование на поврежденных участках пустотелых конических или цилиндрических каналов, уходящих от поверхности вглубь материала. Это и есть выявленные треки.

Для проведения измерений трековый детектор помещается внутрь специальной камеры. Внутреннее пространство камеры отделяется от атмосферы диффузионной мембраной. Характеристики диффузионной мембраны подбираются таким образом, чтобы исключить поступление внутрь пыли и аэрозолей из наружной атмосферы. С другой стороны, для свободного поступления радона в камеру время диффузионного переноса газообразного радона через мембрану должно быть много меньше периода полураспада радона. В этом случае плотность треков, образующихся в веществе чувствительного объема трекового детектора, пропорциональна средней ОА радона с учетом продолжительности экспонирования. Количество треков может быть подсчитано вручную с использованием микроскопа, с применением цифровых систем распознавания изображений, а также других автоматизированных систем (например, электроискрового счетчика).

В России был разработан и выпускается целый ряд радиометров радона на основе материала LR-115 (нитроцеллюлоза) [35, 36] (рис. 1.5).



Рис. 1.5. Интегрирующие трековые радиометры радона на основе LR-115, разработанные следующими организациями: 1 – детектор Санкт-Петербургского института радиационной гигиены; 2 – детектор Радиевого института им. В. Г. Хлопина; 3, 4 – детекторы, разработанные в ЗАО «Радиационные и экологические исследования», Москва

В странах Европы широко используются трековые детекторы на основе пластика CR-39, имеющего более широкий энергетический диапазон регистрации α-частиц и более высокую воспроизводимость измерений. Детекторы на основе пластика CR-39 представлены на рис. 1.6.



Рис. 1.6 Радиометры радона на основе поликарбонатного материала CR-39, выпускаемые фирмами NRPB и RadoSys [37, 38]

Измерения ЭРОА радона и объемной активности ДПР радона. Измерения ЭРОА радона преимущественно относятся к инспекционным методам измерений. Измерения включают в себя отбор пробы воздуха, содержащего ДПР радона, на аэрозольный фильтр с последующим измерением активности фильтра.

При отборе ДПР радона на аналитический фильтр будут наблюдаться два процесса:

- накопление активности ДПР радона на фильтре;
- распад ДПР радона по цепочке 218 Po $\rightarrow {}^{214}$ Pb $\rightarrow {}^{214}$ Bi $\rightarrow {}^{214}$ Po.

Соотношение активностей короткоживущих ДПР радона на фильтре постоянно изменяется как в процессе пробоотбора, так и после его прекращения. При этом соотношение активностей ДПР радона на фильтре всегда отличается от соотношения их активностей в исследуемой атмосфере. Соотношение активностей ДПР радона на фильтре в любой момент времени определяется исключительно сдвигом равновесия между ДПР радона в исследуемой атмосфере, длительностью отбора пробы и временем выдержки фильтра после окончания прокачки.

Измеряя активность ДПР, осевших на фильтре, можно определить объемную активность отдельных дочерних продуктов распада в воздухе, а также уровень ЭРОА радона. Для этого необходимо провести измерения абсолютной активности фильтра в различные моменты после окончания прокачки.

Рассмотрим накопление активности продуктов распада ²²²Rn на фильтре, через который с объемной скоростью о прокачивают воздух, содержащий радон и продукты его распада [39, 40]. За основу можно принять упрощенную цепочку распада дочерних продуктов радона

222
Rn \rightarrow^{218} Po (RaA) \rightarrow^{214} Pb (RaB) \rightarrow^{214} Bi (RaC) \rightarrow^{214} Po (RaC').

Пусть N_A , N_B и N_C — число атомов ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi, осевших на фильтре за время прокачки *t*. Полагая, что эффективность фильтра равна 1, для изменения числа атомов в единицу времени получаем

$$\begin{cases} \frac{dN_A}{dt} = n_A \upsilon - \lambda_A N_A \\ \frac{dN_B}{dt} = n_B \upsilon + \lambda_A N_A - \lambda_B N_B , \\ \frac{dN_C}{dt} = n_C \upsilon + \lambda_B N_B - \lambda_C N_C \end{cases}$$
(1.2)

где n_A , n_B и n_C – концентрация атомов ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi в воздухе; λ_A , λ_B и λ_C – постоянные распада данных нуклидов.

Каждое уравнение системы (1.2) отражает тот факт, что накопление данного продукта происходит как вследствие непосредственного улавливания его фильтром из воздуха, так и в результате распада предыдущего продукта по цепочке. Считается, что до начала прокачки воздуха через фильтр на нем нет радиоактивных атомов, т. е. для t=0 $N_A=N_B=N_C=0$. Решение системы уравнений (1.2) имеет вид

$$\begin{cases} N_A = \frac{n_A \upsilon}{\lambda_A} F_{A1} \\ N_B = \frac{n_A \upsilon}{\lambda_B} F_{B1} + \frac{n_B \upsilon}{\lambda_B} F_{B2} \\ N_C = \frac{n_A \upsilon}{\lambda_C} F_{C1} + \frac{n_B \upsilon}{\lambda_C} F_{C2} \frac{n_C \upsilon}{\lambda_C} F_{C3} \end{cases}$$
(1.3)

где *F_{Ai}, F_{Bi} и F_{Ci}* — следующие функции времени

$$F_{A1} = 1 - \exp(-\lambda_A t),$$
 (1.4)

$$F_{B1} = 1 - \frac{\lambda_B \exp(-\lambda_A t)}{\lambda_B - \lambda_A} + \frac{\lambda_A \exp(-\lambda_B t)}{\lambda_B - \lambda_A}, \qquad (1.5)$$

$$F_{B2} = 1 - \exp(-\lambda_B t), \qquad (1.6)$$

$$F_{C1} = 1 - \frac{\lambda_B \lambda_C \exp(-\lambda_A t)}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} - \frac{\lambda_A \lambda_C \exp(-\lambda_B t)}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} - \frac{\lambda_A \lambda_B \exp(-\lambda_C t)}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)}, \quad (1.7)$$

$$F_{C2} = 1 - \frac{\lambda_C \exp(-\lambda_B t)}{\lambda_C - \lambda_B} + \frac{\lambda_B \exp(-\lambda_C t)}{\lambda_C - \lambda_B} \quad , \tag{1.8}$$

$$F_{C3} = 1 - \exp(-\lambda_C t)$$
. (1.9)

Обозначим A_A , A_B и A_C активность ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi на фильтре через время *t* после начала прокачки. Тогда

$$\begin{cases}
A_{A} = n_{A} \cup F_{A1} \\
A_{B} = n_{A} \cup F_{B1} + n_{B} \cup F_{B2} \\
A_{C} = n_{A} \cup F_{C1} + n_{B} \cup F_{C2} + n_{C} \cup F_{C3}
\end{cases}$$
(1.10)

Из системы уравнений (1.10) видно, что изменение активности на фильтре при заданных скорости и времени прокачки полностью определяется концентрацией радионуклидов ²¹⁸Po,²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi в исследуемом воздухе.

Принимая во внимание, что β -активными продуктами на фильтре являются ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi, а α -активными – ²¹⁸Po и ²¹⁴Po, образующийся при распаде ²¹⁴Bi и практически мгновенно распадающийся, то активность фильтра в любой момент времени после начала прокачки равна

$$A_{\alpha} = [n_A(F_{A1} + F_{C1}) + n_B F_{C2} + n_C F_{C3}] \upsilon$$

$$A_{\beta} = [n_A(F_{B1} + F_{C1}) + n_B (F_{B2} + F_{C2}) + n_C F_{C3}] \upsilon$$
(1.11)

При этом учтено, что ²¹⁴Ро находится в равновесии с ²¹⁴Ві.

На практике равновесие между ДПР радона в воздухе нарушено, поэтому разработка методов определения ОА дочерних продуктов при неизвестных соотношениях между ними приобретает особую важность.

Рассмотрим изменение активности ДПР радона ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi на фильтре после прекращения отбора пробы. Пусть N'_A , N'_B и N'_C – число атомов соответствующих нуклидов на фильтре через время *t*' после прекращения прокачки. Изменение числа атомов после окончания прокачки описывается уравнениями:

$$\begin{cases} \frac{dN'_{A}}{dt} = -\lambda_{A}N'_{A} \\ \frac{dN'_{B}}{dt} = -\lambda_{B}N'_{B} + \lambda_{A}N'_{A} \\ \frac{dN'_{C}}{dt} = -\lambda_{C}N'_{C} + \lambda_{B}N'_{B} \end{cases}$$
(1.12)

Начальные условия для системы (1.12):

$$\begin{cases} N'_{A}(0) = N_{A}(t) \\ N'_{B}(0) = N_{B}(t) \\ N'_{C}(0) = N_{C}(t) \end{cases}$$
(1.13)

определяются уравнениями (1.3).

Вместо измерения активности фильтра в различные моменты времени после прекращения прокачки удобнее измерять суммарное количество альфа или бета-распадов за различные интервалы времени. В этом случае методика нахождения концентрации активности дочерних продуктов Rn сводится к следующему. Пусть M_A , M_B и M_C — числа атомов ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi, распавшихся на фильтре за время *t*' после прекращения прокачки. Очевидно, что

$$\begin{cases} M_A = \int_0^{t'} \lambda_A N'_A dt' \\ M_B = \int_0^{t'} \lambda_B N'_B dt' \\ M_C = \int_0^{t'} \lambda_C N'_C dt' \end{cases}$$
(1.14)

Если в эти уравнения подставить значения N'_A , $N'_B u N'_C$ из системы (1.13) и проинтегрировать, то получим

$$\begin{cases}
M_A = N_A(t)F'_{A1} \\
M_B = N_A(t)F'_{B1} + N_B(t)F'_{B2} \\
M_C = N_A(t)F'_{C1} + N_B(t)F'_{C2} + N_C(t)F'_{C3}
\end{cases}$$
(1.15)

В этих уравнениях коэффициенты F'_{ik} определяются теми же формулами, что и коэффициенты F_{ik} , если вместо времени прокачки *t* подставить время *t*', прошедшее с момента прекращения прокачки.

Суммарное число α-распадов на фильтре за время t' будет равно

$$M_{\alpha} = M_A + M_C = N_A(t)(F'_{A1} + F'_{C1}) + N_B(t)F'_{C2} + N_C(t)F'_{C3}$$
(1.16)

Определяя экспериментально полное число α -распадов за различные интервалы времени, можно составить систему уравнений типа (1.16). В этой системе неизвестны значения $N_A(t)$, $N_B(t)$ и $N_C(t)$. Однако проведя несколько независимых измерений фильтра в различные интервалы времени, эту систему можно будет решить относительно $N_A(t)$, $N_B(t)$ и $N_C(t)$ и, следовательно, относительно n_A , n_B и n_C .

При определении объемной активности ДПР радона в воздухе обычно проводят от одного до трех измерений активности фильтра. Наиболее распространены методы, основанные на определении абсолютной активности фильтра по *α*-излучению [39–48]. Измерения по β-излучению не получили широкого распространения из-за того, что при сопоставимой активности на фильтре отношение сигнал/фон ниже, чем при измерении по *α*-излучению.

Полностью устранить систематическую погрешность, обусловленную неизвестным сдвигом равновесия между отдельными ДПР, можно в методах, основанных на трех измерениях активности фильтра. Из методов измерения по трем точкам исторически более ранним является метод Томаса [49], не потерявший своей актуальности по настоящее время. В оригинальной методике Томаса отбор пробы воздуха на фильтр ведется в течение 5 мин. Далее производят измерение α-активности фильтра в периоды 2–5, 6–20 и 21–30 мин с

момента окончания прокачки. Индивидуальные объемные активности ДПР в воздухе (Бк/м³) определяются по следующим формулам:

$$A_{V}^{Po-218} = \frac{37}{\epsilon \eta_{F} \upsilon} [0,16894 \cdot N(2,5) - 0,0820 \cdot N(6,20) + 0,07753 \cdot N(21,30)],$$

$$A_{V}^{Pb-214} = \frac{37}{\epsilon \eta_{F} \upsilon} [0,00122 \cdot N(2,5) - 0,02057 \cdot N(6,20) + 0,04909 \cdot N(21,30)], \quad (1.17)$$

$$A_{V}^{Bi-214} = \frac{37}{\epsilon \eta_{F} \upsilon} [-0,02252 \cdot N(2,5) + 0,03318 \cdot N(6,20) - 0,03771 \cdot N(21,30)],$$

где N(2, 5), N(6, 20), N(21, 30) – число импульсов, зарегистрированных в заданные интервалы времени; ε – эффективность регистрации α -излучения (с учетом поправки на геометрию измерений); η_F – эффективность аэрозольного фильтра (эффективность задержки аэрозолей и учет самопоглощения α излучения в фильтре); υ – скорость прокачки воздуха через фильтр, л/мин.

Во многих практических ситуациях не требуется знание информации о значениях ОА отдельных ДПР радона. Достаточным является определение ЭРОА радона как основной контролируемой и нормируемой величины. Для этих целей хорошо зарекомендовал себя метод Кузнеца, требующий всего лишь одного измерения активности фильтра. Первоначальный метод Кузнеца для оперативного определения ДПР радона состоял в том, что воздух, содержащий радиоактивные аэрозоли, прокачивали через фильтр в течение 5 или 10 мин, а затем измеряли его активность при помощи полевого α -радиометра [45]. При дальнейшем развитии метода Кузнеца в целях увеличения его чувствительности и уменьшения систематической погрешности за счет сдвига равновесия между ДПР было предложено увеличить время измерения активности фильтра [17, 48]. Было просчитано значительное число вариантов измерений, в которых варьировалось время прокачки, а также время начала и окончания измерений активности фильтра. Величина ЭРОА радона (Бк/м³) определяется по формуле:

$$A_{\text{3POA}}^{Rn} = \frac{3700N(t_0, T_1, T_2)}{\epsilon \eta_F \upsilon \cdot K}$$
(1.18)

где $N(t_0,T_1,T_2)$ – число импульсов, зарегистрированных α -детектором за интервал времени с T_1 по T_2 после окончания прокачки при времени прокачки t_0 . Значения коэффициента K для различных условий измерения приведены в табл.1.3. При необходимости на основании решения системы уравнений (1.3) и (1.15) значения коэффициента K могут быть рассчитаны для произвольного соотношения времени отбора пробы, выдержки и измерения. Как было показано в работе [17], погрешность определения ЭРОА радона, обусловленная неизвестным сдвигом равновесия в цепочке распада ²¹⁸Po \rightarrow ²¹⁴Pb \rightarrow ²¹⁴Bi, не превышает 2%.

Таблица 1.3

	Время, мин		
Отбор пробы <i>t</i> ₀	Начало измерения T ₁	Окончание	Коэффициент
		измерения T_2	пересчета К
5	40	45	3700
5	40	50	7150
5	40	100	29 200
5	60	65	2700
5	60	70	5200
5	60	120	20100
10	40	45	7150
10	40	50	13800
10	40	70	35 500
10	40	100	55900
10	60	65	5200
10	60	70	9900
10	60	90	24900
10	60	120	38400

Значения коэффициента пересчета К для метода Кузнеца

1.4. Состояние метрологии ОА радона и его продуктов распада в Российской Федерации

Традиционно система метрологии в целом и метрологии ионизирующего излучения в частности функционирует путем передачи размера единицы измерения от первичного эталона, имеющего максимально возможную точность, к вторичным эталонам, а от них – к рабочим средствам измерений.

В России для передачи размера единиц активности и объемной активности в газах создан Государственный первичный специальный эталон единиц активности и объемной активности нуклидов в бета-активных газах ГЭТ 20-2014. Основой для функционирования данного эталона является достаточно старый ГОСТ 8.039-79 [13].

Государственный специальный эталон единицы активности нуклидов в газах предназначен для воспроизведения объемной активности низкоэнергетических β -активных газов (³H, ¹⁴C, ⁸⁵Кг и др.). Диапазон воспроизведения объемной активности составляет 5·10³–5·10⁹ Бк/м³. СКО результата измерения не превышает 0,8 %, НСП = 0,4 %. В эталоне применены пропорциональные детекторы внутреннего наполнения – пропорциональные счетчики с подвижным изолятором, в которых можно учитывать концевой эффект, не прибегая к использованию счетчиков разной длины. Поверочная схема передачи размера активности бета-активных газов приведена на рис. 1.7. Для предачи размера единицы ОА радона данный эталон неприменим.

На настоящий момент в Российской Федерации отсутствует Государственный специальный эталон активности или объемной активности радона. В качестве эталонной установки, используемой как для утверждения типа средств измерений, так и для поверки средств измерений, используется рабочий эталон единицы объемной активности радона-222 (РЭОАР-1), обеспечивающий воспроизведение и измерение OA ²²²Rn в диапазоне от 500 до 1,0·10⁶ Бк·м⁻³ с основной относительной погрешностью ±15 % при доверительной вероятности P = 0,95 [25].



Рис. 1.7. Поверочная схема средств измерения активности нуклидов в бетаактивных газах [13]

В состав рабочего эталона единицы объемной активности радона-222 (РЭОАР-1) входят:

1. Эталонный радиометр радона типа AlphaGUARD PQ2000, предназначенный для измерения OA 222 Rn в диапазоне от 500 до 1,0 \cdot 10⁶ Бк \cdot м $^{-3}$ с основной относительной погрешностью измерений ±15 %.

2. Герметичный бокс 1БП2-ОС, снабженный вентилятором типа ВН2 для перемешивания воздуха в боксе, контрольным барометроманероидом типа М67, розетками переменного тока с напряжением питающей сети (220±11) В и частотой 50 Гц, отверстиями с герметично надетыми на них резиновыми перчатками для проведения работ внутри бокса [25].

3. Генератор ²²²Rn, состоящий из бокса типа 6БП1-ОС объемом 0,15 м³ с эманирующим источником ²²⁶Ra активностью от 100000 до 150000 Бк, коьорый представляет собой барботер, с кранами, помещенный в свинцо-

вую защиту и обеспечивающий создание в боксе 1БП2-ОС ОА радона-222 в диапазоне от 500 до 3000 Бк/м³.

Как можно заметить, в данном рабочем эталоне отсутствуют абсолютные или косвенные методы определения активности или объемной активности радона, поскольку радон-монитор AlphaGUARD PQ2000 сам по себе требует сличения с эталоном и поверки. Кроме того, основную относительную погрешность измерений $\pm 15\%$ нельзя признать удовлетворительной.

Кроме вышеуказанного рабочего эталона ОА радона, в Российской Федерации много десятилетий существует и функционирует Государственный первичный специальный эталон единицы объемной активности радиоактивных аэрозолей ГЭТ 39-2014. Как и эталон активности и объемной активности нуклидов в бета-активных газах, данный эталон опирается на стандарт, принятый еще в 1979 г. ГОСТ 8.090-79 [50].

Государственный специальный эталон единицы объемной активности радиоактивных аэрозолей предназначен для воспроизведения и передачи объемной активности как искусственных, так и естественных аэрозолей [10]. В состав эталона входят генераторы искусственных и естественных радиоактивных аэрозолей, генератор парообразного ¹³¹I, спектрометрическая установка для измерения активности аэрозольных проб по α -, β - и γ -излучению. Работа генераторов искусственных аэрозолей основана на методе барботажа чистого воздуха через радиоактивный раствор соли соответствующего радионуклида. Концентрацию аэрозолей можно варьировать путем изменения скорости прокачки, активности раствора или разбавлением чистым воздухом. СКО воспроизводимости заданного значения объемной активности аэрозолей не превышает 5 % в диапазоне 7·10⁻² – 4·10³ Бк/м³.

Естественные радиоактивные аэрозоли создаются генератором дочерних продуктов распада радона. Генератор представлял собой замкнутый объем ~ 2 м³, в который помещен эманирующий источник ²²⁶Ra. СКО воспроизведения объемной активности естественных аэрозолей для дочерних продуктов распада радона не превышало 5 % в диапазоне объемных активностей $2 \cdot 10^2 - 4 \cdot 10^5$ Бк/м³. НСП также составляла 5 %. После модификации эталона объем радоновой камеры был увеличен до 17 м³, диапазон активностей расширен до $7 \cdot 10^1 - 4 \cdot 10^5$ Бк/м³, погрешности доведены до уровня СКО=2%, НСП=(3,0-4,1) %, расширенная стандартная неопределенность \tilde{u} =4,7–5,3 % при k=2.

Активность аэрозольных проб, отобранных на специальные фильтры, измеряется как спектрометрическим, так и радиометрическим методом. НСП измерения активности пробы в основном определяется погрешностью используемого в эталоне эталонного источника и не превышает 5 %, СКО результата измерений — не более 5 % и обусловлено нестабильностью примененных в эталоне генераторов. Поверочная схема средств измерений объемной активности радиоактивных аэрозолей представлена на рис. 1.8.



Рис. 1.8. Поверочная схема средств измерений объемной активности радиоактивных аэрозолей [50]

Конструкция генератора естественных радиоактивных аэрозолей, используемого во ВНИИФТРИ в 1998–2010 гг., была использована с некоторыми усовершенствованиями для создания рабочего эталона ЭРОА радона в региональной поверочной лаборатории радоновых приборов Уральского политехнического института. Описание данной экспериментальной установки приведено в главе 2.

1.5. Первичные эталоны активности или объемной активности радона

По мере того как стало ясно, что воздействие радона и его дочерних продуктов на человека представляет реальную опасность для здоровья, во всем мире стало уделяться серьезное внимание метрологическому обеспечению измерений ОА радона. При этом особое внимание уделялось разработке первичных эталонов ОА радона, по которым поверялись вторичные эталоны, а затем рабочие средства измерений [51]. В большинстве разрабатываемых эталонов основное внимание уделялось определению абсолютной активности радона, находящегося в системе. Необходимое значение ОА радона C_{Rn} задавалось введением известной активности радона A_{Rn} в емкость с точно измеренным объемом V

$$C_{Rn} = \frac{A_{Rn}}{V} \quad . \tag{1.19}$$

1.5.1. Первичные эталоны активности радона на основе радиевого стандарта в виде раствора

До 1995 г. все эталоны активности радона были основаны на непрямом методе определения активности и были связаны с использованием растворов ²²⁶Ra с точно измеренным независимыми методами содержанием радия. Типичный подход к созданию эталона такого типа был реализован в Национальном институте радиационной защиты Швеции [52, 53]. В качестве источника радона использовался эталонный раствор ²²⁶Ra, приготовленный в Национальном институте стандартов и технологий (NIST) США. Активность
раствора ²²⁶Ra составляла 31,33 Бк на апрель 1979 г. с неопределенностью 1,53 %, объем раствора составлял 54 см³. Конструкция источника показана на рис. 1.9. Первый сосуд служит для увлажнения воздуха, проходящего через раствор радия, третий сосуд выполняет охранную функцию, препятствуя уносу микрокапель радиоактивного раствора из системы.



Рис. 1.9. Конструкция источника ²²²Rn, использованная в Национальном институте радиационной защиты Швеции [52]

Принцип работы рассматриваемого эталона состоял в переводе 222 Rn, накопившегося в растворе радия, в калиброванный объем. Для этого раствор выдерживался в течение времени – от 7 ч до 14 сут – для накопления в нем известной активности 222 Rn. После этого источник подключался к вакуумированному контейнеру с объемом 4734±3 см³ и через радиоактивный раствор из баллона, выдержанного в течение длительного времени, пропускался воздух, не содержащий радон. В процессе пропускания воздуха через раствор весь накопившийся радон переходил в газовую фазу и аккумулировался в контейнере. Повторная прокачка воздуха через раствор, проведенная немедленно после первой, показала, что в источнике остается не более 0,06 % от первоначально накопленной активности [52].

Активность ²²²Rn, переведенная в контейнер, в дальнейшем использовалась для поверки вторичного эталона, использующего в качестве измерительного элемента электростатическую камеру объемом 10800 см³.

Аналогичные подходы к созданию первичных эталонов активности 222 Rn были реализованы и в целом ряде других ведущих метрологических институтов и служб различных стран мира [54–60]. Во всех приведенных работах в качестве первичного источника и эталона активности 222 Rn выступал эталонный раствор 226 Ra, как правило, изготовленный и аттестованный в NIST. Различия в построении системы передачи размера единицы активности 222 Rn обычно заключались в средствах измерения, используемых в качестве вторичных эталонов. Так, например, в работах [54–56] в качестве вторичных эталонов использовали сцинтилляционные камеры (ячейки Лукаса) с индивидуальной градуировкой каждой камеры. В работах [57, 58] использовались импульсные ионизационные камеры, а в работах [52, 53, 59] электростатические камеры. В ряде случаев в качестве вторичного эталона использовались методы гамма-спектрометрии с детекторами из особо чистого германия (НРGе) или сцинтилляционные детекторы NaI(Tl) [53, 58].

1.5.2. Первичные эталоны активности радона без использования радиевого стандарта

Использование растворов ²²⁶Ra в качестве первичного эталона активности радона представляет определенные технические и организационные сложности. Во-первых, периодическая прокачка воздуха через раствор может приводить к капельному переносу радиоактивного материала в другие части измерительной системы. Во-вторых, в соответствии с законодательством практически всех стран требования по безопасному обращению с открытыми радиоактивными материалами многократно жестче, чем к обращению с закрытыми источниками. В-третьих, строго говоря, использование радиевого стандарта нельзя считать абсолютным методом определения активности радона, хотя требуемая величина и рассчитывается с достаточной точностью, исходя из активности 226 Ra в растворе. В связи с этим были начаты разработки методов, позволяющих определить активность 222 Rn, не прибегая к радиевому стандарту.

На ранних этапах развития метрологии радона было предложено несколько оригинальных методов измерения ОА радона, не привязанных к радиевому стандарту и, таким образом, способных претендовать на роль первичного эталона.

Так, например, в работе [61] было предложено использовать для измерения ОА радона стальной цилиндрический контейнер, в который закачивалось некоторое количество радона (рис. 1.10). В исходном варианте использования такие контейнеры заполнялись пробами радиоактивных инертных газов ⁸⁵Kr или ¹³³Xe, и их активность измерялась на γ -спектрометре. При заполнении контейнера ²²²Rn все γ -излучающие дочерние продукты будут оседать на стенки контейнера, меняя тем самым геометрию измерений. В связи с этим внутреннее пространство контейнера заполнялось сетчатым материалом, обеспечивающим равномерное распределение активности ДПР радона по объему. К сожалению, в работе [61] не приведены данные по точности данного метода измерений.



Рис. 1.10. Использование стального контейнера для измерения активности ²²²Rn на γ-спектрометре [61]

Измерение активности ²²²Rn по у-излучению продуктов распада было рассмотрено и в работе [62]. В качестве источника радона использовали либо стандартный раствор радия, либо твердые источники на основе RaSO₄. Для полного перевода радона в отдельную емкость последняя охлаждалась до температуры жидкого азота и на ее стенках происходила полная конденсация ²²²Rn. Емкость представляла собой стеклянный сосуд строго сферической формы. Измерения активности ²²²Rn по его продуктам распада ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi проводилось на у-спектрометре с HPGe-детектором. Градуировка детектора осуществлялась по источнику ²²⁶Ra с известной активностью, который помещали в точку, соответствующую центру сферической емкости, наполненной ²²²Rn. В этом случае при одинаковых активностях поток γ-квантов в точке детектирования от точечного источника, объемного источника или источника, равномерно распределенного по поверхности сферы, будет одинаков. Учитывая, что основная часть активности ДПР радона оседает на стенках сосуда, методом Монте-Карло были рассчитаны поправки на поглощение у-квантов в стенках. При сопоставлении измерений, выполненных при помощи успектрометра, с активностью стандартного раствора радия было показано, что суммарная неопределенность определения активности ²²²Rn в сферической колбе по у-излучению ДПР радона составляет 2,5 %.

К методам определения активности 222 Rn по γ -излучению продуктов распада исследователи возвращаются даже после появления высокоточных абсолютных методов измерения активности радона. Причинами этого являются существенно меньшие сложность и стоимость используемой аппаратуры и высокая, с точки зрения решения практических задач, точность измерений. Так, в работе [63] активность 222 Rn в запаянной стеклянной ампуле измеряли на сцинтилляционном детекторе NaI(Tl) диаметром и высотой 5 дюймов (12,7 см) с колодцем по интегральной скорости счета, обусловленной распадом ДПР. Эффективность детектора была рассчитана методом Монте-Карло. Суммарная стандартная неопределенность измерения активности

²²²Rn данным методом составила 0,28 %, что можно считать очень хорошим достижением.

Вместе с тем ни один из рассмотренных выше методов определения активности ²²²Rn по γ-излучению продуктов распада официально в качестве первичного эталона не использовался.

Конструкция первичного эталона активности радона, не связанного с радиевым стандартом, позволяющая производить измерения активности радона абсолютным методом была описана в работах [64, 65]. В последующие годы вслед за Францией подобные конструкции первичного эталона активности радона были созданы в Германии [66], Швейцарии [67] и в Южной Корее [68]. Модифицированная система, используемая в качестве первичного эталона активности радона во Франции, описана в работе [69].

В новом подходе к созданию первичного эталона активности радона источником радона, в отличие от ранее использующихся систем, служит твердый источник ²²⁶Ra. Поэтому вся система (накопительная и измерительная камеры) может находиться при пониженном давлении $10^{-4} - 1$ Па [67–69]. После того как в накопительной камере расчетная активность радона достигнет требуемого значения, открывают вентиль между накопительной и измерительной камерами (рис. 1.11). В измерительной камере имеется площадка диаметром 5,2–7,7 мм, охлаждаемая до температуры жидкого азота и ниже. При этом весь поступивший в измерительную камеру радон конденсируется на данной охлаждаемой площадке. Специальные конструктивные меры принимаются для того, чтобы температура остальных участков измерительной камеры была выше температуры конденсации ²²²Rn.



Рис. 1.11. Блок-схема эталона активности ²²²Rn, основанная на конденсации радона на охлаждающем элементе с последующим абсолютным измерением α-активности

Измерение активности сконденсированного на охлаждаемом участке 222 Rn производится при помощи полупроводникового α -детектора, работающего в спектрометрическом режиме. Эффективность регистрации α -частиц рассчитывается исходя из прецизионного определения геометрии измерений. При этом экспериментально определяется диаметр диафрагмы *a*, диаметр площадки *b*, на которой сконденсирован радон, учитывается центровка источника относительно детектора *e*, а также изменение расстояния между источником и детектором *z* за счет температурных эффектов (рис. 1.12).



Рис. 1.12. Схема, используемая для расчетов эффективности регистрации и погрешностей измерения активности ²²²Rn в эталоне, основанном на криогенной конденсации радона

После завершения измерений охлаждаемый участок отогревается, радон переходит в газообразное состояние и затем снова конденсируется в ампулу, охлаждаемую жидким азотом (рис. 1.14). Доля потерь при переводе ²²²Rn из точки конденсации измерительной камеры в транспортную ампулу контролировалась путем повторного охлаждения точки конденсации и измерения оставшейся активности радона в системе. Приводимые в различных работах [66–69] значения суммарной стандартной неопределенности измерения лежат в интервале от 0,14 до ~1% (1 σ). Ампулы с известной активностью ²²²Rn, полученные подобным образом, могут использоваться как эталоны активности радона для поверки эталонных и рабочих средств измерения. Требованиями к использованию таких эталонов являются необходимость учета времени, прошедшего с момента измерения активности ²²²Rn, и наличие камеры с калиброванным объемом для точного вычисления значений ОА радона (уравнение 1.19).

Рассмотренные в работах [64–69] эталоны активности радона являются на настоящее время наиболее точными. Вместе с тем необходимо признать,

что столь высокая точность первичного эталона явно избыточна для решения задач, связанных как с научными исследованиями, так и с практическими работами по обеспечению радиационной безопасности персонала и населения. Далеко не все национальные метрологические центры в силу различных обстоятельств, прежде всего – технических и финансовых, могут позволить себе создание подобных систем. В связи с этим были разработаны первичные эталоны активности ²²²Rn, использующие более простые средства измерений.

Так, например, в Румынии была создана система, базирующаяся на абсолютных измерениях активности радона с использованием α-спектрометрии в жидком сцинтилляторе [70–73]. В связи с тем, что после измерения извлечение радона из жидкого сцинтиллятора невозможно, была разработана оригинальная схема измерений:

1) Радон при помощи вакуумной системы переводится из твердого источника в газообразный и транспортируется в первичный стеклянный или металлический сосуд, охлаждаемый при помощи жидкого азота до температуры 77 К.

 Проводятся относительные измерения активности радона, находящегося в ампуле или металлическом сосуде, при помощи γ-спектрометра с НРGе-детектором или ионизационной камеры с колодцем.

3) Сосуд, прошедший измерения на γ-спектрометре или ионизационной камере, подключается к вакуумированной системе, в состав которой входит ампула с жидким сцинтиллятором, охлажденная до температуры 77 К. При этом часть радона растворяется в жидком сцинтилляторе.

4) Ампула с жидким сцинтиллятором и растворенным в нем радоном при помощи вентилей отсоединяется от системы и герметизируется путем оплавления капилляра, соединяющего ампулу с системой.

5) Радон, оставшийся в системе, вновь конденсируется в первичный сосуд, охлаждаемый до температуры жидкого азота.

6) Активность радона, поглощенного в жидком сцинтилляторе, измеряется абсолютным методом при помощи α-спектрометра. Активность радона в первичном сосуде повторно измеряется на γспектрометре или ионизационной камере для определения доли активности радона, поглощенной в жидком сцинтилляторе.

8) На основании абсолютных измерений активности радона, поглощенного в жидком сцинтилляторе, и относительных измерений активности радона в первичном сосуде на γ-спектрометре или ионизационной камере рассчитывается активность радона, оставшаяся в первичном сосуде после перехода части активности в жидкий сцинтиллятор.

Суммарная стандартная неопределенность определения активности радона в пробе, используемой как эталон, составляет 0,7 %.

Еще одним абсолютным методом измерения активности радона является использование пропорционального счетчика внутреннего наполнения [74]. Эффективность регистрации детектора была рассчитана при помощи компьютерного моделирования. Суммарная стандартная неопределенность метода составляет ~2 %, что является вполне достаточной величиной для использования данного устройства для поверки рабочих средств измерений, в том числе требующих повышенной точности.

Дополнительным толчком к развитию методов абсолютного измерения активности или объемной активности радона послужила необходимость создания первичных эталонов OA ²²⁰Rn – торона. Вследствие того, что период полураспада торона очень мал – 55,6 с, все ранее рассмотренные методы абсолютного измерения активности или OA радона оказываются непригодны. В связи с этим были разработаны методы, позволяющие контролировать OA торона абсолютными методами непосредственно в процессе создания атмосферы с требуемыми характеристиками.

Одним из таких методов является метод электростатического осаждения ДПР торона на поверхностно-барьерный детектор из объема малой камеры (диаметр 4 и высота 1 см) при непрерывной прокачке через нее воздуха, содержащего ²²⁰Rn [75, 76] (рис. 1.13).



Рис. 1.13. Метод абсолютного измерения ОА торона при помощи электростатического осаждения продуктов распада

В силу того, что объем измерительной камеры мал, все α -частицы, достигшие поверхности детектора, имеют достаточную энергию для их регистрации. Эффективность регистрации частиц, обусловленная геометрическим фактором, рассчитывалась методом Монте-Карло. В работах [75, 76] отмечается, что данная система может быть использована не только как первичный эталон ²²⁰Rn, но и как эталон ²²²Rn. В предварительных экспериментах [76] было показано, что эффективность регистрации для ²²²Rn составляет 35±2 %. Данная неопределенность является слишком высокой для эталона, но отмечается, что впоследствии она может быть снижена до 0,3 %.

1.5.3. Методы, основанные на определении коэффициента эманирования твердых источников

При разработке эталонов активности или объемной активности радона полный отказ от связи с радиевым стандартом не произошел. Были разработаны эталоны на основе твердых источников ²²⁶Ra, в которых контролировался коэффициент эманирования радона. Так, например, в Национальном институте стандартов и технологий США были разработаны и выпускаются закрытые эталонные источники, позволяющие производить поверку как рабочих, так и эталонных средств измерения ОА радона [77–80]. Источник представляет собой герметичную капсулу из полиэтилена, содержащую внутри раствор ²²⁶Ra с активностью от 5 до 5000 Бк (рис. 1.14).



Рис. 1.14. Размеры в мм эталонного источника NIST, используемого для поверки радоновых приборов [80]

Для данных источников с высокой точностью определяются два ключевых параметра – активность ²²⁶Ra и коэффициент эманирования:

$$\chi = \frac{A_{Rn-222}^{\text{SMAH}}}{A_{Ra-226}} , \qquad (1.20)$$

где A_{Rn-222}^{3MaH} – активность радона, эманирующего из источника, A_{Ra-226} – активность ²²⁶Ra в источнике. Коэффициент эманирования показывает, какая доля радона, образующегося в источнике при распаде ²²⁶Ra, переходит в газовую фазу.

Паспортная активность радия в источнике указывается со стандартной неопределенностью ~1 %, стандартная неопределенность коэффициента эманирования, по данным работы [80], также составляет величину ~1 %, хотя в паспорте на источник указывается величина 2,6 %. Для проведения поверки источник помещается в специальный стеклянный контейнер, снабженный двумя кранами (рис. 1.15).

После достижения требуемой активности 222 Rn в контейнере, рассчитанной исходя из паспортных значений активности 226 Ra, коэффициента эманирования и времени *t*, прошедшего с момента предыдущей продувки контейнера, радон может быть переведен в камеру с известным объемом *V* для получения заданного значения OA радона.



Рис. 1.15. Конструкция контейнера, используемого при поверке средств измерения ОА радона при помощи эталонного источника NIST

$$A_V^{Rn} = \frac{A_{Ra} \cdot \chi}{V} \left(1 - e^{-\lambda_{Rn} t} \right), \tag{1.21}$$

где A_{Ra} – активность радия в источнике; χ – коэффициент эманирования; λ_{Rn} – постоянная распада радона

В другом варианте использования данного источника поверка ведется в режиме непрерывной прокачки воздуха через контейнер, в котором расположен источник NIST [79]. При этом ОА радона рассчитывается по формуле

$$A_V^{Rn} = \frac{A_{Ra} \cdot \chi \cdot \lambda_{Rn}}{v} \quad , \tag{1.22}$$

где *v* – скорость прокачки воздуха через контейнер.



Рис. 1.16. Эманирующий источник радона, разработанный в Чешском институте метрологии [81]: 1 – шаровой вентиль; 2 – эманирующий материал; 3 – держатель; 4 – фланец; 5 – крепежный винт

Источники подобного типа были разработаны в Чешском институте метрологии [81] (рис. 1.16). В отличие от эталонных источников NIST данные источники имеют существенно более высокую активность (от 20 кБк до 2 МБк) и радиевый источник является твердым. Общая неопределенность измерения активности ²²⁶Ra составляет 1,6 %. Коэффициент эманирования источника определяется путем измерений на НРGe γ-спектрометре. В каталоге [81] достаточно неопределенно указывается, что коэффициент эманирования источницы».

Разработка стандартного источника радона с заданным коэффициентом эманирования описана в работе [82]. В данной работе коэффициент эманирования источника определялся путем измерения активности 226 Ra по линии излучения 186,2 кэВ и активности ДПР радона по характерным для них линиям излучения 214 Pb (295 и 352 кэВ) и 214 Bi (609 и 1120 кэВ). Параллельно производились измерения активности радия при помощи α -спектрометра. При измерениях активности 226 Ra по α - и γ -излучению было обнаружено систематическое превышение результатов измерений на γ -спектрометре над измерениями по α -излучению в 4,4 %. Приводимая в статье неопределенность значения активности радона составила 3 %.

К общим недостаткам источников, описанным в работах [77–82], можно отнести то, что при непосредственном проведении поверки приборов по стандартным эманирующим источникам коэффициент эманирования не контролируется.

Оригинальная конструкция первичного эталона ²²⁰Rn была разработана в Физико-техническом федеральном институте (Physikalisch-TechnischeBundesanstalt, PTB), Германия. Принцип работы эталона основан на непрерывном контроле коэффициента эманирования из источника ²²⁸Th путем одновременного измерения активности ²²⁴Ra и ²¹²Pb [83–85] (рис. 1.17). Коэффициент эманирования источника рассчитывается как

$$\chi = \frac{A_{Rn-220}}{A_{Th-228}} = 1 - \frac{R_2 \cdot A_{Pb-212}}{R_1 \cdot A_{Ra-224}},$$
(1.23)

где A_{Rn-220} – активность ²²⁰Rn, покинувшая источник; A_{Th-228} , A_{Ra-224} и A_{Pb-212} – активности соответствующих нуклидов в твердом источнике; R_1 и R_2 – поправки на эффект ядер отдачи, вылетающих из источника и оседающих на ближайших поверхностях. Измерения активности ²²⁴Ra и ²¹²Pb производились по линиям γ -излучения 240,986 и 238,632 соответственно. Близость данных линий излучения позволила не использовать поправку на изменение относительной эффективности детектора.



Рис. 1.17. Общая схема первичного эталона ОА торона [83]

Одним из ключевых моментов использования данного метода получения эталонной атмосферы ²²⁰Rn является использование большой скорости прокачки воздуха в замкнутой системе, чтобы активность, выносимая из эманационной камеры, как можно скорее попадала в объем калибровочного контейнера. Еще одним важным моментом в создании первичного эталона ²²⁰Rn является однородность распределения активности по объему калибровочного контейнера. Суммарная стандартная неопределенность определения OA с учетом негомогенности распределения торона составила 2,5 % [83].

С учетом относительной простоты проведения измерений и учитывая то, что HPGe-детектор является хоть и относительно дорогостоящим, но стандартным метрологическим средством, обеспечивающим высокую точность и стабильность измерений, подходы, разработанные для создания первичного эталона ²²⁰Rn, были использованы и для разработки эталонов ²²²Rn [84–86]. Коэффициент эманирования рассчитывался как

$$\chi = \frac{A_{Rn-222}}{A_{Ra-226}} = 1 - \frac{A_{Pb-214}}{A_{Ra-226}}.$$
(1.24)

Суммарная неопределенность определения ОА радона в подобной системе оценивается в 1,1 % [85]. Несмотря на то, что точность определения ОА радона в эталонах на базе HPGe-детектора ниже, чем в системах с вымораживанием радона и абсолютным измерением его активности на α-спектрометре [81–85], она является достаточной для поверки как эталонных, так и рабочих средств измерения. В связи с этим дальнейшее развитие данных систем представляет несомненный научный и практический интерес.

1.6. Первичные эталоны объемной активности продуктов распада радона

Первичные эталоны ОА продуктов распада радона менее разнообразны по техническим подходам, чем эталоны ОА радона. В основном эталонные установки по воспроизведению единицы объемной активности ДПР радона представляют собой камеры объемом от 2 до 45 м³, снабженные системами контроля температуры, влажности и концентрации аэрозолей [87–97]. Как правило, в качестве генератора стандартных аэрозолей используется устройство, работающее по принципу конденсации паров воска карнаубы при заданной температуре [95]. Диапазон размеров образующихся аэрозолей в зависимости от условий конденсации может варьироваться от 10 нм до 1 мкм при малом разбросе размеров частиц и сферичности их формы.

Отбор проб ДПР радона производится на аэрозольные фильтры. Объемная активность продуктов распада обычно измеряется при помощи αспектрометра, однако в ряде случаев используется одновременное измерение активности улавливающего элемента как на α-, так и на γ-спектрометре [89]. При этом могут проводиться не только измерения общей активности ДПР радона, но и раздельные измерения неприсоединенной (АМТД 1–5 нм) и аэрозольной (АМАД 0,3–1,0 мкм) фракций [89].

1.7. Постановка задачи исследования

Средства воспроизведения единиц как ОА радона, так и ДПР радона являются достаточно сложными техническими устройствами, требующими использования уникального оборудования, высокой точности проведения измерений и высокой квалификации обслуживающего персонала.

Рассмотренные выше конструкции первичных эталонов ОА и ЭРОА радона являются в большинстве случаев современными техническими средствами, обеспечивающими высокую точность воспроизведения соответствующих единиц измерения. Вместе с тем они не лишены и вполне определенных недостатков. Прежде всего, на современном этапе развития метрологии, по-видимому, необходимо отказаться от жесткой привязки первичного эталона к радиевому стандарту, как это и сделано в большинстве стран. Применение жидких растворов ²²⁶Ra приводит к целому ряду технических, организационных и даже юридических сложностей, ограничивающих их использо-

вание. Использование закрытых источников ²²⁶Ra с предварительно определенным коэффициентом эманирования не позволяет получить достаточную точность воспроизведения единицы ОА радона в силу того, что со временем коэффициент эманирования источника может изменяться.

Прямое измерение активности радона в сосуде, куда он может быть переведен из измерительной камеры, как правило, не обладает достаточной для средства воспроизведения единиц ОА радона точностью вследствие недостаточного учета геометрического фактора.

Разработка первичного эталона ОА радона, основанного на вымораживании радона на площадке малого размера с последующим измерением активности по α-излучению [71–75], представляет достаточно большие технические сложности, сопряженные с необходимостью как создания высокотехнологичной вакуумной системы, так и со сложностями, связанными с прецизионными измерениями активности методом определенного телесного угла. При этом точность таких эталонов [71–75] часто является избыточной для поверки как эталонных, так и рабочих средств измерений, используемых в повседневной практике.

Использование метода жидкого сцинтиллятора для абсолютных измерений активности в сочетании с относительными измерениями активности радона в сосуде при помощи HPGe-детектора требует одновременного применения достаточно сложных и относительно дорогостоящих средств измерений. При этом точность жидкостного сцинтилляционного спектрометра может быть недостаточной в силу влияния различных факторов, оказывающих воздействие на его работу.

Наиболее перспективным в плане реализации требуемых характеристик к средству воспроизведения единиц ОА радона представляется дальнейшее развитие подходов, реализованных при создании эталона ОА радона и торона [83–85] с непрерывным контролем коэффициента эманирования источника ²²⁶Ra путем измерения соотношения активностей ²²⁶Ra и ²¹⁴Pb или ²¹⁴Bi в источнике. Во многих первичных эталонах объемной активности ДПР радона производятся измерения объемной активности всех короткоживущих продуктов распада ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi (²¹⁴Po) [50, 88–92]. Как правило, это производится путем одновременного измерения активности пробы при помощи αи γ-спектрометров [88–92]. Необходимо отметить, что подобные измерения, хотя и обладают высокой точностью, не лишены ряда недостатков, свойственных α-спектрометрии. Влияние самопоглощения α-частиц в фильтре может вносить заметные погрешности в измерения активности ²¹⁸Po и ²¹⁴Po. Кроме того, необходимость одновременного использования α- и γспектрометров существенно усложняет конструкцию экспериментальной установки и увеличивает ее стоимость. При этом суммарная неопределенность эталона ~2 % [92] во многих случаях является избыточной для приборов, используемых в практических измерениях.

Разработка и создание средства воспроизведения единиц измерения ОА и ЭРОА радона позволят иметь национальные системы поверки радоновых приборов, не зависящих от метрологических центров других стран. При этом необходимо учитывать ограниченность ресурсов, которые могут быть использованы для создания подобных эталонов. По возможности при создании таких средств воспроизведения необходима максимальная унификация используемого оборудования, чтобы одни и те же стандартные средства измерений могли быть использованы как в эталоне ОА радона, так и эталоне ЭРОА радона. Для решения практических задач метрологического обеспечения радоновых измерений расширенная неопределенность определения значений ОА радона и его продуктов распада не должна превышать 5-6 %. При этом желательно максимально исключить влияние неконтролируемых источников случайных и систематических погрешностей. Средством измерений, удовлетворяющим указанным требованиям, является у-спектрометр на базе НРGе-детектора. Исходя из вышеизложенного цель настоящей работы сформулирована так:

Цель исследования состоит в научном обосновании и усовершенствовании косвенных методов измерений OA и ЭРОА радона и разработке на этой основе макетных образцов прототипов специальных эталонов воспроизведения этих величин с допустимой неопределённостью, не превышающей 3 %, а также методик передачи размера этих величин образцовым и рабочим средствам измерений.

ГЛАВА 2. ПЛАНИРОВАНИЕ, МЕТОДИЧЕСКОЕ И ТЕХНИЧЕСКОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

2.1. Требования к разработке средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона

Как уже отмечалось выше, одним из требований к разработке средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона является максимальная унификация средств измерений, используемых при их создании. Это позволит иметь единый аппаратно-программный комплекс для решения обеих задач. Одним из существенных требований к разрабатываемым средствам воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона следует отнести их максимальную согласованность и совместимость с существующими средствами измерений и эталонными мерами, входящими в систему передачи размера единицы активности. При этом определение активности или ОА радона не должно быть привязано к вещественному эталонному источнику ²²⁶Ra. По возможности также желательно исключить максимальное количество источников систематических и случайных погрешностей, влияющих на точность определения ОА или ЭРОА радона абсолютным методом. К таким источникам относятся неопределенности, обусловленные изменением эманирующих характеристик источника радона, влиянием геометрии измерений, самопоглощением αизлучения в материале источника или фильтра и др. С другой стороны, излишнее усложнение конструкции первичного эталона для повышения его точности приведет к необоснованному с практической точки зрения удорожанию конструкции и увеличению сложности ее эксплуатации.

Для реализации данных требований было решено разработать средства воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона с использованием единого средства измерений – *γ*-спектрометра на базе НРGe-детектора.

2.2. Основные элементы конструкции средства воспроизведения ОА и ЭРОА радона

2.2.1. Гамма спектрометр РКГ-01

Для измерения активности эманирующих источников и аэрозольных фильтров в работе был использован гамма-спектрометр РКГ-01 с детектором из особо чистого германия производства фирмы Baltic Scientific Instruments. Прибор предназначен для измерений активности и удельной активности гамма-излучающих радионуклидов в различных материалах, продуктах промышленного и сельскохозяйственного производства, медико-биологических объектах и в условиях стационарной лаборатории.

Установка обеспечивает выполнение следующих функций:

- накопление приборных спектров;
- визуализацию спектров на мониторе ПЭВМ;
- обработку спектров (определение центроид и площадей пиков полного поглощения за вычетом фона);
- градуировку по энергии и абсолютной эффективности регистрации;
- идентификацию радионуклидов и определение их активности в измеряемой пробе;
- визуализацию на мониторе ПЭВМ.

Блок детектирования гамма-излучения на основе детектора из особо чистого германия БДЕГ-40190 предназначен для преобразования энергии квантов гамма-излучения в пропорциональные по амплитуде электрические сигналы для последующей обработки в спектрометрическом устройстве или иной ядерно-физической аппаратуре. Номинальные характеристики установки представлены в табл. 2.1.

Набор и запись спектров гамма-излучения производились при помощи программы MSPA 5.03, поставляемой вместе со спектрометром РКГ-01. Определение эффективности регистрации детектора было выполнено при помощи образцовых спектрометрических гамма-источников (ОСГИ), атте-

58

стованных в ВНИИМ им. Д. И. Менделеева (Санкт-Петербург). Для градуировки спектрометра по энергии и эффективности регистрации были использованы ОСГИ, содержащие радионуклиды ²⁴¹Am, ¹³³Ba, ¹⁵²Eu, и ¹³⁷Cs. Характеристики используемых источников представлены в табл. 2.2.

Таблица 2.1

Номинальные значения основных технических характеристик спектрометрической установки РКГ-01

N⁰		Номинальное зна-
п/п	Паименование характеристики	чение величины
1	Абсолютная чувствительность к потоку γ -квантов с <i>E</i> = 661 кэB, (имп/с)/(квант/с), не менее	$4 \cdot 10^{-3}$
2	Предел допускаемой основной погрешности измерения УА радионуклида ¹³⁷ Cs для времени измерения 3 ч, %, не более	5
3	Диапазон энергий регистрируемых квантов, МэВ	0,05 – 2,8
4	Энергетическое разрешение для энергии 1,33 МэВ, кэВ, не более	1,9
5	Относительная эффективность регистрации для энергии 1,33 МэВ, %, не менее	40

59

Характеристики источников ОСГИ, использованных для градуировки гаммаспектрометра РКГ-01, по энергии и эффективности регистрации

	Т _{1/2} , лет	Е _γ ,кэВ	Квантовый выход, %	Паспортная активность	Расширенная не- определенность
Источник				на дату	значения актив-
				10.01.1992,	ности, %
				кБк	(P = 0,99)
	10,51	81,0	33		
		276,4	6,9		
¹³³ Ba		302,8	19	4,12	1,7
		356,0	62		
		383,9	8,7		
	13,54	121,8	28		
		244,7			
		344,3	27		
¹⁵² Eu		778,9	12	4,33	2
		964,0	15		
		1085,8			
		1408,	10		
²⁴¹ Am	433	59,5	35	26,8	1,5
¹³⁷ Cs	30,7	661,3	85	10,64	1,8

Спектры гамма-излучения от источников ОСГИ были обработаны при помощи программного пакета SpectraLineUltimateGammaLab. Градуировка спектрометра по энергии была выполнена по линиям гамма-излучения образцовых источников, представленных в табл. 2.2 (рис. 2.1 и 2.2). Рабочий диапазон спектрометра определялся энергиями линий использованных образцовых источников и составил 60–1408 кэВ. Градуировка по энергии была представлены в виде

$$E(Ch) = a_0 + a_1 \cdot Ch + a_2 \cdot Ch^2 + a_3 \cdot Ch^3 \quad , \tag{2.1}$$

где E(Ch) – зависимость энергии от номера канала; a_0 , a_1 , a_2 , a_3 – градуировочные коэффициенты; Ch – номер канала. В дальнейшем осуществлялась градуировка спектрометра по разрешению в зависимости от энергии гаммаизлучения и эффективности регистрации (рис. 2.3).



Рис. 2.1. Автоматический поиск пиков полного поглощения от образцовых источников



Рис. 2.2. Градуировка гамма-спектрометра РКГ-01 по энергии.



Рис. 2.3. Градуировка гамма спектрометра РКГ-01 по эффективности регистрации гамма-квантов в пике полного поглощения

С учетом того, что определение активности эманирующих источников 226 Ra и аэрозольных фильтров производилось в различной геометрии, градуировка гамма-спектрометра РКГ-01 была проведена для каждого типа измерений. Пример рабочего спектра источника 226 Ra представлен на рис. 2.4. Измерения фона производились в течение 24 ч при закрытой крышке спектрометра. Полученный таким образом фоновый спектр использовался при обработке экспериментальных данных. При наборе фонового спектра в нем отсутствовали линии излучения, характерные для 226 Ra.



Рис. 2.4. Пример рабочего спектра источника ²²⁶Ra

2.2.2. Источники радона и дополнительная аттестация их активности

При разработке эталона ОА радона с непрерывным контролем коэффициента эманирования необходимо выполнение ряда требований:

 активность источника радона должна быть достаточной для обеспечения требуемого уровня ОА радона в системе;

источник радона должен быть достаточно стабильным, и значе ние коэффициента эманирования не должно существенно зависеть от влия ния внешних факторов (температура, влажность, атмосферное давление);

 конструкция эманационной камеры не должна нарушать герметичность всей системы;

 конструкция эманационной камеры должна обеспечивать градуировку гамма-спектрометра в геометрии, соответствующей геометрии расположения эманирующего источника. В качестве источника радона были использованы специальные эманирующие источники ²²⁶Ra, разработанные и изготовленные в Радиевом институте им. В. Г. Хлопина (Санкт-Петербург) (рис.2.5).



Рис. 2.5. Специальные эманирующие источники ²²⁶Ra

Паспортная активность источников составляла 3,95 и 35,3 кБк с суммарной погрешностью определения активности 5 % при доверительной вероятности 0,95. Данные источники были выпущены до вступления в силу ГОСТ Р 54500.3–2011, поэтому данную величину можно рассматривать как расширенную неопределенность при доверительной вероятности 0,95 (k = 2). Следовательно, относительную стандартную неопределенность, связанную с неопределенностью измерения активности ²²⁶Ra в эманирующем источнике, на основании паспортных данных можно оценить как $\tilde{u}_B(Ra) = 2,5$ %. Предварительные оценки и пробные эксперименты показали, что данный уровень стандартной неопределенности является недостаточным для создания средств воспроизведения ОА радона с заданными параметрами. В связи с этим, для более точной независимой оценки активности ²²⁶Ra в эманирующих источниках и снижения относительной стандартной неопределенности

Активность используемых источников была сопоставлена с активностью двух стандартных образцовых источников, изготовленных и аттестованных в Национальном институте стандартов и технологий, США – NIST 4968-117 и NIST 4973-15. Конструкция образцового источника NIST представлена на рис. 1.14. Характеристики образцовых источников, используемых для верификации эманирующих источников ²²⁶Ra представлены в табл. 2.3.

Таблица 2.3

Характеристики образцовых источников, используемых для верификации эманирующих источников ²²⁶Ra

Тип источника	Активность, Бк	Относительная стандартная
		неопределенность \tilde{u}_B^{NIST} , %
NIST 4968-117	382,1	0,70
NIST 4973-15	468,1	0,66

Сопоставление активности образцовых и используемых источников 226 Ra было выполнено на описанном выше γ -спектрометре РКГ-01. Сличение активности источников производилось по собственной линии γ -излучения 226 Ra с энергией 186,2 кэВ. Для уменьшения влияния геометрии измерений исследуемые источники устанавливались в специально разработанный держатель, обеспечивающий фиксированное расстояние между детектором и источником 100 мм (максимальное удаление от детектора, позволяемое конструкцией его радиационной защиты).

Поправка на различие в геометриях образцовых и используемых источников ²²⁶Ra была рассчитана при помощи программного пакета Microshield 11.2 и составила $k_{\text{геом}}$ =0,937±0,001. Было получено, что активности используемых источников составляют 3,96 и 35,3 кБк, соответственно. Данные величины отличались от значений, указанных в паспорте на источник, от 0,08% до 0,5 %, в зависимости от типа образцового источника с которым производилось сравнение.

При наборе спектра для обоих образцовых источников была обеспечена относительная стандартная неопределенность по типу A, обусловленная пуассоновским законом распределения, на уровне \tilde{u}_A^{NIST} =0,62-0,66 %. Ддя реализации такой неопределенности длительность набора спектра образцовых источников составляла 130 ч. Для используемых источников ²²⁶Ra относительная стандартная неопределенность по типу A, обусловленная более высокой активностью источников, составила \tilde{u}_A^{Ra} =0,45 %. Суммарная относительная неопределенность активности ²²⁶Ra в эманирующих источниках, используемых в настоящей работе, составила u(Ra)=1,1 %.

2.2.3. Конструкция эманационной камеры

Для того, чтобы непосредственно контролировать коэффициент эманирования источника ²²⁶Ra, необходимо эманационную камеру, в которой находится источник, установить непосредственно на НРGе-детектор. Для этого была изготовлена стальная герметичная камера, снабженная двумя штуцерами для подключения в общую систему (рис. 2.6). Объем камеры составил 2,1·10⁻⁴ м³. На дне камеры были отфрезерованы четыре посадочных гнезда для установки источников – эманирующего источника ²²⁶Ra и образцовых источников γ -излучения ОСГИ-3, по которым производилась градуировка γ спектрометра. Поскольку геометрия образцовых источников γ -излучения отличается от геометрии эманирующего источника ²²⁶Ra, для источников ОСГИ-3 были изготовлены специальные алюминиевые держатели (рис. 2.7). Для образцового источника, установленного в такой держатель, расстояние от активного слоя до дна эманационной камеры и толщина поглощающего слоя алюминия соответствовали таким же параметрам для источника ²²⁶Ra, что обеспечивало идентичность условий градуировки и измерений.



Рис. 2.6. Эманационная камера



Рис. 2.7. Установка эманирующего источника ²²⁶Ra и образцовых источников γ-излучения ОСГИ-3 в корпусе эманационной камеры

2.2.4. Конструкция камеры для отбора проб аэрозолей ДПР радона

Конструкция камеры, в которой генерировались аэрозоли дочерних продуктов распада радона, в целом аналогична конструкции, используемой в Государственном первичном специальном эталоне единицы объемной активности радиоактивных аэрозолей ГЭТ 39-2014. В период с 1998 по 2010 г. камера входила в состав рабочего эталона ДПР радона Региональной поверочной лаборатории радоновых приборов, действующей на базе Уральского государственного технического университета – УПИ. Камера представляет собой два соединенных вместе пластиковых бокса, каждый объемом по 1 м³ (рис. 2.8).

Боксы соединялись между собой при помощи открытого переходного соединения размерами 60×60 см. Отбор проб радиоактивных аэрозолей проводился через специальный переходный шлюз, позволяющий устанавливать и убирать пробоотборник с аэрозольным фильтром, не вскрывая бокс (рис. 2.9).



Рис. 2.8. Конструкция камеры для отбора проб аэрозолей ДПР радона



Рис. 2.9. Схема отбора проб радиоактивных аэрозолей: 1 – пробоотборник с аэрозольным фильтром; 2 – соединительные шланги; 3 – подключение к воздуходувке; 4 – радиометр радона RAMON-01; 5 – радоновый бокс

Внутри бокса была помещена шкала от прибора, выпущенного в 50-х гг. XX в. и содержащая светосостав постоянного действия на основе ²²⁶Ra. Данная шкала являлась источником ²²²Rn. Уровни ЭРОА радона в камере составляли 2000–4000 Бк/м³.

Соотношение между активностью ДПР радона, связанной с аэрозольными частицами, и активностью, обусловленной так называемой неприсоединенной фракцией с АМТД ~ 1 нм, существенно зависит от концентрации аэрозольных частиц в атмосфере экспериментальной камеры. В связи с этим в камере была предусмотрена возможность изменения концентрации аэрозольных частиц за счет распыления состава на основе глицерина. Контроль концентрации аэрозольных частиц проводился при помощи диффузионного аэрозольного спектрометра (ДАС), модель 2702-М (рис. 2.10). Технические характеристики прибора представлены в табл. 2.4.



Рис. 2.10. Диффузионный аэрозольный спектрометр (ДАС), модель 2702-М

Долю неприсоединенной фракции в атмосфере радонового бокса оценивали при помощи отбора проб на три стальных сетчатых экрана с диаметром волокон 30 мкм и шириной раскрытия 40 мкм, установленных перед аэрозольным фильтром. Диаметр 50 % отсечки для трех стальных сеток, играющих роль диффузионного фильтра, составляет 6,4 нм [98]. Отношение активности, осевшей на сетчатых экранах, к суммарной активности на экранах и финишном фильтре является долей «неприсоединенной» фракции. Зависимость доли неприсоединенной фракции от концентрации частиц аэрозолей представлена на рис. 2.11.



Рис. 2.11. Зависимость доли неприсоединенной фракции от концентрации аэрозольных частиц.

Таблица 2.4

Технические характеристики диффузионного аэрозольного спектрометра (ДАС) модель 2702-М

Диапазон измеряемых размеров частиц	5–200 нм, 0,2–10 мкм	
Предел измеряемых концентраций	10 ⁵ частиц в куб. см	
Диапазон измеряемых относительных	5-100 % (точность +/- 3 %)	
влажностей		
Точность измерения температуры	+/- 0,4 °C	
Точность измеряемых давлений	+/-1,5 %	
Представление информации	графическое и табличное.	
Операционная система РС	Windows XP	
Время одного измерения	1 мин	
Время непрерывного измерения	до 240 ч	
Источник питания	переменный ток 240 В, 50 Гц	
	постоянный ток 12 В	

2.2.5. Накопительная камера

Для создания эталонной атмосферы с заданным значением ОА радона в относительно большом объеме был использован в качестве накопительной камеры герметичный контейнер производства фирмы Genitron Instruments GMBH с калиброванным объемом $5,04\cdot10^{-2}\pm1\cdot10^{-4}$ м³, предназначенный для поверки приборов, а также для определения коэффициента эманирования радона из различных материалов (рис. 2.12). Контейнер имеет герметичное уплотнение крышки, входной и выходной штуцеры, снабженные кранами, смотровые окна, позволяющие непосредственно считывать показания с дисплея прибора, находящегося внутри контейнера, вводы для подключения разъема RS232 и питания для прибора, размещенного в контейнере. Внутри контейнера размещен вентилятор, обеспечивающий равномерное перемешивание атмосферы.



Рис. 2.12. Накопительная камера

2.3. Вспомогательное оборудование, используемое при разработке и средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона

При проведении измерений необходимо убедиться, что результаты оценок ОА и ЭРОА радона, полученные при испытаниях средств воспроиз-

ведения единиц ОА и ЭРОА радона, соответствуют реальным значениям данных величин. Кроме того, было необходимо отработать механизм передачи размера единицы измерения от средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона к эталонным средствам измерений. Для этого были использованы средства измерений, которые по своим характеристикам могли соответствовать эталонным средствам измерений.

2.3.1. Paдон-монитор AlphaGUARD PQ2000

В качестве контрольного прибора при разработке и испытании средства воспроизведения единицы ОА радона использовался радон-монитор AlphaGUARD PQ2000 производства фирмы Genitron Instriments GMBH (Германия). Данный прибор, выпускающийся уже около 20 лет, зарекомендовал себя как средство измерений, отличающееся высокой точностью и стабильностью в работе. Во многих метрологических центрах Европы и мира радонмонитор AlphaGUARD используется в качестве вторичного эталона при проведении поверки [22, 24, 56, 57]. В России радон-монитор AlphaGUARD внесен в Государственный реестр средств измерений как эталонное средство измерений.

Радон-монитор AlphaGUARD PQ2000 предназначен для измерения объемной активности радона в воздухе в двух режимах. В режиме пассивного отбора пробы исследуемый газ поступает за счет диффузии через большой стекловолоконный фильтр в ионизационную камеру. В активном режиме, обеспечиваемом воздуходувкой, происходит прокачка анализируемого воздуха через ионизационную камеру. Чувствительным элементом радонмонитора является импульсная ионизационная камера объемом 0,56 л. В основу измерения объемной активности радона в воздухе положен принцип спектрометрического анализа числа и формы импульсов от α -частиц, возникающих в результате распада ²²²Rn и его короткоживущих дочерних продуктов в объеме камеры, так называемая 3D-спектрометрия. Одновременно с измерением объемной активности радона AlphaGUARD регистрирует темпера-
туру, относительную влажность воздуха и атмосферное давление. Измеренные значения всех параметров за очередной (текущий) цикл регистрации высвечиваются на дисплее радон-монитора и сохраняются в памяти прибора. Прибор может работать в 10-минутном активном режиме прокачки, а также 10- либо 60-минутном диффузионном режиме пассивного отбора. Основные технические характеристики AlphaGUARD PQ 2000 представлены в табл. 2.5.

Таблица 2.5.

Активный объем детектора	0,56 л
Чувствительность детектора	1 имп/мин на 20 Бк/м ³
Диапазон измеряемой объемной активности радо-	$2-2.10^{6}$ Бк/м ³
на	
Предел расширенной неопределенности измере-	8 %
ний (Р=0,95)	0 /0

Основные технические характеристики AlphaGUARD PQ 2000

Перед началом экспериментов была проведена поверка одновременно двух приборов AlphaGUARD с использованием эталона объемной активности радона – NIST SRM 4968-117. Эталон состоит из полиэтиленовой капсулы с раствором ²²⁶Ra, которая помещена в стеклянную ампулу объемом 20 мл, с двумя вентилями (рис. 1.11). Раствор содержит хлорид ²²⁶Ra, хлорид бария и соляную кислоту. Эталон аттестован по двум параметрам, которые позволяют рассчитать накопленную активность радона-222: активность ²²⁶Ra в капсуле и коэффициент эманирования ²²²Rn (табл. 2.6)

№ п/п	Наименование характеристики	Номинальное значение величины
1	Активность ²²⁶ Ra	382,1 Бк
2	Относительная стандартная неопределен- ность активности ²²⁶ Ra	0,7 %
3	Коэффициент эманирования ²²² Rn	0,884 при 21 ⁰ C
4	Относительная стандартная неопределен- ность коэффициента эманирования	2,6 %
	Температура, при которой значение коэф- фициента эманирования остается в указан- ных пределах	(18–24) ⁰ C
5	Дата изготовления	15.09.1998

Основные характеристики источника NIST SRM 4968-117

Для создания атмосферы с заданной объемной активностью радона был использован герметичный контейнер производства фирмы Genitron Instruments GMBH с калиброванным объемом 50,4 л. При помощи помпы была произведена перекачка радона из эталона в контейнер (рис. 2.13). Далее измерения объемной активности радона в контейнере проводились по замкнутому циклу: 2 прибора были соединены последовательно между собой, контейнером и помпой (рис. 2.14 и 2.15).



Рис. 2.13. Схема перевода ²²²Rn из источника NIST SRM 4968-117 в контейнер



Рис. 2.14. Схема поверки радон-мониторов AlphaGUARD PQ2000



Рис. 2.15. Поверка радон-мониторов Alpha GUARD PQ2000

Через несколько 10-минутных циклов оба прибора показывали практически одинаковые значения объемной активности радона. Расчетное значение объемной активности радона определяется по формуле:

$$C_{Rn} = A_{Ra} \cdot \exp(-\lambda_{Ra}t) \frac{f}{V_{\Im \kappa} + 2V_{AG}} + C_{Rn0} \quad , \qquad (2.2)$$

где A_{Ra} – активность радия; λ_{Ra} – постоянная распада радия; t – время, прошедшее с момента изготовления эталона; f – коэффициент эманирования; $V_{3\kappa}$ – объем эманационного контейнера; V_{AG} – объем ионизационной камеры AlphaGUARD; C_{Rn0} – среднее значение фона.

Серия показаний приборов была статистически обработана и произведен расчет объемной активности радона по формуле (2.2). Результаты представлены в табл. 2.7. Результаты поверки приборов AlphaGUARD PQ2000 № 1478 и 1517 с помощью источника NIST SRM 4968-117

AlphaGUARD, №	Среднее значение фона, Бк/м ³	Расчетное значение объемной активности радона, Бк/м ³	Среднее значение показаний прибора, Бк/м ³
1478 1517	19±3	6540±18	6640±79 6340±47

Примечание: указана стандартная неопределенность измеряемой или расчетной величины.

Как видно из табл. 2.6, показания обоих приборов хорошо согласуются не только с расчетным (заданным) значением объемной активности радона, но и между собой. По результатам серии из шестнадцати измерений была рассчитана расширенная суммарная стандартная неопределенность приборов. Она составила 5,4 % (k=2). Вклад неопределенностей эталона NIST в суммарную неопределенность поверки составил 94 %.

К сожалению, проведенная в этой работе поверка не имеет юридической силы и на ее основе нельзя оформить свидетельство о поверке государственного образца, поскольку до настоящего времени отсутствует международное соглашение между Госстандартом и Национальным институтом стандартов и технологий (NIST) США о взаимном признании данного типа эталонов.

2.3.2. Радиометры RAMON-01М и БДПА-01

Монитор радоновый RAMON-01М предназначен для экспрессного определения эквивалентной равновесной объемной активности радона и объемной активности дочерних продуктов распада ²¹⁸Po (RaA), ²¹⁴Pb (RaB) и ²¹⁴Bi (RaC) в воздухе помещений и на открытой местности при проведении

радиационно-гигиенических, геологических и радиоэкологических исследований. Технические характеристики радиометра RAMON-01М приведены в табл. 2.8.

Таблица 2.8

Диапазон измерений ЭРОА радона	от 4 до 5·10 ⁵ Бк/м ³
Диапазон измерений величины по- тенциальной энергии α-излучения	от 15·10 ⁴ до 17·10 ⁹ МэВ/м ³
Предел допускаемой основной от- носительной погрешности измере- ния	30 %
Объемный расход воздуха через фильтр	(30±1) л/мин
Габаритные размеры радиометра	$310 \times 195 \times 220$ мм
Масса радиометра	не более 7 кг
Питание радиометра	от сети переменного тока напря- жением (220±22) В с частотой 50 Гц или от встроенного авто- номного источника питания

Технические характеристики радиом	метра RAMON-01M
-----------------------------------	-----------------

Для регистрации альфа-излучения используется полупроводниковый кремниевый детектор альфа-частиц с p-n переходом площадью 20 см². Импульсы напряжения, образующиеся при попадании частиц в детектор, усиливаются и поступают на вход дискриминатора, разделяющего сигналы от зарегистрированных частиц по энергии. Прибор (рис. 2.16) позволяет проводить измерения как в автоматическом, так и в ручном режиме. В данной работе радиометр RAMON-01M использовался для отбора проб радиоактивных аэрозолей ДПР радона на фильтр с последующим измерением их активности в ручном режиме.



Рис. 2.16. Монитор радоновый RAMON-01М

В качестве вспомогательного средства для измерения активности аэрозольных фильтров по α-излучению был использован блок детектирования БДПА-01 (рис. 2.17). Принцип действия блока детектирования, предназначенного для измерения малых уровней альфа-излучения, основан на использовании сцинтилляционного детектора ZnS(Ag) диаметром 60 мм и фотоэлектронного умножителя. Для повышения стабильности измерений в блоке детектирования БДПА-01 применена система светодиодной стабилизации измерительного тракта, которая одновременно обеспечивает проверку работоспособности всего тракта в процессе работы. На торцевой поверхности корпуса расположен разъем для подключения кабеля. Чувствительная часть блока детектирования закрывается защитной крышкой.



Рис. 2.17. Блок детектирования БДПА-01

Диапазоны измерения и пределы допускаемой основной относительной погрешности представлены в табл. 2.9.

Таблица 2.9

Диапазоны измерения и пределы допускаемой основной относительной погрешности для блока детектирования БДПА-01

Плотность по-	Флюенс	Число рас-	Поверхностная	Пределы до-
тока альфа-	альфа-	падов ²³⁹ Pu,	активность	пускаемой ос-
частиц ²³⁹ Pu,	частиц	CM ⁻²	²³⁹ Pu, Бк·см ⁻²	новной отно-
$MИH^{-1} \cdot CM^{-2}$	239 Pu, cm ⁻²			сительной по-
				грешности, %
$0,1-10^5$	$1 - 3 \cdot 10^{6}$	$1 - 3 \cdot 10^{6}$	$3,4\cdot 10^{-3}-$	±20
			$3,4\cdot 10^3$	

Блок детектирования БДПА-01 посредством USB-адаптера подключается к персональному компьютеру. Для работы с блоком детектирования используется программа, интерфейс которой представлен на рис. 2.18. Программа позволяет оценивать плотность потока, флюенс альфа-частиц и скорость счета со статистической погрешностью и их пороги. При необходимости программа позволяет проводить непрерывные измерения с записью результатов с заданным интервалом в текстовый файл.

😣 Радиометрический режим - Поверхностная активность 🛛 🗖 🔀							
🗩 🖲 🕑 🛈 С - фон 🚾 Ф 21,0 °С							
	Альфа						
Поверхностная активность	Фон	0,000 ± 0,0%	Бк/см²				
Фоновое знач. поверх. активности		0,000	Бк/см²				
Макс. поверхностная активность		0,000	Бк/см²				
Порог по поверх, аквтиности	1	100000,000	Бк/см²				
Флюенс		0,000	имп				
Порог по флюенсу	1	100000,000	имп				
Скорость счета		0,02 ± 115,5%	имп/с				
Порог по скорости счета	1	100000	имп/с				
Интервал обновления: 1 📚 с. 🗌 Показать дополнительные данные							
Записывать в файл с интервалом 1							
Стоп							

Рис. 2.18. Интерфейс программы для работы с блоком детектирования

БДПА-01

2.4. Конструкция средства воспроизведения единицы объемной активности ОА радона

При разработке и создании средства воспроизведения единицы объемной активности ОА радона с непрерывным контролем коэффициента эманирования источника ²²⁶Ra могут использоваться две схемы построения конструкции: проточная и замкнутая. В проточной схеме воздух с минимальным содержанием радона продувается через эманационную камеру, и ОА радона на выходе из камеры определяется такими факторами, как:

- активность источника ²²⁶Ra;
- коэффициент эманирования;
- скорость прокачки воздуха через эманационную камеру.

Преимуществом проточной схемы является то, что, изменяя скорость прокачки воздуха через камеру, можно получать различные значения ОА ра-

дона при неизменной активности источника ²²⁶Ra. К недостаткам проточной схемы можно отнести необходимость использования более активных источников ²²⁶Ra и наличие погрешности, обусловленной возможными флуктуациями скорости прокачки воздуха через эманационную камеру.

Преимуществом замкнутой схемы является возможность использования источника ²²⁶Ra с меньшей активностью. Кроме того, погрешность определения объема замкнутой системы может быть сведена к минимуму. При этом, несмотря на меньшую активность источника ²²⁶Ra, уровни OA радона в замкнутой системе могут быть существенно выше, чем в проточной системе. К недостаткам замкнутой схемы следует отнести то, что для достижения требуемого уровня OA радона необходима выдержка, определяемая активностью источника, коэффициентом эманирования и объемом системы. Тем не менее, поскольку схема контроля коэффициента эманирования источников ²²⁶Ra остается неизменной, то, варьируя схему эксперимента, можно получить OA радона в достаточно широком диапазоне.

2.4.1. Средство воспроизведения единицы объемной активности ОА радона, работающее в проточном режиме

Схема воспроизведения единицы объемной активности ОА радона, работающей в проточном режиме, представлена на рис. 2.19. Эманационная камера с расположенными в ней источником ²²⁶Ra и стандартными источниками ОСГИ-3 устанавливалась непосредственно на НРGe-детектор. Объем эманационной камеры составлял $2,1\cdot10^{-4}$ м³. Активность ²²⁶Ra в источнике измеренная на НРGe-детекторе по собственной линии излучения 186 кэB, составила 35,3±0,4 кБк (k=1), что хорошо согласовывалось с паспортным значением активности, указанном производителем.





В силу того, что активность 226 Ra в источнике в ходе эксперимента не изменяется, необходимость ее непрерывного контроля отсутствовала, при расчетах использовалось паспортное значение, подтвержденное измерением активности непосредственно перед началом экспериментов. На выходе эманационной камеры был установлен радон-монитор AlphaGUARD PQ2000, выполняющий роль контрольного прибора. Расход воздуха контролировался при помощи эталонного газового барабанного счетчика РГ7000 или ротаметра с верхним пределом 1 л/мин, градуировка которого была проверена по показаниям счетчика. В качестве помпы была использована помпа с электронным управлением AlphaPUMP.

Стандартная градуировка гамма-спектрометра РКГ-01 по энергии и чувствительности осуществлялась по источникам ОСГИ-3 с радионуклидами 241 Am, 133 Ba и 152 Eu. Источники устанавливались в эманационную камеру на специальные держатели, соответствующие геометрии источника 226 Ra (см. раздел 2.2.2).

Объемная активность радона, выходящего из эманационной камеры, измерялась радон-монитором AlphaGUARD каждые 10 мин. Гамма-спектр источника ²²⁶Ra измерялся непрерывно, с интервалом набора спектра 20 мин.

Контроль коэффициента эманирования источника ²²⁶Ra может производиться как по линиям излучения ²¹⁴Pb, так и по линиям излучения ²¹⁴Bi. Необходимо отметить, что неопределенность подгонки полинома, описывающего зависимость чувствительности регистрации γ -квантов, полученного при помощи программного пакета SpectraLineUltimateGammaLab, составляет 6,2 % в области E_{γ} =351,9 кэB (²¹⁴Pb) и 4,4 % в области E_{γ} =609,3 кэB (²¹⁴Bi). Подобная неопределенность может считаться удовлетворительной при стандартных измерениях, но является неприемлемой при создании средств воспроизведения единиц ОА радона. В связи с этим точность полинома, описывающего энергетическую зависимость чувствительности, была проверена при помощи дополнительных измерений.

Для проверки качества градуировки гамма-спектрометра в области излучения ²¹⁴Bi ($E_{\gamma} = 609,3$ кэB) проводились измерения активности источника ¹³⁷Cs, не используемого в процессе градуировки и имеющего близкую энергию излучения ($E_{\gamma} = 661$ кэB). Изначально предполагалась одновременная установка источников ²²⁶Ra и ¹³⁷Cs в эманационную камеру для непрерывного контроля стабильности работы гамма-спектрометра. Однако наличие в спектре излучения ²¹⁴Bi линии излучения с энергией 665 кэB с выходом 1,56 % приводило к погрешностям определения активности источника ¹³⁷Cs. Поэтому контроль стабильности градуировки гамма-спектрометра по источнику ¹³⁷Cs производился перед началом и после окончания каждой из серий измерений.

Для определения численного значения чувствительности в области 351,9 кэВ было принято решение отказаться от аппроксимации энергетической зависимости чувствительности детектора при помощи полинома. Вместо этого непосредственно из набранного градуировочного спектра была рассчитана чувствительность детектора к линии излучения ¹³³Ва с $E_{\gamma} = 356,0$ кэВ. Для расчета чувствительности детектора при $E_{\gamma} = 351,9$ кэВ значение данной величины для линии $E_{\gamma} = 356,0$ кэВ было умножено на значение 1,008, полученное из подгоночного полинома.

Полученное значение $\varepsilon = 3,15 \cdot 10^{-2}$ на 4,3 % превышало значение, рассчитанное при помощи программного пакета SpectraLineUltimateGammaLab для подгоночного полинома в диапазоне энергий γ -квантов 60–1408 кэВ.

Коэффициент эманирования контролировался путем измерения активности²¹⁴Pb и²¹⁴Bi, остающихся в источнике, по линиям излучения 351,9 и 609,3 кэВ соответственно. Численное значение коэффициента эманирования рассчитывалось как

$$\chi = \frac{A(222_{Rn})}{A(226_{Ra})} = 1 - \frac{A(214_{Pb})}{A(226_{Ra})} \text{ или } \chi = \frac{A(222_{Rn})}{A(226_{Ra})} = 1 - \frac{A(214_{Bi})}{A(226_{Ra})} , \qquad (2.3)$$

где *А* –активность радионуклида. Фактически измерение значения коэффициента эманирования по двум различным продуктам распада радона обеспечивает дополнительную согласованность результатов.

Учитывая то, что скорость прокачки воздуха через эманационную камеру составляла 1 л/мин, а объем камеры 210 см³, можно было ожидать, что осаждение продуктов распада радона на стенки камеры будет незначительным [44] и их вклад в измеренную активность ²¹⁴Ві будет пренебрежимо мал. Для проверки этого немедленно после удаления эманирующего источника из камеры она повторно устанавливалась на детектор, и производился набор спектра. Активность ²¹⁴Ві, осевшего на стенках камеры, составляла менее 0,2 % [99].

В силу того, что обеспечить нулевое значение ОА радона во входящем воздухе не представлялось возможным, то в течение всего эксперимента велся контроль ОА радона в воздухе при помощи второго прибора AlphaGUARD, имеющего аналогичные параметры по чувствительности и уровню собственного фона с контрольным прибором. Уровень ОА радона в поступающем воздухе не превышал 2,5 % от уровня ОА радона, создаваемого в системе.

Известно, что собственный фон радон-мониторов AlphaGUARD может постепенно возрастать за счет накопления на стенках ионизационной камеры долгоживущего продукта распада радона ²¹⁰Pb и его дочернего радионуклида ²¹⁰Ро. Собственный фон используемых в эксперименте мониторов AlphaGUARD, обусловленный накоплением долгоживущих продуктов pacпада радона, определялся путем включения прибора в замкнутую систему, состоящую из собственно радон-монитора, помпы и патрона производства фирмы Genitron Instruments GMBH, содержащего активированный уголь. Прокачка воздуха в замкнутой системе продолжалась от нескольких часов до нескольних суток. При этом практически весь радон адсорбировался на активированном угле, и показания радон-монитора соответствовали собственному фону прибора. Для обоих мониторов, используемых в измерениях, собственный фон прибора не превышал 10 Бк/м³. Среднее значение ОА радона в воздухе, поступающем в измерительную систему, составляло 40 ± 5 Бк/м³. С учетом этого, а также собственного фона радон-монитора AlphaGUARD, используемого в качестве контрольного прибора, из показаний данного прибора вычиталась величина 50 Бк/м³.

Объемная активность ²²²Rn на выходе из эманационной камеры рассчитывалась как

$$C_{222_{Rn}} = \frac{A(226_{Ra}) \cdot \chi \cdot \lambda_{Rn}}{\upsilon}, \qquad (2.4)$$

где λ_{Rn} – постоянная распада ²²²Rn (2,09·10⁻⁶c⁻¹); υ – скорость прокачки воздуха, м³·c⁻¹.

2.4.2. Средство воспроизведения единицы ОА радона, работающее в замкнутом режиме

Схема средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего в замкнутом режиме, представлена на рис. 2.20. Принципиальными отличиями данной схемы от схемы, рассмотренной в разделе 2.4.1, являются [99]:

 полная герметичность системы по отношению к окружающей атмосфере;

 использование источника ²²⁶Ra с существенно меньшей активностью;

установка контрольного радон-монитора AlphaGUARD, работа ющего в диффузионном режиме с периодом усреднения 1 ч непосредственно
 в общий объем системы.



Рис. 2.20. Схема средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего в замкнутом режиме [99]

Система включала в себя эманационную камеру с объемом $(2,1\cdot10^4 \pm \pm 1\cdot10^{-6} \text{ м}^3)$, описанную ранее, накопительную камеру с тарированным объемом 5,04·10⁻²±1·10⁻⁴ м³ и помпу. Радон-монитор AlphaGUARD, выполняющий роль контрольного прибора, работающий в диффузионном режиме с интервалом измерения 60 мин, помещался непосредственно в накопительную камеру. При расчете общего внутреннего объема системы учитывался объем радон-монитора, приведенный в паспортной документации на прибор (2,55·10⁻³ м³), именно для схемы измерений, когда радон-монитор

AlphaGUARD помещается внутрь накопительной камеры. Общий объем системы с учетом всех компонентов составил $(48,1 \pm 0,3) \cdot 10^{-3} \text{ м}^3$. Скорость прокачки воздуха через эманационную камеру составляла $1 \cdot 10^{-3} \text{ м}^3$ /мин.

В качестве источника радона использовался источник ²²⁶Ra с активностью 3,96±0,04 кБк (k=1). Измерение спектра гамма-излучения эманирующего источника ²²⁶Ra производилось непрерывно в течение всего эксперимента с записью показаний с интервалом 24 ч. Как и в предыдущем случае, коэффициент эманирования χ рассчитывался по формуле (2.3). Стабильность градуировки установки, подтвержденная при исследовании средства воспроизведения, работающего в проточном режиме, проверялась перед началом и после окончания серии измерений по источнику ОСГИ-3 ¹³⁷Cs.

Значения ОА радона в замкнутой системе могут быть рассчитаны по формуле:

$$C_{\rm Rn}(t) = \frac{A_{Ra} \cdot \chi}{V} (1 - \exp(-\lambda_{Rn} t)), \qquad (2.5)$$

где *t* – время накопления радона в системе; *V*– объем системы. В ситуации, когда в силу различных факторов (прежде всего, в результате изменения окружающей температуры) имеется нестабильность коэффициента эманирования χ , изменение ОА радона во времени может быть рассчитано как [99]

$$\frac{\mathrm{d}C_{Rn}}{\mathrm{d}t} = -\lambda_{Rn}C_{Rn} + \frac{A_{Ra}\lambda_{Rn}\chi(t)}{V} \qquad . \tag{2.6}$$

При этом текущее значение OA радона может быть рассчитано путем интегрирования выражения (2.6)

$$C_{Rn}(t) = \int_0^t \frac{dC_{Rn}(t')}{dt'} dt'.$$
 (2.7)

2.5. Конструкция и принцип работы средства воспроизведения единицы ЭРОА радона

Как правило, при проведении измерений в жилищах или на рабочих местах не требуется определение объемной активности всей цепочки короткоживущих продуктов распада радона. Для проведения таких измерений достаточно, чтобы прибор адекватно измерял нормированную величину, а именно – ЭРОА радона. Возникает возможность существенно упростить схему измерения продуктов распада радона и, соответственно, конструкцию средства воспроизведения единицы ЭРОА радона.

В качестве основной идеи построения средства воспроизведения единицы ЭРОА радона было предложено использовать метод Кузнеца, заключающийся в единичном измерении активности фильтра через несколько десятков минут после окончания отбора пробы [17, 45, 48]. В стандартном варианте метода Кузнеца измерения активности производятся по α -излучению. Необходимо учитывать, что через 30–50 мин после окончания отбора пробы единственным α -излучающим радионуклидом на фильтре останется ²¹⁴Po, находящийся в полном равновесии с его материнским нуклидом ²¹⁴Bi. Активность ²¹⁴Bi (²¹⁴Po) на фильтре к началу измерений будет полностью определяться такими факторами, как длительность отбора проб, уровни ОА дочерних продуктов распада радона (²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi) в воздухе, интервал времени между окончанием прокачки и началом измерений, а также такими техническими факторами, как скорость прокачки воздуха через аэрозольный фильтр и эффективность улавливания аэрозольных частиц на фильтре.

Особенностью метода Кузнеца является то, что после выдержки в течение 30–50 мин после окончания отбора пробы активность ²¹⁴Ві на фильтре с хорошей точностью будет пропорциональна ЭРОА радона практически вне зависимости от сдвига равновесия в цепочке ²¹⁸Ро \rightarrow ²¹⁴Рb \rightarrow ²¹⁴Ві [17]. Это позволяет определять ЭРОА радона путем единственного измерения активности ²¹⁴Ві, которое может быть произведено при помощи γ-спектрометра. Поскольку в литературе значения коэффициента Кузнеца были опубликованы лишь для ограниченного набора соотношений между длительностью отбора пробы, интервалом выдержки и длительностью измерения [17, 48], то на основании основных соотношений, описывающих накопление и распад ДПР радона на фильтре [40], были рассчитаны значения коэффициента Кузнеца для произвольного времени отбора пробы и выдержки между окончанием отбора пробы и началом измерений при произвольных значениях сдвига равновесия в цепочке 218 Po $\rightarrow {}^{214}$ Pb $\rightarrow {}^{214}$ Bi.

В результате описанных в главе 2 работ можно сделать следующие выводы.

- Разработаны конструкции средств воспроизведения единицы ОА радона, работающих как в проточном, так и в замкнутом режимах, в которых обеспечен непрерывный контроль коэффициента эманирования путем измерения активности нуклидов ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi в эманирующем источнике ²²⁶Ra.
- Использование для расчета коэффициента эманирования определения активности двух радионуклидов из цепочки короткоживущих ДПР радона гарантирует корректность производимых измерений.
- 3. Для повышения точности измерений активности ²¹⁴Pb по линии излучения 352 кэВ предпочтительно определять чувствительность γ-спектрометра в данной области непосредственно по линии излучения образцового источника ¹³³Ba. Качество градуировки γ-спектрометра в области 600–700 кэВ, сделанной путем построения подгоночного полинома по результатам измерений образцовых источников, может быть проверено путем измерения активности источника ¹³⁷Cs, не используемого в процессе градуировки.
- 4. Измерение ЭРОА радона в средстве воспроизведения данной величины может быть с достаточной точностью осуществлено путем единственного измерения активности ²¹⁴Ві и расчета значения ЭРОА радона по методу Кузнеца. Использование для определения ЭРОА радона γ-спектрометра позволяет избежать влияния неопределенностей, обусловленных поглощением α-излучения в материале фильтра.

ГЛАВА 3. ХАРАКТЕРИСТИКИ СРЕДСТВ ВОСПРОИЗВЕДЕНИЯ ЕДИНИЦ ОА И ЭРОА РАДОНА

3.1. Характеристики средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего в проточном режиме

Схема работы средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего в проточном режиме, представлена на рис. 2.19. Эксперимент заключался в установке требуемой скорости расхода воздуха 1 л/мин через эманационную камеру, в выжидании в течение не менее 15 мин для установления равновесной концентрации радона в измерительной системе и проведении набора спектра γ-излучения от источника, находящегося в эманационной камере с одновременной регистрацией ОА радона при помощи контрольного прибора AlphaGUARD, работающего в проточном режиме с длительностью единичного измерения 10 мин [99].

Была проведена оценка неопределенностей значений ОА радона. Оценка неопределенностей проводилась в соответствии с требованиями документов РМГ 43-2001 и ГОСТ Р 54500.3–2011/Руководство ИСО/МЭК 98-3:2008 [100, 101]. В дальнейшем в работе использовались как относительные значения стандартных неопределенностей, выраженные в процентах (\tilde{u}_B), так и абсолютные значения этих величин (u_B).

Стандартная неопределенность, оцененная по типу A, измерения активности ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi по линиям излучения 352 и 609 кэB (соответственно) определяются количеством импульсов в пике полного поглощения и количеством импульсов в «пьедестале» под пиком. Для заданной активности источника и длительности набора спектра стандартная неопределенность составила для ²¹⁴Pb $\tilde{u}_A^{\gamma Pb} = 1,8\%$ и для ²¹⁴Bi $\tilde{u}_A^{\gamma Bi} = 1,6\%$.

При измерениях активности ²¹⁴Pb для оценки стандартной неопределенности, оцененной по типу B, была использована паспортная погрешность определения активности источника ¹³³Ba, равная 1,6 % при P = 0,99, по кото-

рому оценивалась чувствительность γ -спектрометра при E_{γ} =351,9 кэВ. В соответствии с [100, 101] стандартная неопределенность была оценена как $\tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb) = \frac{\theta_{\text{сис}}(Ba-133)}{\sqrt{3}} = 0,92$ %.

Стандартная неопределенность, оцененная по типу В, измерения активности ²¹⁴Ві была оценена по результатам измерения активности стандартного источника ¹³⁷Сs, используемого для проверки качества градуировки γспектрометра в области излучения ²¹⁴Ві ($E_{\gamma} = 609,3$ кэВ). Разница между измеренной активностью и паспортной активностью источника ¹³⁷Сs с поправкой на радиоактивный распад составила всего $\tilde{u}_{B}^{\mu_{3M}}(Cs) = 0,12$ %.

Дополнительную неопределенность в измерение активности образцового источника ¹³⁷Cs вносит паспортная погрешность определения активности $\theta_{cuc}^{\varepsilon}(^{137}Cs) = 1,8 \%$ (P=0,99). В связи с этим была рассчитана стандартная неопределенность, оцениваемая по типу В, $\tilde{u}_B^{\text{пасп}}(Cs) = \frac{\theta_{cuc}(Cs-137)}{\sqrt{3}} =$ 1,04 %. Стандартная неопределенность, оцененная по типу В, измерения активности ²¹⁴Bi по γ -излучению в диапазоне 600–700 кэB была рассчитана как $\tilde{u}_B^{\varepsilon}(Bi) = \sqrt{[\tilde{u}_B^{\text{изм}}(Cs)]^2 + [\tilde{u}_B^{\text{пасп}}(Cs)]^2} = 1,11 \%.$

Стандартная неопределенность, обусловленная точностью измерения активности ²²⁶Ra в эманирующем источнике, была оценена на основании собственных измерений (раздел 2.2.2) и составила $\tilde{u}_B(Ra) = 1,1$ %.

Стандартная неопределенность, обусловленная точностью определения скорости прокачки воздуха через эманационную камеру, определяется погрешностью используемого эталонного барабанного счетчика РГ7000 и на основании паспортных данных была оценена как $\tilde{u}_{B}^{\text{прок}}=1,0$ %.

Запишем общее выражение, описывающее значение ОА радона на выходе устройства, работающего в проточном режиме при измерении коэффициента эманирования по активности ²¹⁴Pb

$$C_{Rn} = \frac{A_{Ra} \cdot \chi \cdot \lambda_{Rn}}{v} = \frac{A_{Ra} \cdot \lambda_{Rn} \cdot \left(1 - \frac{A_{Pb}}{A_{Ra}}\right)}{v} = \frac{A_{Ra} \lambda_{Rn}}{v} - \frac{A_{Pb} \lambda_{Rn}}{v} = \frac{A_{Ra} \lambda_{Rn}}{v} - \frac{I_{352} \lambda_{Rn}}{n_{352} \varepsilon_{352} v}, \quad (3.1)$$

где A_{Pb} и A_{Ra} – активности ²¹⁴Pb и ²²²Ra в источнике; I_{352} – скорость счета импульсов в пике полного поглощения для энергии 352 кэB; ε_{352} – эффективность регистрации гамма-квантов в пике полного поглощения для энергии 352 кэB; $n_{352} = 0,316$ – выход γ -квантов с данной энергией на один распад ²¹⁴Pb.

В соответствии с [100,101] суммарная дисперсия *C_{Rn}* может быть представлена в виде

$$(u_{c}^{Rn})^{2} = \left(\frac{\partial C_{Rn}}{\partial A_{Rn}}\tilde{u}_{B}(Ra)A_{Ra}\right)^{2} + \left(\frac{\partial C_{Rn}}{\partial I_{352}}\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)I_{352}\right)^{2} + \left(\frac{\partial C_{Rn}}{\partial \varepsilon_{352}}\tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)\varepsilon_{352}\right)^{2} + \left(\frac{\partial C_{Rn}}{\partial$$

Запишем данное уравнение в явном виде

$$\begin{aligned} (u_{c}^{Rn})^{2} &= \\ \left(\frac{\lambda_{Rn}}{\upsilon}\tilde{u}_{B}(Ra)A_{Ra}\right)^{2} + \left(-\frac{\lambda_{Rn}}{\varepsilon_{352}n_{352}\upsilon}\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)I_{352}\right)^{2} + \\ &+ \left(-\frac{I_{352}\lambda_{Rn}}{\varepsilon_{352}^{2}n_{352}\upsilon}\tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)\varepsilon_{352}\right)^{2} + \left[\left(\frac{I_{352}\lambda_{Rn}}{\varepsilon_{352}n_{352}\upsilon^{2}} - \frac{A_{Ra}\lambda_{Rn}}{\upsilon^{2}}\right)\tilde{u}_{B}^{\Pi\rho\kappa}\upsilon\right]^{2}. \end{aligned}$$
(3.3)
Вынесем $\frac{\lambda_{Rn}^{2}}{\upsilon^{2}}$ за скобки и учтем, что $\frac{I_{352}}{\varepsilon_{352}n_{352}} = A_{Pb}$, тогда
 $(u_{c}^{Rn})^{2} = \frac{\lambda_{Rn}^{2}}{\upsilon^{2}}\left\{A_{Ra}^{2}\tilde{u}_{B}(Ra)^{2} + A_{Pb}^{2}\left(\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)^{2} + \tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)^{2}\right) + (A_{Ra} - - -A_{Pb})^{2}\tilde{u}_{B}^{\Pi\rho\kappa^{2}}\right\} . \end{aligned}$ (3.4)

Для расчета относительной стандартной неопределенности \tilde{u}_c^{Rn} можно записать

$$(\tilde{u}_{c}^{Rn})^{2} = \frac{(u_{c}^{Rn})^{2}}{c_{Rn}^{2}} = \frac{v^{2}}{A_{Ra}^{2} \cdot \chi^{2} \cdot \lambda_{Rn}^{2}} \cdot \frac{\lambda_{Rn}^{2}}{v^{2}} \left\{ A_{Ra}^{2} \tilde{u}_{B}(Ra)^{2} + A_{Pb}^{2} \left(\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)^{2} + \tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)^{2} \right) + (A_{Ra} - A_{Pb})^{2} \tilde{u}_{B}^{\Pi \rho \kappa 2} \right\},$$
(3.5)

или после сокращения

$$(\tilde{u}_{c}^{Rn})^{2} = \frac{1}{A_{Ra}^{2} \cdot \chi^{2}} \cdot \left\{ A_{Ra}^{2} \tilde{u}_{B}(Ra)^{2} + A_{Pb}^{2} (\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)^{2} + +\tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)^{2}) + (A_{Ra} - A_{Pb})^{2} \tilde{u}_{B}^{\Pi \text{pok}^{2}} \right\} = \frac{1}{\chi^{2}} \tilde{u}_{B}(Ra)^{2} + \frac{A_{Pb}^{2}}{A_{Ra}^{2} \cdot \chi^{2}} (\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)^{2} + \tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)^{2}) + \frac{(A_{Ra} - A_{Pb})^{2}}{A_{Ra}^{2} \cdot \chi^{2}} \tilde{u}_{B}^{\Pi \text{pok}^{2}} \qquad (3.6)$$

Учитывая, что $\chi = (A_{Ra} - A_{Pb})/A_{Ra}$ и $A_{Pb} = A_{Ra}(1 - \chi)$, получаем окончательный результат в виде $\tilde{u}_c^{Rn} = \sqrt{\sum c_i^2 \tilde{u}_i^2}$

$$\tilde{u}_{c}^{Rn} = \sqrt{\frac{1}{\chi^{2}}} \tilde{u}_{B}(Ra)^{2} + \frac{(1-\chi)^{2}}{\chi^{2}}} \left(\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)^{2} + \tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)^{2} \right) + \tilde{u}_{B}^{\Pi p 0 \kappa^{2}} .$$
(3.7)

Аналогично может быть представлено выражение для суммарной неопределенности коэффициента эманирования при измерениях, выполняемых по ²¹⁴Bi:

$$\tilde{u}_{c}^{Rn} = \sqrt{\frac{1}{\chi^{2}}} \tilde{u}_{B}(Ra)^{2} + \frac{(1-\chi)^{2}}{\chi^{2}}} \left(\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Bi)^{2} + \tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Bi)^{2} \right) + \tilde{u}_{B}^{\Pi p 0 \kappa^{2}} \quad .$$
(3.8)

Среднее значение коэффициента эманирования χ составило χ =0,441. С учетом этого суммарная неопределенность ОА радона при измерении коэффициента эманирования как по ²¹⁴Pb, так и по ²¹⁴Bi составила $\tilde{u}_c^{Rn}(Pb) = 3,7 \%$, $\tilde{u}_c^{Rn}(Bi) = 3,7 \%$. Вклад отдельных стандартных неопределенностей в суммарную стандартную неопределенность (бюджет неопределенности) коэффициента эманирования и ОА радона представлен в табл. 3.1.

Как видно из таблицы, основными источниками суммарной стандартной неопределенности средства воспроизведения единицы объемной активности радона, работающего в проточном режиме, являются стандартная неопределенность измерения активности ²²⁶Ra в эманирующем источнике и стандартная неопределенность измерений активности ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi, обусловленная статистикой набора импульсов в пике полного поглощения. Вклад отдельных стандартных неопределенностей в суммарную стандартную неопределенность (бюджет неопределенности) ОА радона для средства воспроизведения, работающего в проточном режиме

Тип изопранонологи	Значение	Значение	Относительный
тип неопределенности	$\widetilde{u}_i, \%$	$c_i \tilde{u}_i$	вклад, %
Измерени	я по ²¹⁴ Pb		
Стандартная неопределенность ско-			
рости счета в пике полного поглоще-	1,8	2,29	37,9
ния, \tilde{u}_A^{γ}			
Стандартная неопределенность оцен-			
ки эффективности регистрации в пике	0,92	1,17	9,9
полного поглощения, ${\widetilde{u}}^{arepsilon}_B$			
Стандартная неопределенность изме-	11	2 49	ΔΔ 9
рения активности ²²⁶ Ra, $\tilde{u}_B(Ra)$	1,1	2,47	,>
Стандартная неопределенность ско-	1.0	1.0	73
рости прокачки, $ ilde{u}^{ ext{npok}}_B$	1,0	1,0	7,5
Измерени	я по ²¹⁴ Ві	I	
Стандартная неопределенность ско-			
рости счета в пике полного поглоще-	1,6	2,04	31,2
ния, \tilde{u}_A^{γ}			
Стандартная неопределенность оцен-			
ки эффективности регистрации в пике	1,1	1,41	14,9
полного поглощения, $\tilde{u}_B^{\varepsilon}$			
Стандартная неопределенность изме-	1 1	2 /19	A6 A
рения активности ²²⁶ Ra, $\tilde{u}_B(Ra)$	1,1	2,47	+0,+
Стандартная неопределенность ско-	1.0	1.0	75
рости прокачки, ${ ilde u}_B^{ m npok}$	1,0	1,0	7,5

В процессе эксперимента по изучению работы системы было выполнено 30 серий измерений. Каждая из серий измерений состояла из 10 измерений активности ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi в эманирующем источнике (время одного измерения 20 мин) и 20 измерений ОА радона при помощи радон-монитора AlphaGUARD. Результаты представлены в табл. 3.2. Разница между средними значениями коэффициента эманирования, полученными при помощи независимых измерений активности продуктов распада радона ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi в источнике, составила менее 1 %.

Наблюдаемое различие между показаниями радон-монитора и значениями ОА радона, рассчитанными по результатам измерений на γ-спектрометре находится в пределах суммарной неопределенности ОА радона и расширенной неопределенности градуировки прибора AlphaGUARD, составляющей по итогам поверки 5,4 % (см. раздел 2.3.1).

Рассмотрим возможные источники снижения неопределенности средства воспроизведения единицы ОА радона. В первую очередь необходимо уделить внимание основным источникам неопределенностей:

- неопределенность измерения активности ²²⁶Ra, $\tilde{u}_B(Ra)$;
- неопределенность скорости счета в пике полного поглощения, \tilde{u}^{γ}_{A} .

Основное внимание при повышении точности средства воспроизведения единицы ОА радона следует уделить снижению неопределенности измерения активности ²²⁶Ra, поскольку она оказывает основное влияние на оценку значения коэффициента эманирования. Уменьшение стандартной неопределенности измерения активности ²²⁶Ra с 1,1 до 0,8 %, что возможно при использовании аттестованных эталонных источников NIST и длительности набора спектра образцового источника ~800 ч, позволяет снизить относительную суммарную неопределенность ОА радона до 3,3 %. Увеличение времени набора спектра для измерения активности в 4 раза, что не оказывает существенного влияния на процесс контроля эталонных значений ОА радона, снижает неопределенность \tilde{u}_A^{γ} в 2 раза. Снижение неопределенности, обусловленной статистикой набора импульсов в пике полного поглощения с 1,8 до 0,9 %, в сочетании со снижением неопределенности измерения активности ²²⁶Ra позволяет получить значение суммарной неопределенности ОА радона для источника, работающего в проточном режиме, равное 2,6 %, что может быть признано приемлемым значением. Еще одним потенциальным источником снижения неопределенности \tilde{u}_c^{Rn} , в соответствии с уравнениями (3.7) и (3.8), может являться увеличение коэффициента эманирования χ за счет технологии изготовления источника.

Следует отметить, что приведенные в табл. 3.2 значения ОА радона были получены при скорости прокачки воздуха через эманационную камеру, равную $\upsilon=1$ л/мин. Без всякого ущерба для точности измерений скорость прокачки воздуха может варьироваться в диапазоне от 0,5 до 5 л/мин, что позволяет получить значение ОА радона в диапазоне от 360 до 3600 Бк/м³.

98

Сопоставление данных средства воспроизведения единицы объемной активности радона, работающего в проточном режиме с показаниями контрольного радон-монитора AlphaGUARD

№ п/п	Коэфф. эма- нирования по ²¹⁴ Рb, χ	Данные средства воспроизведения ОА радона по ²¹⁴ Pb, среднее значение в се- рии, Бк/м ³	Коэфф. эма- нирования по ²¹⁴ Ві, χ	Данные средства воспроизведения ОА радона по ²¹⁴ Ві, среднее значение в се- рии, Бк/м ³	Показания контрольного радон- монитора AlphaGUARD, за вычетом фона, Бк/м ³	Отношение показаний AlphaGUARD к HPGe по ²¹⁴ Pb	Отношение показаний AlphaGUARD к HPGe по ²¹⁴ Bi
1	0,4443	1827	0,4391	1766	1713	0,938	0,970
2	0,4425	1820	0,4384	1763	1663	0,914	0,944
3	0,4440	1826	0,4397	1768	1623	0,889	0,918
4	0,4412	1814	0,4416	1776	1643	0,906	0,925
5	0,4440	1826	0,4404	1771	1677	0,918	0,947
6	0,4427	1821	0,4416	1776	1707	0,937	0,961
7	0,4417	1816	0,4384	1763	1613	0,888	0,915
8	0,4432	1823	0,4423	1779	1703	0,935	0,958
9	0,4427	1821	0,4384	1763	1657	0,910	0,940

Продолжение таблицы	3	.2
---------------------	---	----

№ п/п	Коэфф. эма- нирования по ²¹⁴ Pb, χ	Данные пер- вичного этало- на ОА радона по ²¹⁴ Pb, сред- нее значение в серии, Бк/м ³	Коэфф. эма- нирования по ²¹⁴ Ві, χ	Данные пер- вичного этало- на ОА радона по ²¹⁴ Ві, сред- нее значение в серии, Бк/м ³	Показания кон- трольного радон- монитора AlphaGUARD, за вычетом фона, Бк/м ³	Отношение показаний AlphaGUARD к HPGe по ²¹⁴ Pb	Отношение показаний AlphaGUARD к HPGe по ²¹⁴ Bi
10	0,4440	1826	0,4404	1771	1700	0,931	0,960
11	0,4425	1820	0,4378	1800	1715	0,943	0,953
12	0,4437	1825	0,4391	1806	1905	1,044	1,055
13	0,4427	1821	0,4394	1807	1905	1,046	1,054
14	0,4430	1822	0,4397	1808	1935	1,062	1,070
15	0,4435	1824	0,4407	1812	1915	1,050	1,057
16	0,4455	1832	0,4407	1812	1885	1,029	1,040
17	0,4458	1833	0,4384	1803	1960	1,069	1,087
18	0,4473	1839	0,4409	1813	1620	0,881	0,893
19	0,4447	1829	0,4405	1811	1615	0,883	0,892
20	0,4427	1821	0,4374	1799	1685	0,926	0,937

Окончание таблицы 3.2.

№ п/п	Коэфф. эма- нирования по ²¹⁴ Pb, χ	Данные первич- ного эталона ОА радона по ²¹⁴ Рb, среднее значе- ние в серии, Бк/м ³	Коэфф. эма- нирования по ²¹⁴ Ві, χ	Данные пер- вичного этало- на ОА радона по ²¹⁴ Ві, сред- нее значение в серии, Бк/м ³	Показания кон- трольного ра- дон-монитора AlphaGUARD, за вычетом фо- на, Бк/м ³	Отношение показаний AlphaGUARD к HPGe по ²¹⁴ Pb	Отношение показаний AlphaGUARD к HPGe по ²¹⁴ Bi
21	0,4425	1820	0,4374	1799	1645	0,904	0,914
22	0,4430	1822	0,4365	1795	1650	0,906	0,919
23	0,4427	1821	0,4397	1808	1730	0,950	0,957
24	0,4442	1827	0,4394	1807	1640	0,898	0,908
25	0,4419	1817	0,4391	1806	1703	0,937	0,943
26	0,4425	1820	0,4355	1791	1693	0,931	0,946
27	0,4409	1813	0,4378	1800	1700	0,938	0,944
28	0,4436	1824	0,4394	1807	1540	0,844	0,852
29	0,4429	1821	0,4382	1802	1693	0,930	0,940
30	0,4441	1826	0,4374	1799	1687	0,924	0,938
	0,4433± ±0,0002	1823±1	0,4392± ±0,0003	1793±3	1717±20	0,942±0,011	0,958±0,011

Примечание: в последней строке таблицы указаны средние значения по всем сериям измерений и стандартное отклонение среднего значения.

3.2. Характеристики средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего в замкнутом режиме

Расчет суммарной неопределенности средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего в замкнутом режиме, производился аналогично расчетам, выполненным ранее. Для заданной активности источника и длительности набора спектра стандартная неопределенность составила для ²¹⁴Pb $\tilde{u}_A^{\gamma Pb} = 0.75$ % и для ²¹⁴Bi $\tilde{u}_A^{\gamma Bi} = 0,66$ %. Ряд стандартных неопределенностей, таких, как неопределенность аттестации контрольных источников ¹³³Ba и ¹³⁷Cs, неопределенность активности ¹³⁷Cs при контрольном измерении, были такими же, как в предыдущем случае. Относительная стандартная неопределенность определения объема системы была оценена на основании паспортных данных фирмы-изготовителя и составила $\tilde{u}_B^V = 0,6$ %.

При измерении коэффициента эманирования по ²¹⁴Pb уравнение, описывающее накопление ОА радона в системе может быть представлено как

$$C_{\rm Rn}(t) = \frac{A_{Ra}\cdot\chi}{V} (1 - \exp(-\lambda_{Rn}t)) = \frac{A_{Ra}\cdot\left(1 - \frac{A_{Pb}}{A_{Ra}}\right)}{V} (1 - \exp(-\lambda_{Rn}t)) = \frac{A_{Ra}-A_{Pb}}{V} (1 - \exp(-\lambda_{Rn}t)) = \left(\frac{A_{Ra}}{V} - \frac{I_{352}}{\varepsilon_{352}n_{352}V}\right) (1 - \exp(-\lambda_{Rn}t)).$$
(3.9)

Если пренебречь погрешностью определения времени накопления, то для суммарной стандартной погрешности ОА радона можно записать выражение

$$(u_{c}^{Rn})^{2} = \left(\frac{\partial C_{Rn}}{\partial A_{Rn}}\tilde{u}_{B}(Ra)A_{Ra}\right)^{2} + \left(\frac{\partial C_{Rn}}{\partial I_{352}}\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)I_{352}\right)^{2} + \left(\frac{\partial C_{Rn}}{\partial \varepsilon_{352}}\tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)\varepsilon_{352}\right)^{2} + \left(\frac{\partial C_{Rn}}{\partial V}\tilde{u}_{B}^{V}V\right)^{2}.$$

$$(3.10)$$

Или в явном виде

$$\begin{aligned} (u_{c}^{Rn})^{2} &= \\ \left(\frac{1}{V}\tilde{u}_{B}(Ra)A_{Ra}\right)^{2} + \left(-\frac{1}{\varepsilon_{352}n_{352}V}\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)I_{352}\right)^{2} + \left(\frac{I_{352}}{\varepsilon_{352}n_{352}V}\tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)\varepsilon_{352}\right)^{2} + \\ \left[\left(\frac{I_{352}}{\varepsilon_{352}n_{352}V^{2}} - \frac{A_{Ra}}{V^{2}}\right)\tilde{u}_{B}^{V}V\right]^{2} &= \frac{1}{V^{2}}\left[\tilde{u}_{B}(Ra)^{2}A_{Ra}^{2} + A_{Pb}^{2}\left(\tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)^{2} + +\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)^{2}\right) + \\ (A_{Ra} - A_{Pb})^{2}\tilde{u}_{B}^{V^{2}}\right] \end{aligned}$$
(3.11)

Относительная суммарная стандартная неопределенность может быть представлена как

$$\begin{aligned} &(\tilde{u}_{c}^{Rn})^{2} = \frac{\left(u_{c}^{Rn}\right)^{2}}{C_{Rn}^{2}} = \frac{V^{2}}{A_{Ra}^{2} \cdot \chi^{2}} \cdot \frac{1}{V^{2}} \Big[\tilde{u}_{B}(Ra)^{2} A_{Ra}^{2} + A_{Pb}^{2} \Big(\tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)^{2} + \tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)^{2} \Big) + \\ &+ (A_{Ra} - A_{Pb})^{2} \tilde{u}_{B}^{V^{2}} \Big] = \frac{1}{\chi^{2}} \tilde{u}_{B}(Ra)^{2} + \frac{A_{Pb}^{2}}{A_{Ra}^{2} \cdot \chi^{2}} \Big(\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)^{2} + \tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)^{2} \Big) + \\ &+ \frac{(A_{Ra} - A_{Pb})^{2}}{A_{Ra}^{2} \cdot \chi^{2}} \tilde{u}_{B}^{V^{2}} = \frac{1}{\chi^{2}} \tilde{u}_{B}(Ra)^{2} + \frac{(1-\chi)^{2}}{\chi^{2}} \Big(\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)^{2} + \tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)^{2} \Big) + \tilde{u}_{B}^{V^{2}}, \end{aligned}$$
(3.12)

ИЛИ

$$\tilde{u}_{c}^{Rn} = \sqrt{\sum c_{i}^{2} \tilde{u}_{i}^{2}} = \sqrt{\frac{1}{\chi^{2}}} \tilde{u}_{B}(Ra)^{2} + \frac{(1-\chi)^{2}}{\chi^{2}} \left(\tilde{u}_{A}^{\gamma}(Pb)^{2} + \tilde{u}_{B}^{\varepsilon}(Pb)^{2} \right) + \tilde{u}_{B}^{\gamma}}.$$
 (3.13)

При измерении коэффициента эманирования по ²¹⁴Ві выражение для расчета суммарной стандартной неопределенности будет иметь аналогичный вид. С учетом того, что среднее значение коэффициента эманирования составило $\chi=0,370$, суммарная неопределенность ОА радона при измерении коэффициента эманирования как по ²¹⁴Pb, так и по ²¹⁴Bi составила $\tilde{u}_c^{Rn}(Pb)=3,6\%$, а $\tilde{u}_c^{Rn}(Bi) = 3,7\%$. Вклад отдельных стандартных неопределенностей в суммарную стандартную неопределенность (бюджет неопределенности) коэффициента эманирования и ОА радона представлен в табл. 3.3.

Из приведенных данных видно, что основной вклад в суммарную стандартную неопределенность вносит неопределенность активности эманирующего источника ²²⁶Ra.

Эксперимент по изучению накопления радона в замкнутой системе проводился непрерывно в течение 41 сут [99]. Измеренные значения коэффициента эманирования представлены на рис. 3.3. Среднее значение коэффициента эманирования χ в ходе эксперимента составило 0,3685±0,005 при измерении по ²¹⁴Pb и 0,3718 ±0,0005 при измерении по ²¹⁴Bi (указано стандартное отклонение среднего значения). Как и в случае средства воспроизведения единицы, работающего в проточном режиме, в данном эксперименте разница между средними значениями коэффициента эманирования, полученными при

помощи независимых измерений активности продуктов распада радона в источнике, составила менее 1 %.

Таблица 3.3

Вклад отдельных стандартных неопределенностей в суммарную стандартную неопределенность (бюджет неопределенности) ОА радона для средства воспроизведения, работающего в замкнутом режиме

Тип неопределенности	Значение	Значение	Относительный
	$\tilde{u}_i, \%$	$c_i \tilde{u}_i$	вклад, %
Измерения по ²¹⁴ Рb			
Стандартная неопределенность ско-			
рости счета в пике полного поглоще-	0,75	1.28	12,3
ния, $\tilde{\mathbf{u}}_{A}^{\gamma}$			
Стандартная неопределенность оцен-			
ки эффективности регистрации в пике	0,92	1.57	18,6
полного поглощения, $\tilde{u}_B^{\varepsilon}$			
Стандартная неопределенность изме-	11	2.97	66.4
рения активности ²²⁶ Ra, $\tilde{u}_B(Ra)$	1,1	2,77	
Стандартная неопределенность опре-			
деления объема накопительной каме-	0,6	0,6	2,7
ры, $ ilde{u}_B^V$			
Измерения по ²¹⁴ Ві			
Стандартная неопределенность ско-			
рости счета в пике полного поглоще-	0,66	1,13	9,1
ния, \tilde{u}_A^{γ}			
Стандартная неопределенность оцен-			
ки эффективности регистрации в пике	1,1	1,89	25,4
полного поглощения, $\tilde{u}^{arepsilon}_B$			
Стандартная неопределенность изме-	11	2.97	62.8
рения активности ²²⁶ Ra, $\tilde{u}_B(Ra)$	1,1	2,77	02,0
Стандартная неопределенность опре-			
деления объема накопительной каме-	0,6	0,6	2,7
ры, $ ilde{u}_B^V$			



Рис. 3.3. Измеренные в течение эксперимента значения коэффициента эманирования источника ²²⁶Ra

На рис. 3.4. представлена кривая накопления OA радона в системе, измеренная при помощи HPGe-детектора и радон-монитора AlphaGUARD. Среднее значение отношения $OA_{Rn}^{AlphaGUARD}(t) / OA_{Rn}^{HPGe}(t)$ по всей серии из-

мерений, рассчитанное по среднему значению коэффициента эманирования χ (2.5), составило 0,979±0,010 при измерении по ²¹⁴Pb и 0,970 ±0,010 при измерении по ²¹⁴Bi (P = 0,95). При использовании текущих измеренных значений коэффициента эманирования $\chi(t)$ и расчете по уравнениям (2.6) и (2.7) результат практически не изменился и составил 0,980±0,010 и 0,971±0,010 (P = 0,95) соответственно.



Рис. 3.4. Кривая накопления ОА радона в системе, измеренная при помощи HPGe-детектора и радон-монитора AlphaGUARD, и температура в системе [99]

Следует отметить, что с 18 по 30 день эксперимента наблюдалось повышение окружающей температуры на 5 °С, обусловленное изменениями погодных условий. Наличие в системе эластичных соединительных шлангов не приводило к изменению атмосферного давления внутри рабочих камер при изменении температуры, что было подтверждено показаниями датчика атмосферного давления радон-монитора AlphaGUARD, находившегося внутри системы. При росте температуры коэффициент эманирования увеличился на 1,6 % [99].

Одновременно было зарегистрировано уменьшение показаний радонмонитора AlphaGUARD на 1,4 %. Последующее понижение окружающей температуры привело к росту показаний радон-монитора. Подобное поведение показаний радон-монитора характерно для приборов с детектирующей системой на основе ионизационной камеры и обусловлено снижением плотности рабочего газа (воздуха).

Среднее значение отношения $OA_{Rn}^{AlphaGUARD}(t) / OA_{Rn}^{HPGe}(t)$ за период с

3 по 18 сут эксперимента, когда температурные условия были стабильны, составило1,003±0,004 при измерении по 214 Pb и 0,994 ±0,004 при измерении по 214 Bi (указано стандартное отклонение среднего значения). Таким образом, можно сделать вывод о стабильности работы средства воспроизведения единицы OA радона, работающего в замкнутом режиме, при изменениях температуры окружающей среды менее 5 °C.

Уменьшение стандартной неопределенности измерения активности ²²⁶Ra с 1,1 до 0,8 % позволяет снизить относительную суммарную неопределенность ОА радона до 3,0–3,1 %. Более высокое значение суммарной неопределенности для средства воспроизведения ОА радона, работающего в замкнутом режиме наблюдается, в том числе, и из-за меньшего значения коэффициента эманирования используемого источника ²²⁶Ra (χ =0,37 по сравнению с χ =0,44 для источника, используемого в проточной схеме). Для значения коэффициента эманирования χ =0,44 суммарная неопределенность \tilde{u}_c^{Rn} будет равна 2,7–2,9 %, что, как и в случае средства воспроизведения объемной активности радона, работающего в проточном режиме, может считаться приемлемым уровнем для первичного эталона ОА радона.

3.3. Характеристики средства воспроизведения единицы эквивалентной равновесной объемной активности радона

Для оценки сдвига равновесия между ДПР радона в боксе был поставлен специальный эксперимент. Произвели 25 отборов проб радиоактивных аэрозолей в боксе и измерили индивидуальную активность каждого из ДПР радона при помощи трехточечного метода Томаса [17, 40, 49]. Было получе-

значение сдвига равновесия HO, что среднее В боксе составляет ²¹⁸Ро:²¹⁴Рb:²¹⁴Вi=1:0,27:0,10. Относительно невысокое значение коэффициента равновесия F = 0.27 по сравнению с типичными для жилищ значениями F = 0.4 - 0.5 объясняется сравнительно небольшими размерами (2 м³) и вытянутой геометрией бокса, в результате чего существенную роль играет осаждение радиоактивных аэрозолей на стенки бокса. Для заданного среднего значения сдвига равновесия в цепочке распада ДПР радона была рассчитана погрешность использования метода Кузнеца, обусловленная отклонением сдвига равновесия от данного соотношения. Расчеты были выполнены для длительности отбора пробы t₀ = 600 с, времени начала измерений, после окончания отбора пробы $T_I = 1800$ с и времени окончания измерений $T_2 = 3600$ с. Результаты расчетов представлены на рис. 3.5.

В природных условиях обратный сдвиг равновесия между ²¹²Pb и ²¹²Bi отсутствует, поэтому эта область выделена на рисунке. Расчеты показали, что неопределенность оценки значения коэффициента Кузнеца, обусловленная влиянием сдвига равновесия, имеет размах $\theta_{cист}^F = 2,5$ %. Принимая распределение равномерным, можно оценить стандартную неопределенность данной величины как $\tilde{u}_B^K = \frac{\theta_{сист}^F}{\sqrt{3}} = 1,4$ % [100,101].

Данную неопределенность можно значительно уменьшить, если проводить замеры сдвига равновесия в каждом эксперименте по отбору радиоактивных аэрозолей на фильтр. Это не нарушит схемы эксперимента, поскольку измерения α -активности фильтра в трехточечном методе Томаса проводятся со второй по тридцатую минуту после окончания отбора пробы. После этого могут быть начаты измерения активности фильтра на γ -спектрометре по методу Кузнеца. При этом при расчете коэффициента Кузнеца можно будет использовать реальное отношение активностей ²¹⁸Po:²¹⁴Pb:²¹⁴Bi, сведя тем самым неопределенность \tilde{u}_B^K к нулю.



Рис 3.5. Погрешность определения ЭРОА радона методом Кузнеца вследствие отклонения сдвига равновесия в боксе от соотношения между продуктами распада радона ²¹⁸Po:²¹⁴Pb:²¹⁴Bi=1:0,26:0,10

Для определения стандартной неопределенности, оцененной по типу В, измерения активности ²¹⁴Ві на у-спектрометре, отградуированным по источникам ОСГИ-3 с радионуклидами ²⁴¹Am, ¹³³Ва и ¹⁵²Еи, в геометрии, соответствующей геометрии эксперимента, были проведены измерения источника ¹³⁷Сѕ из того же комплекта, поскольку энергия излучения данного нуклида 661 кэВ достаточно близка к энергии у-квантов ²¹⁴Ві 609,3 кэВ. Паспортная ¹³⁷Cs источника погрешность определения активности составляла $\theta_{cuc}^{\varepsilon}(^{137}\text{Cs}) = 1,8\%$ (P=0,99). Была рассчитана связанная с этим стандартная неопределенность, оцениваемая по типу В $\tilde{u}_B^{\text{пасп}}(Cs) = \frac{\theta_{\text{сис}}(Cs-137)}{\sqrt{3}} = 1,04 \%.$ Также было получено, что разница между расчетным значением активности 137 Cs. c учетом поправки источника на радиоактивный распад, ла $\tilde{u}_{B}^{\text{изм}}(Cs) = 0,4$ %. Стандартная неопределенность, оцененная по типу В,
измерения активности ²¹⁴Ві по γ -излучению в диапазоне 600–700 кэВ была рассчитана как $\tilde{u}_B^{\varepsilon}(Bi) = \sqrt{[\tilde{u}_B^{\text{изм}}(Cs)]^2 + [\tilde{u}_B^{\text{пасп}}(Cs)]^2} = 1,1 \%.$

В связи с тем, что один и тот же фильтр измерялся как по α -излучению ²¹⁴Po, так и по γ -излучению ²¹⁴Bi, влияние погрешности определения скорости прокачки воздуха через фильтр исключалось. При поверке эталонных средств измерений погрешность скорости прокачки воздуха через фильтр должна являться составной частью общей погрешности как независимая величина. Систематическая погрешность, обусловленная точностью измерения скорости отбора аэрозолей из объема бокса, может определяться погрешностью эталонного барабанного счетчика РГ7000 и составляет $\tilde{u}_B^{\text{npok}}$ =1 %. Для используемых в эксперименте интервалов между окончанием отбора пробы и началом измерений на γ -спектрометре ~4000 с стандартная неопределенность измерения активности ²¹⁴Bi составила u_A^{γ} =3,2 %.

Выражение для расчета ЭРОА радона методом Кузнеца можно представить в виде

$$A_{\text{3POA}}^{Rn} = \frac{N(t_o, T_1, T_2)}{\epsilon \eta \upsilon \cdot K(t_o, T_1, T_2)} \quad , \tag{3.14}$$

где $N(t_0;T_1,T_2)$ – количество импульсов, зарегистрированных γ -детектором за интервал времени с T_1 по T_2 после окончания прокачки при времени прокачки t_0 ; ε – эффективность регистрации γ -излучения (с учетом поправки на геометрию измерений); η – эффективность аэрозольного фильтра (эффективность задержки аэрозолей); υ – скорость прокачки воздуха через фильтр, л/мин; $K(t_0, T_1, T_2)$ – коэффициент Кузнеца. Использование пакета из трех фильтров позволяло учесть проскок аэрозольных частиц через единичный фильтр. Оценка суммарного проскока через пакет из трех фильтров показала, что данная величина не превышает 0,02 %, поэтому в дальнейшем неопределенность величины η_F во внимание не принималась.

Суммарное значение суммарной стандартной неопределенности было рассчитано как

$$\tilde{u}_c^{\text{3POA}} = \sqrt{\tilde{u}_A^{\gamma^2} + \tilde{u}_B^{\varepsilon}(Bi)^2 + \tilde{u}_B^{K^2} + \tilde{u}_B^{\text{прок}^2}}.$$
(3.15)

Суммарная стандартная неопределенность измерения ЭРОА радона составила $\tilde{u}_c^{\text{3POA}} = 3,8$ %. Основные составляющие погрешности средства воспроизведения ЭРОА радона представлены в табл. 3.4.

Таблица 3.4

Оценка вклада отдельных неопределенностей средства воспроизведения ЭРОА радона в суммарную стандартную неопределенность \tilde{u}_c^{3POA}

Тип неопределенности	Значение \tilde{u}_i ,	Относительный	
	%	вклад, %	
Стандартная неопределенность скорости	2.0	71.0	
счета в пике полного поглощения, \tilde{u}^{γ}_A	5,2	/1,0	
Стандартная неопределенность оценки эф-			
фективности регистрации в пике полного по-	1,1	8,5	
глощения, $\widetilde{u}^{arepsilon}_{B}(Bi)$			
Стандартная неопределенность оценки ко-	1 /	12.6	
эффициента Кузнеца, \widetilde{u}_B^K	1,4	15,0	
Стандартная неопределенность скорости	1.0	6.0	
прокачки воздуха через фильтр, $ ilde{u}_B^{ ext{npok}}$	1,0	0,9	

Для проверки работы средства воспроизведения единицы ЭРОА радона была поставлена специальная серия экспериментов. Из экспериментального бокса с высоким уровнем ОА и ЭРОА радона (см. главу 2) производился отбор пробы на пакет из трех аэрозольных фильтров АФА-РМП-20. Скорость отбора проб составляла 15 л/мин. Отбор проб производился в двух вариантах. В первом варианте фильтры использовались в стандартном режиме их применения. Во втором варианте перед началом отбора пробы с тыльной стороны фильтров убиралась марлевая сетка, предназначенная для увеличения их механической прочности.

После выдержки в течение 30 мин каждый из фильтров измерялся на α радиометре RAMON-01M, работающем в счетном режиме. Чувствительность радиометра была определена по образцовому источнику α -излучения ²³³U, ²³⁹Pu, ²³⁸Pu, ²⁴⁴Cm активностью 89,9 Бк, с соотношением активностей 1,0 : 0,66 : 0,93 : 0,27 и площадью 20 см², что соответствовало площади аэрозольного фильтра АФА-РМП-20. Измеренное значение чувствительности детектора составило $\varepsilon = 0,28\pm0,01$ (*k*=1).

Для более точного учета самопоглощения α-излучения в материале фильтра измерения α-активности производились с обеих сторон фильтра в соответствии с методикой, описанной в работе [102]. Измерения показали, что активность обратной стороны фильтра в несколько раз ниже по сравнению с лицевой, что указывает на неравномерное распределение радионуклидов по глубине фильтра. Чтобы рассчитать активность фильтра, была использована расчетная формула, предложенная А. К. Будыкой, для измерения объемной активности ²¹⁰Ро в воздухе рабочей зоны [102]

$$A = \frac{I_{\Phi}^{n} + I_{\Phi}^{06}}{\varepsilon} \cdot \frac{1}{1 + \frac{I_{3,\Phi}}{I_{2}}} \quad , \tag{3.16}$$

где A – активность фильтра, I_{ϕ}^{n} – скорость счета лицевой стороны фильтра, I_{ϕ}^{o6} – скорость счета обратной стороны фильтра, ε – эффективность регистрации RAMON-01M, $\frac{I_{3,\phi}}{I_{3}}$ – отношение скорости счета эталонного источника с энергией, соответствующей энергии измеряемого радионуклида, прикрытого чистым фильтром, к скорости счета того же эталонного источника без фильтра.

Поскольку для определения отношения $\frac{I_{3,\phi}}{I_3}$ необходимо проводить измерения для энергии α -частиц, соответствующей энергии частиц, испускаемых с фильтра осевшими на нем радионуклидами, был изготовлен специальный источник ²¹⁴Po. Для этого полированная металлическая пластина на время помещалась в контейнер, содержащий эманирующий источник ²²⁶Ra. При нахождении в атмосфере с высоким уровнем ОА радона на поверхности пластины образовывался активный слой осевших ДПР радона. Самопоглощение α -частиц в данном активном слое полностью отсутствует. Измерение поглощения α -излучения ²¹⁴Ро (E_{α}=7,69 МэВ) от бесконечно тонкого источника при прохождении через фильтр АФА-РМП-20 было выполнено для обоих вариантов проведения измерений (стандартное использование фильтра и предварительное удаление марлевой сетки с тыльной стороны фильтра).

Для фильтра в исходном состоянии отношение $\frac{I_{3,\Phi}}{I_3}$ составило 0,240±0,04 (*k*=1), для фильтров с удаленной сеткой данное отношение было равно 0,522±0,07 (*k*=1). После окончания измерений активности фильтров на α-радиометре фильтры переносились на γ-спектрометр, и в течение 1800 с производилось измерение активности ²¹⁴Ві на всем пакете фильтров. С учетом доставки фильтров в лабораторию, где был установлен спектрометр, время от окончания отбора пробы до начала измерений на γ-спектрометре, в среднем составляло 4000 с. Значение ЭРОА радона рассчитывалось исходя из индивидуальных значений временных интервалов для каждой пробы. Было проведено 18 параллельных измерений ЭРОА радона на α-радиометре и γ-спектрометре. Результаты представлены в табл. 3.5.

Измерения с 1 по 10 были выполнены на стандартных фильтрах АФА-РМП-20, измерения с 11 по 18 – на фильтрах, с которых предварительно была удалена марлевая сетка с тыльной стороны фильтра. Один и тот же фильтр поочередно измерялся как на α -радиометре, так и γ -спектрометре, поэтому неопределенностями, обусловленными вариациями скорости прокачки при отборе пробы, можно было пренебречь. Среднее значение отношения ЭРОА_{α}/ЭРОА_{γ} составило 0,89±0,05 (*k*=1). Не наблюдалось статистически значимой разницы между измерениями, выполненными на стандартных фильтрах АФА-РМП-20 и фильтрах с удаленной с тыльной стороны марлевой сеткой. Наблюдаемая разница между измерениями на α -радиометре и γ спектрометре может быть объяснена погрешностями определения чувствительности α -радиометра и численного значения отношения $\frac{I_{3,\phi}}{I_3}$, используемого при расчете активности фильтров при измерении на α -радиометре.

113

Сопоставление значений ЭРОА радона, полученных путем измерений активности на одном и том же фильтре

N⁰	Измерения на	Измерения на	Отношение
п/п	α-радиометре	ү-спектрометре	$\exists POA_{\alpha}/\exists POA_{\gamma}$
1	2072	2353	0,88
2	3165	3163	1,00
3	3076	3245	0,95
4	2082	2386	0,87
5	1839	1941	0,95
6	2432	2563	0,95
7	1647	1962	0,84
8	2878	3052	0,94
9	1925	2413	0,80
10	1828	2019	0,91
11	2131	2290	0,93
12	4438	5084	0,87
13	5165	6151	0,84
14	4489	5466	0,82
15	3420	3998	0,86
16	8778	9247	0,95
17	4713	5592	0,84
18	6289	7082	0,89
Среднее значение			0,89±0,05*

* Примечание: приведено стандартное отклонение единичного измерения.

Следует отметить, что вследствие технических и организационных ограничений точность определения ЭРОА радона в ходе экспериментов не была максимальной. Это было обусловлено тем, что бокс, в котором производился отбор проб аэрозолей ДПР радона, был расположен на территории Уральского федерального университета, а у-спектрометр с детектором HPGe находился в помещении Института промышленной экологии УрО РАН, что требовало дополнительного времени для транспортировки образца. Доминирующий вклад в суммарную стандартную неопределенность $\tilde{u}_c^{\mathrm{3POA}}$ вносит стандартная неопределенность скорости счета в пике полного поглощения $\tilde{u}_{\scriptscriptstyle A}^{\gamma}$. При уменьшении интервала между окончанием отбора пробы и началом измерений данная величина может быть снижена до \tilde{u}_{A}^{γ} =1,6 %. Данная стандартная неопределенность дополнительно может быть снижена за счет повышения скорости отбора пробы с 15 до 30 л/мин. При точном определении методом Томаса сдвига равновесия между ДПР радона при каждом отборе пробы стандартная неопределенность оценки коэффициента Кузнеца \tilde{u}_{B}^{K} становится равной нулю. В результате может быть достигнута суммарная стандартная неопределенность измерений $\tilde{u}_{c}^{\text{ЭРОА}} = 2,2\%$, что является величиной, достаточной для обеспечения работы средства воспроизведения ЭРОА радона.

В результате описанных в главе 3 исследований можно сделать следующие выводы.

1. Разработанные средства воспроизведения единицы ОА радона, работающие в проточном и замкнутом режимах, позволили обеспечить суммарную стандартную неопределенность ОА радона $\tilde{u}_c^{Rn} = 3,7$ %.

2. Основным источником неопределенности воспроизведения единицы ОА радона является неопределенность измерения активности ²²⁶Ra, $\tilde{u}_B(Ra)$. Для средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего в проточном режиме, дополнительным источником суммарной неопределенности является стандартная пуассоновская неопределенность скорости счета в пике полного поглощения, \tilde{u}_{4}^{γ} .

3. Снижение неопределенности измерения активности ²²⁶Ra до величины $\tilde{u}_B(Ra) = 0.8$ %, увеличение для средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего в проточном режиме, длительности измерений активности ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi в четыре раза и повышение коэффициента эманирования χ источника ²²⁶Ra позволяет получить значение суммарной неопределенности ОА радона равное 2,6–2,9 %.

4. Средство воспроизведения единицы ЭРОА радона обеспечивает суммарную стандартную неопределенность $\tilde{u}_c^{3POA} = 3,8$ %. Доминирующим источником суммарной неопределенности является стандартная неопределенность скорости счета в пике полного поглощения \tilde{u}_A^{γ} .

5. При снижении неопределенности до значения $\tilde{u}_{A}^{\gamma} = 1,6$ %, а также исключения влияния стандартной неопределенности оценки коэффициента Кузнеца \tilde{u}_{B}^{K} суммарная стандартная неопределенность измерений ЭРОА радона может быть снижена до $\tilde{u}_{c}^{\text{ЗРОА}} = 2,2$ %.

ГЛАВА 4. ПЕРЕДАЧА РАЗМЕРА ЕДИНИЦЫ ИЗМЕРЕНИЯ ОА И ЭРОА РАДОНА ОТ СРЕДСТВ ВОСПРОИЗВЕДЕНИЯ ЕДИНИЦ К ПО-ВЕРЯЕМЫМ СРЕДСТВАМ ИЗМЕРЕНИЙ

4.1. Передача размера единицы измерения ОА радона на средстве воспроизведения, работающем в проточном режиме

Для средства воспроизведения единиц ОА радона, работающего в проточном режиме, возможно несколько вариантов его применения:

– непрерывная прокачка радоново-воздушной смеси с известным значением ОА радона непосредственно через рабочий объем ионизационной или электростатической камеры поверяемого прибора, впоследствии используемого в качестве эталонного средства измерения для поверки рабочих средств измерений;

 непрерывная прокачка радоново-воздушной смеси через герметичную накопительную камеру, в которой через некоторое время установится равновесное значение ОА радона.

В первом варианте показания прибора могут сниматься непрерывно, и в течение поверки будет получен ряд измеренных значений ОА радона, которые можно будет сличить с расчетным значением ОА радона, полученным на основании данных об активности эманирующего источника ²²⁶Ra, измеренного коэффициента эманирования χ , и скорости прокачки воздуха υ .

Во втором варианте измерения могут производиться только после установления в камере равновесного значения ОА радона. Время, необходимое для установления равновесного состояния, можно оценить как

$$t_{\min}^{\operatorname{прок}} \ge 5\frac{v}{v},\tag{4.1}$$

где V – объем камеры. При $t_{min}^{прок} = 5 \frac{V}{v}$ значение ОА радона в проточной камере будет отличаться от равновесного значения всего на 0,6 %.

При втором варианте применения средства воспроизведения единиц в качестве поверяемых средств измерений могут выступать не только элек-

тронные измерительные приборы на основе ионизационной или электростатической камеры, но и такие интегрирующие средства измерений, как трековые детекторы или угольные адсорберы. В данном случае величиной, задаваемой при поверке, будет являться экспозиция по ОА радона, рассчитываемая как

$$P_{Rn} = \int_0^t C_{Rn}(t') dt' \,. \tag{4.2}$$

Отклонение величины $C_{Rn}(t')$ от равновесного значения в начале прокачки радоново-воздушной смеси через накопительную камеру и при окончании экспонирования может быть учтено расчетным методом или соответствующей организацией процедуры поверки.

Рассмотрим точность, с которой могут быть аттестованы эталонные средства измерений ОА радона, использующие в качестве детектора ионизационную или электростатическую камеру. Примером первого типа приборов может являться широко используемый в метрологической практике радонмонитор AlphaGUARD (рис. 4.1), включенный в Государственный реестр средств измерений как эталонное средство измерений. Характеристики радон-монитора AlphaGUARD приведены в разделе 2.3.1. Основным интересующим нас для оценки случайных погрешностей параметром является чувствительность прибора, равная 0,05 (имп/мин)/(Бк/м³).

В качестве эталонного средства измерений на базе электростатической камеры может быть рассмотрен прибор RAD-7 [103] (рис. 4.2). Прибор RAD-7 может использоваться как для измерения OA радона, так и для измерения OA торона, также используется в качестве вторичного эталона в поверочных схемах [94, 97]. Заявленная производителем точность измерений прибором RAD-7 составляет ±5%. Чувствительность прибора равна 0,013 (имп/мин)/(Бк/м³). В Государственный реестр средств измерений при-бор RAD-7 не внесен.



Рис. 4.1. Радон-монитор AlphaGUARD



Рис. 4.2. Прибор для измерения ОА радона RAD-7

Неопределенность поверки данных средств измерений обусловлена несколькими факторами:

– суммарной стандартной неопределенностью средства воспроизведения единицы ОА радона \tilde{u}_c^{Rn} , оцененной в предыдущей главе;

– стандартной неопределенностью, оцененной по типу A измерения OA радона \tilde{u}_A^{Rn} , обусловленной пуассоновской погрешностью набора зарегистрированных импульсов и зависящей от чувствительности поверяемого средства измерений; дополнительными неопределенностями, связанными с используемой методикой поверки.

При последовательном включении средства воспроизведения единицы ОА радона и поверяемого прибора (рис. 2.19) дополнительные источники неопределенностей практически отсутствуют, основным источником неопределенности поверки вторичного эталона, кроме неопределенности средства воспроизведения единицы ОА радона, будет неопределенность, обусловленная пуассоновским распределением количества зарегистрированных импульсов.

При ОА радона, равной 500 Бк/м³, приборами AlphaGUARD и RAD-7 за 1 час измерений будет зарегистрировано 1500 и 390 импульсов соответственно, что отвечает стандартной неопределенности $\tilde{u}_{A}^{Rn} = 2,6$ и 5,1 % соответственно. При увеличении ОА радона до 1700 Бк/м³, что соответствует значениям, полученным при испытании средства воспроизведения (табл. 3.1), случайная неопределенность часовых измерений \tilde{u}_{A}^{Rn} снижается до 1,4 и 2,7 %. Оценка неопределенностей в часовых сериях измерений, выполненных прибором AlphaGUARD при испытании средства воспроизведения, показала, что стандартная неопределенность \tilde{u}_{A}^{Rn} в серии из шести 10-минутных измерений действительно лежит в пределах 1,3–1,7 %. Увеличение длительности поверки до 4 ч снизит величину \tilde{u}_{A}^{Rn} вдвое. В главе 3 было продемонстрировано, что при неопределенности измерения активности ²²⁶Ra в эманирующем источнике, не превышающей 0,8 %, возможно достижение суммарной стандартной неопределенности ОА радона на выходе средства воспроизведения $\tilde{u}_{c}^{Rn} = 2,9$ %.

Таким образом, значение стандартной неопределенности поверки вторичного эталона на базе приборов AlphaGUARD и RAD-7 может быть оценено как [100, 101]

$$u_{c}^{\text{пов}} = \sqrt{\tilde{u}_{c}^{Rn^{2}} + \tilde{u}_{A}^{Rn^{2}}} .$$
 (4.3)

Для ОА радона, равной 1700 Бк/м³, и длительности измерений 4 часа значение расширенной неопределенности составит для прибора AlphaGUARD $u_c^{\text{пов}} = 3 \%$, а для прибора RAD-7 – 3,9 %, что может считаться приемлемым результатом для вторичного эталона, по которому будет осуществляться поверка рабочих средств измерений. Для прибора AlphaGUARD доминирующий вклад в суммарную стандартную неопределенность $u_c^{\text{пов}}$ вносит суммарная стандартная неопределенность средства воспроизведения. Для прибора RAD-7 оба источника неопределенностей вносят сопоставимый вклад.

Рассмотрим неопределенность, с которой могут быть аттестованы трековые детекторы радона. Экспонирование детекторов может проводиться в накопительной камере, через которую осуществляется прокачка радонововоздушной смеси из средства воспроизведения. Основными источниками погрешностей при поверке трековых детекторов являются:

– суммарная стандартная неопределенность средства воспроизведения ОА радона \tilde{u}_{c}^{Rn} ;

 стандартная неопределенность ũ^{Rn}, оцененная по типу А, обусловленная случайным разбросом количества треков на поверхности и подчиняющаяся закону Пуассона;

 неопределенности u^{трек}_A, оцененные по типу A, связанные с процессом обработки материала трекового детектора и методом подсчета количества образовавшихся треков;

 неопределенности u^{трек}_B, оцененные по типу B, также обусловленные технологией обработки материала трекового детектора и методом подсчета количества образовавшихся треков.

Анализ неопределенностей трековых детекторов основывается на данных работ [37, 38, 104, 105]. При типичных значениях экспозиции по ОА радона от 200 до 500 кБк·м⁻³·ч случайная пуассоновская неопределенность \tilde{u}_A^{Rn} составляет от 5 до 3 %. Неопределенность, обусловленная процессами обработки материала детектора и автоматического счета количества образовавшихся треков, составляет $\tilde{u}_A^{\text{трек}} = 25$ % для материала LR-115 и $\tilde{u}_A^{\text{трек}} = 6$ % для CR-39 [104, 105]. Дополнительные систематические погрешности, возникающие при поверке трековых детекторов, могут быть связаны с незначительными отклонениями в режимах обработки детекторов (концентрация щелочи в процессе травления, отклонение температуры раствора от заданного значения и др.) или в процедуре подсчета треков (качество контакта в электроискровом счетчике, надежность распознавания трека при оптическом считывании и др.). Все это может привести к тому, что полученное в процессе поверки значение чувствительности для данного типа детектора может отличаться от значения чувствительности детекторов из этой же партии, используемых в практических измерениях. Численные значения такой систематической погрешности оценить достаточно сложно. В работе [105] по результатам анализа международных интеркалибровок трековых детекторов [37, 106, 107] было показано, что для детекторов, представленных различными лабораториями, стандартное отклонение измеренных значений ОА радона от заданного значения при интеркалибровке составило 14 %. Однако необходимо учитывать, что такое отклонение могло быть обусловлено смещенной оценкой коэффициента чувствительности трековых детекторов, поверенных в различных лабораториях. Соответственно данное значение не может быть использовано в качестве оценки величины неопределенности $u_B^{\text{трек}}$. Более реалистичная оценка данной неопределенности может быть сделана на основе результатов повторных поверок, выполненных для одних и тех же партий трекового материала. Информация по результатам повторных поверок трековых детекторов на основе нитроцеллюлозы LR-115 была любезно предоставлена радиационной лабораторией Института промышленной экологии УрО РАН. Данная величина составила $u_B^{\text{трек}} = 3,9$ %, что представляется достаточно логичным значением.

Суммарная стандартная неопределенность поверки трековых детекторов может быть рассчитана как [100, 101]

$$\tilde{u}_c^{\text{пов}} = \sqrt{\tilde{u}_c^{Rn^2} + \tilde{u}_A^{Rn^2} + \tilde{u}_A^{\text{трек}^2} + \tilde{u}_B^{\text{трек}^2}} \,. \tag{4.4}$$

Для детекторов, выполненных на базе LR-115 $\tilde{u}_c^{\text{пов}} = 25,8$ %, а для детекторов на основе CR-39 – $\tilde{u}_c^{\text{пов}} = 8,7$ %. Для детекторов CR-39 точность поверки может быть достаточна для их использования не только в качестве рабочих, но и эталонных средств измерений.

Вклад отдельных стандартных неопределенностей в суммарную стандартную неопределенность (бюджет неопределенности) коэффициента эманирования и ОА радона представлен в табл. 4.1. Таким образом, видно, что средство воспроизведения единицы ОА радона, работающее в проточном режиме, обеспечивает достаточную точность передачи размера единицы измерения эталонным средствам измерений.

Таблица 4.1

Вклад отдельных стандартных неопределенностей в суммарную стандартную неопределенность (бюджет неопределенности) поверки трековых детекторов

	Детекторы LR-115		Детекторы CR-39	
Тип неопределен- ности	Значение ũ _i , %	Относитель- ный вклад, %	Значение \tilde{u}_i , %	Относи- тельный вклад, %
Суммарная стан- дартная неопреде- ленность средства воспроизведения ОА радона \tilde{u}_c^{Rn}	2,9	1,3	2,9	11,1
стандартная не- определенность \tilde{u}_A^{Rn} , обусловлен- ная случайным разбросом количе- ства треков на по- верхности и под- чиняющаяся зако- ну Пуассона	4,0	2,4	4,0	21,2
Стандартная не- определенность $u_A^{\text{трек}}$, оцененная по типу А, связан- ная с процессом обработки матери- ала трекового де- тектора	25	94,0	6,0	47,6
Стандартная не- определенность $u_B^{\text{трек}}$, оцененная по типу В, связан- ная с процессом обработки матери- ала трекового де- тектора	3,9	2,3	3,9	20,1

4.2. Передача размера единицы измерения ОА радона на средстве воспроизведения, работающем в замкнутом режиме

Средство воспроизведения единицы ОА радона, работающее в замкнутом режиме, также может быть использовано для передачи размера единицы измерения как на приборы, использующие в качестве детектора ионизационную или электростатическую камеру, так и на интегрирующие трековые детекторы.

Поверка трековых детекторов на средстве воспроизведения единицы ОА радона, работающем в замкнутом режиме, не имеет принципиальных отличий от поверки на устройстве, работающем в проточном режиме. Трековые детекторы помещаются в объем накопительной камеры (рис. 2.20), а экспозиция по ОА радона рассчитывается как

$$P_{Rn} = \int_{0}^{t} C_{Rn}(t')dt' = \int_{0}^{t} \frac{A_{Ra}\cdot\chi}{V} (1 - \exp(-\lambda_{Rn}t'))dt'.$$
(4.5)

В главе 3 было показано, что при стандартной неопределенности измерения активности источника 226 Ra, равной 0,8 %, суммарные стандартные неопределенности средств воспроизведения единицы ОА радона обеих конструкций имеют близкие значения ~2,9 %. Соответственно, суммарная стандартная неопределенность поверки трековых детекторов и бюджет неопределенностей будут одинаковы для средства, работающего как в проточном, так и в замкнутом режимах (табл. 4.1).

Поверка электронных средств измерения ОА радона, например приборов AlphaGUARD или RAD-7, может осуществляться двумя способами. В первом способе поверки поверяемый прибор размещается внутри накопительной камеры, и производятся измерения ОА радона в период накопления радона в камере. При этом для различных моментов времени (и различных значений ОА радона) рассчитывается значение поправочного коэффициента

$$k_{\varepsilon} = \frac{C_{Rn}^{\text{MM}}(t)}{C_{Rn}^{\text{pacy}}(t)},\tag{4.6}$$

где $C_{Rn}^{\mu_{3M}}(t)$ – показания поверяемого прибора; $C_{Rn}^{\text{pacч}}(t)$ – расчетное значение ОА радона, вычисляемое по формулам:

$$C_{\rm Rn}(t) = \frac{A_{Ra} \cdot \chi}{V} (1 - \exp(-\lambda_{Rn} t))$$
(4.7)

для постоянного значения коэффициента эманирования и

$$\frac{dC_{Rn}}{dt} = -\lambda_{Rn}C_{Rn} + \frac{A_{Ra}\lambda_{Rn}\chi(t)}{V} , \qquad (4.8)$$

$$C_{\rm Rn}(t) = \int_0^t \frac{\mathrm{d}C_{\rm Rn}(t')}{\mathrm{d}t'} \mathrm{d}t' \tag{4.9}$$

при изменении коэффициента эманирования во времени в течение поверки.

С учетом того, что подобная схема поверки подразумевает проведение многочисленных (от нескольких десятков до сотни) замеров длительностью в 1 ч, а также того, что уровни ОА радона в устройстве, работающем по замкнутой схеме, лежат в диапазоне 3000–30000 Бк/м³, вклад стандартной неопределенности измерения ОА радона \tilde{u}_A^{Rn} , оцененной по типу А, обусловленной пуассоновской погрешностью набора зарегистрированных импульсов, будет пренебрежимо мал по сравнению с суммарной стандартной неопределенностью \tilde{u}_c^{Rn} . Основным источником неопределенностей при поверке эталонных средств измерений будет являться именно суммарная стандартная неопределенность средства воспроизведения единицы ОА радона. Проявление дополнительных неопределенностей, обусловленных спецификой работы поверяемых приборов, может быть выявлено в ходе поверки. Примером может являться температурная зависимость чувствительности прибора AlphaGUARD, зарегистрированная в ходе испытаний устройства, работающего в замкнутом режиме.

Второй вариант поверки приборов для измерения ОА радона может осуществляться путем накопления в объеме системы заданной активности радона, рассчитываемой по формуле

$$A_{\rm Rn}(t) = A_{Ra} \,\chi(1 - \exp(-\lambda_{Rn}t)). \tag{4.10}$$

После достижения требуемого значения активности циркуляция воздуха внутри системы прекращается, накопительная камера герметизируется путем перекрытия входного и выходного вентилей, и отсоединяется от системы. Активность радона в накопительной камере на момент отсоединения от системы определяется временем накопления радона в системе и соотношением объемов накопительной камеры и общего объема системы

$$A_{Rn}^{\rm HK} = A_{\rm Rn}(t) \frac{V_{\rm HK}}{V_{\rm CHCT}}.$$
(4.11)

В дальнейшем накопительная камера может быть присоединена к другой камере с известным объемом, и радон может быть переведен туда путем многократной циркуляции воздуха через накопительную камеру и присоединенный объем. В данном случае накопительная камера с содержащимся в ней радоном является эталонным источником активности радона, полученным непосредственно средстве воспроизведения ОА радона и, следовательно, имеющим такую же суммарную стандартную неопределенность $\tilde{u}_{c}^{Rn} = 2.9$ %. Неопределенности поверки при помощи такого эталона эталонных средств измерений в целом будут определяться рассмотренными выше факторами: пуассоновской неопределенностью количества зарегистрированных импульсов или треков, неопределенностями, обусловленными травлением и подсчетом треков на трековых детекторах и т. д. Дополнительным фактором неопределенности может являться неопределенность объема вторичной камеры, в которую помещаются поверяемые приборы. Следует отметить, что при данном варианте поверки может быть использована накопительная камера с существенно меньшим объемом (не более 3-5 л), чем была использована в эксперименте, описанном в главах 2 и 3. При этом, однако, требования к точному определению объема всех компонентов замкнутой системы сохраняют-СЯ.

4.3. Передача размера единицы измерения на средстве воспроизведения ЭРОА радона

Методы поверки приборов для измерения ЭРОА радона достаточно хорошо разработаны и документированы [107, 108]. Принцип поверки приборов для измерения ЭРОА радона состоит в одновременном отборе пробы на поверяемый и эталонный приборы, в проведении измерений и сопоставлении результатов. Согласно [108, 109] серия измерений должна состоять не менее чем из 5 параллельных измерений.

Предложенный в настоящей работе вариант средства воспроизведения единицы ЭРОА радона позволяет проводить измерения по аналогичной схеме. Основным условием является идентичность и представительность отбора пробы на эталонный и поверяемый приборы. Наилучшим образом это обеспечивается в ситуации, когда фильтры, на которые ведется отбор проб, расположены непосредственно внутри бокса и пробоотбор ведется без использования дополнительных шлангов, на которых возможно диффузионное оседание ультрадисперсной фракции (~ 1 нм) ДПР радона. В частности, подобная схема поверки была реализована в 1998–2010 гг. в Региональной поверочной лаборатории радоновых приборов, созданной на базе Вузовскоакадемической радоновой лаборатории Уральского государственного технического университета-УПИ (ныне Уральский федеральный университет). Это позволило проводить поверку приборов, имеющих различные скорости отбора пробы.

В современных радиометрах ЭРОА радона «Альфарад плюс» измерение α -активности фильтра производится в спектрометрическом режиме в течение 5 мин 10 с (отбор пробы – 180 с, перемещение фильтра – 10 с, измерение фильтра 120 с) или 10 мин 10 с (отбор пробы – 300 с, перемещение фильтра на позицию измерения – 10 с, измерение – 300 с). При этом производится раздельное измерение активности ²¹⁸Ро и ²¹⁴Ро, осевших на фильтре. На основании соотношения между активностями изотопов полония производится расчет ЭРОА радона, коэффициента равновесия F и индивидуальных значений объемных активностей короткоживущих членов цепочки распада радона. Аналогичный принцип работы заложен и в радиометре РАМОН-02, выпускаемом в Казахстане и внесенном в Государственный реестр средств измерений. Общая длительность измерений на радиометре РАМОН-02 не превышает 4 мин.

В принципе, использование метода Кузнеца с измерением активности ²¹⁴Ві по γ-излучению позволяет отказаться от параллельного отбора проб и использовать последовательное измерение активности фильтра сначала на поверяемом приборе, а затем на γ-спектрометре с НРGe-детектором. Повторное измерение активности фильтра на γ-спектрометре с последующим расчетом ЭРОА радона потребует следующих условий:

– активность ДПР радона на фильтре должна быть достаточна для измерения активности ²¹⁴Ві по γ -излучению со стандартной неопределенностью $\tilde{u}_{A}^{\gamma} \sim 1,5 \%$;

– контроль скорости прокачки воздуха через фильтр должен осуществляться со стандартной неопределенностью $\tilde{u}_B^{\text{прок}} \sim 1-2$ %;

– для заданного размерного распределения радиоактивных аэрозолей в боксе значение эффективности аэрозольного фильтра η (эффективности задержки аэрозолей) должно быть определено со стандартной неопределенностью $\tilde{u}_{B}^{\eta} \sim 1-2$ %.

На практике данные условия являются не всегда выполнимыми, особенно в части требования представительного отбора пробы. У упомянутого выше радиометра «Альфарад-плюс» скорость прокачки составляет всего 10 л/мин, а у радиометра РАМОН-02 при скорости прокачки 30 л/мин длительность прокачки не превышает 2 мин. При таких условиях достаточная активность для измерения на γ-спектрометре может быть обеспечена только при достаточно высоких, порядка нескольких тысяч Бк/м³, значениях ЭРОА радона. В связи с этим представляется более целесообразной следующая схема поверки с использованием средства воспроизведения единицы ЭРОА радона.

1. Подключение поверяемого прибора и пробоотборника средства воспроизведения ЭРОА радона к шлюзу в боксе с заданным значением ЭРОА радона. В пробоотборник средства воспроизведения устанавливаются не менее трех аэрозольных фильтров АФА-РМП или АФА-РСП для обеспечения полного улавливания аэрозолей.

2. Одновременный отбор пробы радиоактивных аэрозолей на поверяемый прибор и пробоотборник средства воспроизведения ЭРОА радона.

3. Проведение измерения и расчета ЭРОА радона на поверяемом приборе в соответствии с инструкцией по его эксплуатации.

4. Измерение со 2-й по 30-ю мин после окончания прокачки при помощи α-радиометра кривой распада α-излучающих нуклидов ²¹⁸Po и ²¹⁴Po, осевших на первом фильтре.

5. Установка пакета фильтров со средства воспроизведения ЭРОА радона в держатель образцов на γ-спектрометре и измерение активности пакета по ²¹⁴Bi с 30-й по 60-ю мин после окончания прокачки.

6. С использованием измерения кривой распада α -излучающих нуклидов ²¹⁸Ро и ²¹⁴Ро, осевших на первом фильтре, расчет сдвига равновесия между ²¹⁸Ро, ²¹⁴Рb и ²¹⁴Вi по методу Томаса.

7. Расчет коэффициента Кузнеца для заданной длительности отбора пробы и сдвига равновесия между короткоживущими ДПР радона.

8. Расчет ЭРОА радона для измерений, выполненных на средстве воспроизведения.

9. Сопоставление результатов, полученных на средстве воспроизведения единицы ЭРОА радона, с результатами измерений, полученных с помощью поверяемого средства измерений.

В результате описанных в главе 4 исследований можно сделать следующие выводы.

1. При передаче размера единицы измерения ОА радона электронным средствам измерений основными источниками суммарной неопределенности являются неопределенность средства воспроизведения единицы ОА радона и неопределенность, обусловленная пуассоновским распределением количества зарегистрированных импульсов.

2. Для трековых детекторов основными источниками неопределенности являются неопределенности, оцененные по типу A и B, связанные с процессом обработки материала трекового детектора.

3. При передаче размера единицы измерения ЭРОА радона доминирующим источником суммарной неопределенности будут неопределенности, обусловленные конструктивными особенностями поверяемого прибора.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Дано обоснование принципа работы и конструкции средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего как в проточном, так и в замкнутом режиме с непрерывным контролем коэффициента эманирования по отношению активностей 214 Pb/ 226 Ra и 214 Bi/ 226 Ra в источнике. Создан прототип специального эталона ОА радона, позволяющий осуществлять при контроле косвенным методом воспроизведение ОА радона в диапазоне 300–30000 Бк/м³ с суммарной стандартной неопределенностью, не превышающей 2,9 %.

2. Показано, что основными источниками суммарной стандартной неопределенности средства воспроизведения ОА радона являются стандартная неопределенность активности ²²⁶Ra в эманирующем источнике и неопределенность скорости счета в пике полного поглощения.

3. Дано обоснование принципа работы и конструкции средства воспроизведения единицы ЭРОА радона с использованием единичного измерения активности ²¹⁴Ві на фильтре и расчетом значения ЭРОА радона по методу Кузнеца с учетом сдвига равновесия в цепочке распада ДПР радона 218 Ро 214 Рb 214 Ві. Доказана принципиальная возможность обеспечить суммарную стандартную неопределенность, не превышающую 2,2 %.

4. Показано, что основной составляющей суммарной неопределенности средства воспроизведения ЭРОА радона является неопределенность скорости счета в пике полного поглощения.

5. Показано, что при передаче размера единицы измерения ОА радона электронным средствам измерений основными источниками суммарной неопределенности являются неопределенность средства воспроизведения и неопределенность, обусловленная пуассоновским распределением количества зарегистрированных импульсов. Для трековых детекторов основными источниками неопределенности являются неопределенности, связанные с процессом обработки материала трекового детектора. 6. При передаче размера единицы измерения ЭРОА радона доминирующим источником суммарной неопределенности будут неопределенности, обусловленные конструктивными особенностями поверяемого прибора.

Перспективы дальнейшей разработки темы

Точность средств воспроизведения единицы ОА радона может быть повышена за счет разработки эманирующих источников ²²⁶Ra с активностью 1–500 кБк, суммарной неопределенностью измерения активности 0,1–0,3 % и коэффициентом эманирования 0,7–0,8. Точность средства воспроизведения единицы ЭРОА радона может быть повышена за счет повышения эффективности регистрации излучения ²¹⁴Bi, осевшего на фильтре. Область использования данного средства может быть существенно расширена при включении в его состав генераторов аэрозольных частиц с заданной дисперсностью и непрерывным контролем концентрации генерируемых аэрозолей.

СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ

- АМАД медианный по активности аэродинамический диаметр характеристика статистического распределения активности полидисперсного аэрозоля по аэродинамическому диаметру d_{ae}. Половина активности рассматриваемого аэрозоля ассоциирована с частицами, которые имеют d_{ae} больший, чем АМАД. Применяется, когда доминирующими механизмами, определяющими отложение в органах дыхания, являются инерционное и гравитационное осаждения при АМАD, большем 0,5 мкм. При отсутствии фактических данных предполагается логнормальное распределение частиц. Аэродинамический диаметр (d_{ae}) – диаметр сферической частицы единичной плотности (1 г.см⁻³), имеющей такую же скорость гравитационного осаждения, как и рассматриваемая аэрозольная частица.
- АМТД медианный по активности термодинамический диаметр характеристика статистического распределения активности полидисперсного аэрозоля по термодинамическому диаметру d_{th}. Половина рассматриваемой активности ассоциирована с частицами, которые имеют d_{th} больший, чем АМТD. Применяется, когда диффузия является доминирующим механизмом, определяющим отложение в дыхательной системе при АМTD, меньшем 0,5 мкм. Термодинамический диаметр (d_{th}) – диаметр сферической частицы, который имеет такой же коэффициент диффузии в воздухе, как и рассматриваемая аэрозольная частица.
- ВОЗ Всемирная организация здравоохранения
- ДИ доверительный интервал
- ДПР дочерние продукты распада
- МДОА минимально детектируемая объемная активность
- МКРЗ Международная комиссия по радиологической защите

НКДАР ООН – Научный комитет по действию атомной радиации при Организации Объединенных Наций

- НСП неисключенная систематическая погрешность
- ОА объемная активность
- ОСГИ образцовый спектрометрический гамма-источник
- СГ среднее геометрическое
- СГО стандартное геометрическое отклонение
- СКО среднее квадратическое отклонение
- УА удельная активность
- ЭРОА эквивалентная равновесная объемная активность
- HPGе полупроводниковый детектор из особо чистого германия
- k коэффициент охвата
- NIST Национальный институт стандартов и технологий (США)
- u_A стандартная неопределенность, оцененная по типу А
- *и*_{*B*} стандартная неопределенность, оцененная по типу В

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Источники, эффекты и опасность ионизирующей радиации: доклад НКДАР ООН за 1988 г.: в 2 т. – М.: Мир, 1992.
- UNSCEAR, 2009. United Scientific Committee on the Effects of Atomic radiation (UNSCEAR). UNSCEAR 2006 Report: Annexe E: Source-to-effects assessment for radon in homes and workplaces. – N. Y.: United Nations, 2009.
- Киселев, С. М. Радон: от фундаментальных исследований к практике регулирования / С. М. Киселев, М. В. Жуковский, И. П. Стамат и др. – М.: Изд-во «ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А. И. Бурназяна ФМБА России», 2016. – 432 с.
- WHO handbook on indoor radon: a public health perspective // World Health Organization. – 2009. – 108 p.
- 5. Гулабянц, Л. А. Пособие к МГСН 2.02-97. Проектирование противорадоновой защиты жилых и общественных зданий. – М.: НИИСФ, 1998. – 25 с.
- Жуковский, М. В. Радоновая безопасность зданий / М. В. Жуковский, А. В. Кружалов, В. Б. Гурвич и др. – Екатеринбург: УрО РАН, 2000. – 180 с.
- Zhukovsky, M. V. Mechanisms and sources of radon entry in buildings constructed with modern technologies / M. V. Zhukovsky, A. V. Vasilyev // Radiat. Prot. Dosimetry. – 2014. – № 160 (1–3). – P. 48–52.
- Yarmoshenko, I. V. Indoor radon problem in energy efficient multi-storey buildings / I. V. Yarmoshenko, A. V. Vasilyev, A. D. Onishchenko et al. // Radiat. Prot. Dosimetry. 2014. № 160 (1–3). P. 53–56.
- Васильев, А. В. Изменение кратности воздухообмена как мера снижения облучения населения радоном в городских жилищах, построенных с использованием современных технологий / А. В. Васильев, И. В. Ярмошенко, М. В. Жуковский // АНРИ. – 2014. – № 3. – С. 2–10.
- 10. Брегадзе, Ю. И. Прикладная метрология ионизирующих излучений / Ю. И. Брегадзе, Э. К. Степанов, В. П. Ярына. М.: Энергоатомиздат, 1990. 264 с.

- 11. Юдин, М. Ф. Измерение активности радионуклидов: справочное пособие / М. Ф. Юдин, Н. И. Кармалицин, А. Е. Кочин и др. СПб.: ВНИИМ. 1997. 398 с.
- Фридман А.Э. Основы метрологии. Современный курс. / А.Э. Фридман. С-Пб.: НПО «Прорфессионал». – 2008. – 284 с.
- ГОСТ 8.039-79. Государственная система обеспечения единства измерений.
 Государственный специальный эталон и общесоюзная поверочная схема для средств измерений активности нуклидов в бета-активных газах.
 М.: Изд-во стандартов, 1979.
- Crawford, D. J. Radiological characteristics of ²¹⁹Rn / D. J. Crawford // Health Phys. 1980. – Vol 39, N 3. – P. 449–461.
- ICRP, 2008 Nuclear Decay Data for Dosimetric Calculations. ICRP Publication 107. Ann. – ICRP 38 (3), 2008.
- 16. Жуковский, М. В. Риск возникновения рака легкого при облучении радоном и продуктами его распада. Заявление по радону // Публикация 115 МКРЗ. Перевод под ред. М. В. Жуковского, С. М. Киселева, А. Т. Губина. М.: Изд-во «ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А. И. Бурназяна ФМБА России», 2013. 92 с.
- Жуковский, М. В. Радон: измерение дозы, оценка риска / М. В. Жуковский,
 И. В. Ярмошенко, Екатеринбург: УрО РАН, 1997.
- 18. ICRU Report 88. Measurement and reporting of radon exposures // J. of ICRU.
 2012. -Vol. 12, № 2.
- Zhukovsky, M. Radon measurements discussion of error estimates for selected methods / M. Zhukovsky, A. Onischenko, V. Bastrikov // Appl. Radiat. Isot. – 2010. –Vol. 68. – P. 816–820.
- 20. Samuelsson, C. Retrospective determination of radon in houses / C. Samuelsson
 // Nature. 1988. Vol. 334. P. 338-340.
- 21. Falk, R. Retrospective assessment of radon exposure by measurements of ²¹⁰Po implanted in surfaces using an alpha track detector technique / R. Falk,

H. Mellander, L. Nyblom et al. // Environmental International. – 1996. – Vol. 22, Suppl. 1. – P. S857–S861.

- Жуковский, М. В. Метод ретроспективного определения объемной активности радона в помещении / М. В. Жуковский, В. В. Бастриков, А. В. Кружалов // АНРИ. 2005. № 4. С. 2–10.
- 23. Lucas, H. F. Improved Low-Level Alpha-Scintillation Counter for Radon / H. F. Lucas // The Review of Scientific Instruments. – 1957. – V. 28, N. 9. – P. 680 – 683.
- Shivakumara, B. C. Studies on ²²⁶Ra and ²²²Rn concentration in drinking water of Mandya region, Karnataka State, India / B. C. Shivakumara, M. S. Chandrashekara, E. Kavitha et al. // J. of Radiation Research and Applied Sciences. 2014. –V.7. P. 491–498.
- Руководство по эксплуатации Комплекса измерительного для мониторинга радона, торона и их дочерних продуктов «Альфарад плюс». Методика поверки (МП 49013-12). – М.: ВНИИФТРИ, 2011.
- 26. Perude, P.T. Radon monitoring instrumentation / P. T. Perude, H. W. Dickson,
 F. F. Haywood // Health Phys. 1980. V.39, N 1. P.85-88.
- Ziegelheim, C. J. Development of a continuous monitor for ²²⁶Ra in water / C. J. Ziegelheim, A. Busigin, C. R. Philips // Health Phys. 1982. V.42, N 3. P. 317–327.
- Measurement and calculation of radon releases from uranium mill tailings. Technical report series N 333. International Atomic Energy Agency. – Vienna, 1992.
- 29. Радиометр радона портативный РРА-01М-01 Руководство по эксплуатации. БВЕК 694330.001 РЭ. – М., 2009.
- Комплекс измерительный для мониторинга радона «КАМЕРА-01». Паспорт. НТЦ «НИТОН».– М., 2003.
- Nikolaev, V. A. Application of the track method for radon measurement in Ukraine / V. A. Nikolaev, M. G. Buzynniy, I. B. Vorobiev et al. // Nucl. Tracks Radiat. Meas. – 1993. – V. 21, N 3. – P. 433–436.

- 32. Nikolaev, V. A. Track Methods of Measurements in the Environment Developed in the Khlopin Radium Institute / V. A. Nikolaev // Radionuclides and Heavy Metals in Environment. – 2001. –Vol. 5 of the series NATO Science Series. – P. 349–360.
- Маренный, А. М. Диэлектрические трековые детекторы в радиационнофизическом и радиобиологическом эксперименте / А. М. Маренный. – М.: Энергоатомиздат, 1987. – 184 с.
- 34. Николаев, В. А. Твердотельные трековые детекторы в радиационных исследованиях / В. А. Николаев. – СПб. : Изд-во Политехн. ун-та, 2012. – 283 с.
- 35. МВИ 2.6.1.003-99. «Радон. Измерение объемной активности в воздухе помещений интегральным трековым методом». Свидетельство об аттестации методики радиационного контроля № 40090.2И385. – М.,1999.
- 36. Жуковский, М. В. Измерение Rn-220 в атмосфере: метрология и практическая реализация / М. В. Жуковский, А. А. Екидин, А. В. Грачева и др. // АНРИ. – 2010. –№ 1 (60). – С. 37–42.
- Daraktchieva, Z. Results of the 2011 HPA Intercomparison of Passive Radon Detectors / Z. Daraktchieva, C. B. Howarth, R. Algar. – HPA–CRCE–033. Health Protection Agency. – Chilton, 2012.
- Онищенко, А. Д. Определение индивидуальной экспозиции по объемной активности радона при смешанном производственно-бытовом облучении / А. Д. Онищенко, М. В. Жуковский // АНРИ. –2016. № 3.– С. 2–8.
- Рузер, Л. С. Радиоактивные аэрозоли / Л. С. Рузер. М.: Изд-во стандартов, 1968. – 191 с.
- Иванов, В. И. Курс дозиметрии: учебник для физических и физикотехнических специальностей вузов / В. И. Иванов. – 4-е изд., перераб. и доп. – М. :Энергоатомиздат, 1988. – 399 с.
- Марков, К. П. Экспресс-метод оценки радиационной опасности, связанной с наличием в воздухе дочерних продуктов радона / К. П. Марков, Н. В. Рябов, К. Н. Стась // Атомная энергия. 1962. Т. 12, № 4. С. 315–319.

- 42. Liang, J. C. Development of calibration facility forra donan ditsprogeniesat NIM (China)/ J. C. Liang, P. H. Zheng, Z. J. Yang et al. // Radiat. Prot. Dosimetry. 2015. V. 167, N. 1–3. P. 82 86.
- 43. Paul, A. A reference aerosol for a radon reference chamber / A. Paul, U. Keyser
 // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 1996. V. 368. –
 P. 819 824.
- 44. Tokonami, S. The Japanese Radon and Thoron Reference Chambers / S. Tokonami, T. Ishikawa, A. Sorimachi et al. // The Natural Radiation Environment: 8th International Symposium (NRE VIII). AIP Conference Proceedings. – 2008. – V. 1034. – P. 202 – 205.
- Kuznets, H. L. Radon daughters in mine atmospheres: a field method for determining concentration / H. L. Kuznets // American Industrial Hygiene Association Quarterly. 1956. Vol. 17. Issue 1. P. 85 88.
- 46. Rolle, R. Rapid working level monitoring / R. Rolle // Health Physics. 1972. –
 V. 22, No 3. P. 233 238.
- 47. Borak, T. B. Evaluation of recent developments in radon progeny measurements / T. B. Borak, E. Franco, K. J. Schiager et al. // Proc. Int. Conf. Radiation Hazards in Mining: Control, Measurement and Medical Aspects. Colorado, USA, 1981. P. 419 425.
- Крисюк, Э. М. Радиационный фон помещений / Э. М. Крисюк. М.: Энергоатомиздат, 1989.
- 49. Thomas, J. M. Modification of the Tsivoglou method for radon daughters in air /
 J. M. Thomas // Health Physics. 1970. Vol. 19. P. 691.
- 50. ГОСТ 8.090-79. Государственная система обеспечения единства измерений. Государственный специальный эталон и общесоюзная поверочная схема для средств измерений объемной активности радиоактивных аэрозолей. – М.: Изд-во стандартов. – 1979.
- De Felice, P. Primary standards of radon / P. De Felice // Metrologia. 2007. –
 V. 44. P. S82 S86.

- 52. Falk, R. Calibration of Radon-222 Reference Instrument in Sweden / R. Falk, H. More, L. Nyblom // J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. 1990. V. 95, No 2. P. 115 120.
- Falk, R. Standards, calibration and quality assurance of ²²²Rn measurements in Sweden / R. Falk, N. Hagberg, L. Mjones et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 1994. – V. 339. – P. 254–263.
- Holub, R. F. Bureau of Mines Method of Calibrating a Primary Radon Measuring Apparatus / R. F. Holub, W. P. Stroud // J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. 1990. V. 95, No 2. P.121 126.
- Sensintaffar, E. L. Calibration of Scintillation Cells for Radon-222 Measurements at the U.S. Environmental Protection Agency / E. L. Sensintaffar, S. T. Windham // J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. 1990. V. 95, No 2. P. 171 175.
- Gan, T. H. Standardization of Rn-222 at the Australian Radiation Laboratory / T. H. Gan, S. B. Solomon, J. R. Peggie // J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. – 1990. – V.95, No 2. – P. 143 – 145.
- Fisenne, I. M. A Calibration and Quality Assurance Program for Environmental Radon Measurement / I. M. Fisenne, A. C. George, H. W. Keller // J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. – 1990. – V. 95, No 2. – P. 127 – 134.
- Sciocchetti, G. The ENEA Facilities for Assessing the Quality of Indoor Radon Measurements / G. Sciocchetti, G. Cotelessa, P. De Felice et al. // Radiat. Prot. Dosimetry. – 1994. – V.56, No 1–4. – P. 303 – 307.
- 59. De Felice, P. The ²²²Rn Reference Measurement System developed at ENEA / P. De Felice, Xh. Myteberih // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 1996. V.369. P. 445 451.
- Colle, R. The NIST Primary Radon-222 Measurement System / Colle R., J. M.
 R. Hutchinson, M. P. Unterweger // J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. 1990. –
 V. 95, No 2. P. 155 165.
- Zettwoog, P. ICARE Radon Calibration Device / P. Zettwoog // J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. – 1990. –V. 95, No 2. – P. 147 – 153.

- 62. Dersch, R. Production and Measurement of ²²²Rn Standards / R. Dersch, U. Schotzig // Appl. Radiat. Isot. 1998. –V. 49, No. 9–11. P. 1171–1174.
- 63. Nedjadi, Y. Primary activity measurements with 4πγNaI(Tl) counting and Monte Carlo calculated efficiencies / Y. Nedjadi, P. Spring, C. Bailat et al. // Appl. Radiat. Isot. 2007. V. 65. P. 534 538.
- Picolo, J. L. Etude et realisation d'un dispositive cryogeniquepermettantd'effectuer des mesure sabsoluesd'activite de radon-222 envue de l'elaboration d'un e'talon primaire / J. L. Picolo // Rapport CEA-R-5696. – France, 1995.
- Picolo, J. L. Absolute measurement of radon 222 activity / J. L. Picolo // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 1996. V. 369. P. 452 457.
- 66. Dersch, R. Primary and secondary measurements of ²²²Rn / R. Dersch // Appl. Radiat. Isot. 2004. V. 60. P. 387 390.
- 67. Spring, P. Absolute activity measurement of radon gas at IRA-METAS / P. Spring, Y. Nedjadi, C. Bailat et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 2006. V. 568. P. 752 759.
- Kim, B. C. Development of the primary measurement standard for gaseous radon-222 activity / B. C. Kim, K. B. Lee, T. S. Park et al. // Appl. Radiat. Isot. – 2012. – V. 70. – P. 1934 – 1939.
- 69. Sabot, B. An absolute radon 222 activity measurement system at LNE-LNHB /
 B. Sabot, S. Pierre, P. Cassette // Appl. Radiat. Isot. 2016. V. 118. P. 167– 174.
- 70. Cassette, P. Standardization of ²²²Rn by LSC and comparison with α- and γ-spectrometry / P. Cassette, M. Sahagia, L. Grigorescu et al.// Appl. Radiat. Isot. 2006. V. 64. P. 1465–1470.
- 71. Sahagia, M. The ²²²Rn standard system established at IFIN-HH, Romania / M. Sahagia, D. Stanga, A. C. Watjen et al. // Appl. Radiat. Isot. 2010. V. 68. P. 1503–1506.

- Sahagia, M. Establishment of the ²²²Rn traceability chain with the Romanian standard system / M. Sahagia, A. Luca, A. C. Watjen et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 2011. V. 631. P. 73 79.
- 73. Sahagia, M. Realization of the metrological traceability chain of Rn-222 / M. Sahagia, A. Luca, A. Antohe et al. // Rom. Journ. Phys. 2013. V. 58, Suppl. P. S230–S242.
- Busch, I. Absolute measurement of the activity of ²²²Rn using a proportional counter / I. Busch, H. Greupner, U. Keyser // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 2002. V. 481. P. 330 338.
- 75. Sabot, B. Development of a primary thoron activity standard for the calibration of thoron measurement instruments / B. Sabot, S. Pierre, P. Cassette et al. // Radiat Prot Dosimetry. – 2015. – V.167, No 1–3. – P. 70–74.
- Sabot, B. A new thoron atmosphere reference measurement system / B. Sabot,
 S. Pierre, N. Michielsen et al. // Appl. Radiat. Isot. 2016. V. 109. P. 205–209.
- Kotrappa, P. Application of NIST ²²²Rn Emanation Standards for Calibrating ²²²Rn Monitors / P. Kotrappa, L. R. Stieff // Radiat Prot Dosimetry. 1994. V. 55, N 3. P. 211 218.
- Kotrappa, P. Radon monitor calibration using NIST radon emanation standards: steady flow method / P. Kotrappa, L. R. Stieff, P. Volkovitsky // Radiat. Prot. Dosimetry. – 2005. – V. 113, N. 1. – P. 70 – 74.
- Volkovitsky, P. NIST ²²²Rn emission standards / P. Volkovitsky // Appl. Radiat. Isot. – 2006. – V. 64. – P. 1249 – 1252.
- Kotrappa, P. One cubic metre NIST traceable radon test chamber / P. Kotrappa,
 F. Stieff // Radiat Prot Dosimetry. 2008. V. 128, No. 4. P. 500 502.
- Czech Metrology Institute Inspectorate for Ionizing Radiation. Calibration and reference standards. Catalogue. – Prague, 2011.
- 82. Sakamoto, S. Development of a radon standard source / S. Sakamoto,
 Y. Ishimori, Y. Maruo // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research
 A. 2005. V. 545. P. 516 523.

- 83. Röttger, A. A primary standard for activity concentration of ²²⁰Rn (thoron) in air / A. Röttger, A. Honig, R. Dersch et al. // Appl. Radiat. Isot. 2010. V. 68. P. 1292–1296.
- Röttger, A. Recent developments in radon metrology: new aspects in the calibration of radon, thoron and progeny devices / A. Röttger, A. Honig // Radiat. Prot. Dosimetry. 2011. V. 145, N. 2–3. P. 260 266.
- Röttger, A. Calibration of commercial radon and thoron monitors at stable activity concentrations / A. Röttger, A. Honig, D. Linzmaier // Appl. Radiat. Isot. 2014. V. 87. P. 44 47.
- 86. Linzmaier, D. Development of a low-level radon reference atmosphere / D. Linzmaier, A. Röttger // Appl. Radiat. Isot. 2013. V. 81. P. 208–211.
- Cliff, K. D. U.K. National Radiological Protection Board radon calibration procedure / K. D. Cliff // J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. – 1990. – V. 95, N 2. – P. 135–138.
- Honig, A. Environmental control of the German radon reference chamber / A. Honig, A. Paul, S. Röttger, et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. –1998. – V. 416. – P. 525–530.
- 89. Paul, A. Measurement of short-lived radon progenies by simultaneous αγ-spectrometry at the German radon reference chamber / A. Paul, S. Röttger, A. Honig et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 1999. V. 434. P. 303–312.
- 90. Paula, A. Measurement of radon and radon progenies at the German radon reference chamber / A. Paula, A. Honiga, S. Röttger et al. // Appl. Radiat. Isot. 2000. V. 52. P. 369 375.
- 91. Paul, A. Metrology of the activity concentration of radon and its progenies at the German radon reference chamber / A. Paul, A. Honig, S. Röttger et al. // International Congress Series. – 2002. – V. 1225. – P. 161–167.
- 92. Ichitsubo, H. Development of a radon-aerosol chamber at NIRS general design and aerosol performance / H. Ichitsubo, Y. Yamada, M. Shimo et al. // Aerosol Science. – 2004. – V. 35. – P. 217–232.

- 93. Jilek, K. Results on the 2014 ICHNRAA Intercomparison of Radon/Thoron gas and Radon Short-lived Decay Product Measurement Instruments at NRPI Prague / K. Jilek, J. Timková // Report SÚRO VVI. – 2015. – REG V. 3.3.
- 94. Liang, J. C. Development of calibration facility for radon and its progenies at NIM (China) / J. C. Liang, P. H. Zheng, Z. J. Yang et al. // Radiat. Prot. Dosimetry. – 2015. – V. 167, N. 1–3. – P. 82–86.
- 95. Paul, A. A reference aerosol for a radon reference chamber / A. Paul, U. Keyser
 // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 1996. V. 368. –
 P. 819 824.
- 96. Sorimachi, A. Performance test for radon measuring instruments using radon chamber at PTB / A. Sorimachi, T. Ishikawa, S. Tokonami // Appl. Radiat. Isot. - 2012. - V. 70. - P. 994 - 998.
- 97. Tokonami, S. The Japanese Radon and Thoron Reference Chambers / S. Tokonami, T. Ishikawa, A. Sorimachi et al. // The Natural Radiation Environment: 8th International Symposium (NRE VIII). AIP Conference Proceedings. – 2008. – V. 1034. – P. 202–205.
- 98. Васянович, М. Е. Влияние ультрадисперсных аэрозолей ДПР радона на измерения, выполняемые при помощи каскадных импакторов / М. Е. Васянович, М. Ю. Мостафа, М. В. Жуковский и др. // АНРИ. 2017. № 2 (89). С. 32–39.
- 99. Мостафа М.Ю. Прототип первичного эталона объемной активности радона
 / М.Ю. Мостафа, М.В. Жуковский, М.Е. Васянович //АНРИ. 2017. №3 (90). С. 2–15.
- 100. Государственная система обеспечения единства измерений. Применение «Руководства по выражению неопределенности измерений». РМГ 43-2001. Межгосударственный совет по стандартизации, метрологии и сертификации. – Минск, 2001.
- 101. ГОСТ Р 54500.3–2011 / Руководство ИСО/МЭК 98-3:2008. Неопределенность измерения. Ч. 3. Руководство по выражению неопределенности измерения. – М.: Стандартинформ, 2012. – 101 с.
- 102. Будыка, А. К. Волокнистые фильтры для контроля загрязнения окружающей среды / А. К. Будыка, Н. Б. Борисов. – М.: ИздАТ, 2008. – 360 с.
- 103. RAD7 radon detector. User Manual. Durridge Company, Inc. Canada, 2017.
- 104. Zhukovsky, M. Radon measurements discussion of error estimates for selected methods / M. Zhukovsky, A. Onischenko, V. Bastrikov // Appl. Radiat. Isot. – 2010. – Vol. 68. – P. 816 – 820.
- 105. Онищенко, А. Д. Роль искажающих факторов в радоновом эпидемиологическом исследовании / А. Д. Онищенко, М. В.Жуковский // Радиационная гигиена. – 2017. – Т. 10, № 1. – С. 65 – 75.
- 106. Howarth, C. B. Results of the 2001 NRPB Intercomparison of Passive Radon Detectors / C. B. Howarth, J. C. H. Miles // National Radiation Protection Board. Chilton. – 2002. – Report NRPB W21.
- 107. Howarth, C. B. Results of the 2005 Health Protection Agency Intercomparison of Passive Radon Detectors / C. B. Howarth // Health Protection Agency. – Chilton. 2006. – Report HPA-RPD-035.
- 108. Приложение 5 к руководству по эксплуатации Комплекса измерительного для мониторинга радона, торона и их дочерних продуктов «Альфарад плюс» Методика поверки (МП 49013-12). – М.: ООО НТМ-Защита, 2012.
- 109. МП 54118-13 «Радиометр радона и его дочерних продуктов распада «Рамон-01М». Методика поверки». М.: ГЦИ СИ ОАО «СНИИП», 2013.