На правах рукописи

## Бастриков Владислав Валерьевич

# Метод ретроспективного определения объемной активности радона в помещении

Специальность 01.04.01

"Приборы и методы экспериментальной физики"

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

> Научный руководитель – доктор физико-математических наук профессор А.В. Кружалов

> > Научный консультант – доктор технических наук с.н.с. М.В. Жуковский

Екатеринбург – 2004

## ОГЛАВЛЕНИЕ

Вве	едени	ıe	. 4
1.	Me	годологические подходы к ретроспективной дозиметрии радона	. 8
	1.1.	Основные свойства радона и физические величины	. 8
	1.2.	Неопределенности в оценках риска от воздействия радона	11
	1.3.	Поверхностные ловушки <sup>210</sup> Ро	12
	1.4.	Объемные ловушки <sup>210</sup> Ро	18
	1.5.	Измерение <sup>210</sup> Pb in-vivo	19
	1.6.	Другие методы ретроспективной дозиметрии	20
2.	Mo,	дель поведения продуктов распада радона в воздухе помещений	24
	2.1.	Физические процессы и константы модели	24
	2.2.	Аналитическое представление модели	32
	2.3.	Использование модели при проведении ретроспективных оценок	36
	2.4.	Моделирование процессов имплантации продуктов распада радона	
		в стекло	39
3.	Мн	огослойный детектор поверхностной активности имплантированного	В
сте	кло <sup>2</sup>	<sup>10</sup> Po	49
	3.1.	Материалы и методы	50
	3.2.	Отклик детектора на воздействие излучения поверхностно-	
		распределенного <sup>210</sup> Ро	54
	3.3.	Отклик детектора на воздействие излучения объемно-распределенны	IX
		радионуклидов	57
	3.4.	Совместная оценка поверхностной и удельной активности стекла	62
	3.5.	Лабораторные испытания детектора	63
	3.6.	Сличение детекторов с ирландскими ретроспективными	
		детекторами	71

4.	Средство измерения доли свободных продуктов распада радона			
B BC	оздухе			
	4.1. Материалы и методы			
	4.2. Расчет характеристик диффузионной батареи			
	4.3. Результаты полевых измерений			
5.	Анализ неопределенности метода ретроспективной оценки объемно	ой		
активности радона в помещении				
	5.1. Анализ чувствительности модели к вариации параметров			
	5.2. Влияние вариаций объемной активности радона			
	5.3. Вероятностный анализ модели			
	5.4. Неопределенности, обусловленные детектором	105		
	5.5. Оценка суммарной неопределенности	114		
	5.6. Методика проведения ретроспективных исследований объемно	й		
	активности радона в помещениях	116		
Зак	лючение	121		
Биб	блиографический список использованной литературы	121		
При	иложение. Регистрационная карта	133		

#### Введение

Актуальность темы. Радиоактивный благородный газ радон – беспрестанный природный спутник человечества. Осознание того, что дочерние продукты распада (ДПР) радона являются доминирующим дозообразующим фактором облучения населения, привело к инициированию широкомасштабных эпидемиологических исследований. Первые попытки установить связь между экспозицией по радону и риском для здоровья основывались на анализе заболеваемости когорт шахтеров урановых рудников. Правомерность экстраполяции зависимости "доза-эффект" из области высоких уровней радона, воздействию которых подвержены шахтеры, в область малых доз, характерных для населения в целом, является весьма спорной.

В связи с необходимостью получения прямых эпидемиологических данных по облучению продуктами распада радона в жилищах, сравнительно недавно были начаты и продолжаются до сих пор исследования среди групп населения по методологии "случай-контроль". Для радиационно-индуцированного рака легких, обусловленного воздействием радона и его ДПР, характерен длительный латентный период, и важнейшим параметром, определяющим риск для здоровья, является суммарное облучение в период от 5 до 30 лет до возникновения заболевания. Трудность восстановления экспозиции по радону за подобный период обусловлена непостоянством средней объемной активности (ОА) радона в помещении в течение этого времени, возможными переездами индивида, сменой режимов содержания жилищ и другими факторами. Поэтому проведение оценки риска на основе текущих измерений ОА радона в помещениях далеко не всегда является обоснованным.

В последнее время стали появляться методики проведения ретроспективных оценок ОА радона, призванные решить многие из этих проблем, и этому посвящена данная диссертационная работа. Следует отметить, что в России подобные разработки ранее не проводились. **Основной целью** работы является разработка метода ретроспективного определения объемной активности радона в помещении, основанного на измерении активности имплантированных долгоживущих продуктов распада радона в стеклянных объектах жилища многослойными трековыми детекторами на базе трекового материала LR-115.

#### Задачи исследования:

1. Верификация модели поведения радона и его ДПР в помещении, оценка коэффициентов модели и анализ чувствительности к их варьированию, обобщенный анализ неопределенности модели.

2. Разработка многослойного трекового детектора, теоретический расчет и экспериментальное исследование его чувствительности к поверхностной активности имплантированного в стекло <sup>210</sup>Ро и собственной удельной активности стекла, оценка погрешности измерения.

3. Создание средства измерения доли свободных продуктов распада радона в атмосфере, как одного из критических параметров модели, и проведение комплексного обследования жилых и общественных помещений в г. Екатеринбурге и Свердловской области.

4. Анализ неопределенности метода ретроспективного определения ОА радона в целом и способов повышения точности проводимых оценок.

#### Положения, выносимые на защиту:

1. Разработанный многослойный детектор на базе трекового материала LR-115 позволяет проводить совместные измерения поверхностной активности имплантированного в стекло <sup>210</sup>Ро и удельной активности радионуклидов природных рядов.

2. Разработанный алгоритм перехода от измеренной активности <sup>210</sup>Ро в стекле к объемной активности радона в воздухе позволяет определить искомую величину, ранжировать по степени влияния параметры помещения и атмосферы и учесть их варьирование.

3. Снижение погрешности ретроспективной оценки объемной активности радона до 35% достигается инструментальным определением типовых параметров частотного распределения доли свободных продуктов распада радона и учетом характеристик помещения.

#### Научная новизна:

1. Модифицирована модель поведения ДПР радона в помещении, что позволяет учесть различия в процессах оседания и имплантации свободных и присоединенных продуктов распада радона.

2. Впервые в России разработан и испытан измерительный комплекс для ретроспективного определения объемной активности радона, включающий в себя оригинальный многослойный трековый детектор поверхностной и удельной активностей стекла и диффузионную батарею экранного типа для определения доли свободных продуктов распада радона в воздухе.

3. Проведен анализ чувствительности разработанного метода к варьированию отдельных параметров и сделана оценка совокупной погрешности.

4. Получены характерные для помещений Свердловской области параметры логнормального распределения, описывающего частотную закономерность доли свободных ДПР радона в воздухе.

#### Практическая значимость диссертационной работы:

1. Разработанный и испытанный детектор спроектирован специально для ретроспективных эпидемиологических исследований по методологии "случайконтроль" и внедрен в измерительную практику радоновой лаборатории Уральского государственного технического университета – УПИ и радиационной лаборатории Института промышленной экологии УрО РАН, начато эпидемиологическое обследование в г. Лермонтов.

2. Разработанный высокочувствительный детектор позволяет проводить оценку энергетического спектра любых поверхностных α-излучающих загрязнений, детекторы успешно применены для промышленного мониторинга радиационной обстановки на ГУ "Уралмонацит".

3. Методика измерения доли свободных ДПР радона в атмосфере может применяться для определения концентрации аэрозолей в воздухе при любых санитарно-гигиенических обследованиях.

4. Результаты диссертационной работы используются в учебном процессе на лекционных и лабораторных занятиях студентов, обучающихся по специальности 330.300 "Радиационная безопасность человека и окружающей среды".

Апробация работы. Результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на следующих научных конференциях и симпозиумах: четвертый Всероссийский научный молодежный симпозиум "Безопасность биосферы" (Екатеринбург, 2000), десятый Международный экологический симпозиум "Урал атомный, Урал промышленный" (Сунгуль, 2002), седьмой Международный симпозиум "Natural Radiation Environment (NRE-VII)" (Греция, Родос, 2002), первая Всероссийская научная конференция с международным участием "Влияние загрязнения окружающей среды на здоровье человека" (Новосибирск, 2002), седьмой Международный симпозиум "Проблемы геологии и освоения недр" (Томск, 2003), вторая Международная научная конференция "SCORPh-2003" (Киргизия, Каракол, 2003), двенадцатая Международная конференция "Новые информационные технологии в медицине, биологии, фармакологии и экологии" (Украина, Гурзуф, 2004), одиннадцатый Международный конгресс Международной ассоциации по радиационной защите "IRPA-11" (Испания, Мадрид, 2004).

В 2001 году работа отмечена премией Министерства природных ресурсов Свердловской области за успехи, достигнутые в решении актуальных экологических проблем Свердловской области, в 2003 году – премией Уральского НОЦ "Перспективные материалы" за лучшую научную работу молодых ученых и аспирантов, в 2004 году – премией губернатора Свердловской области за лучшую работу в области экологии.

**Публикации.** По материалам диссертационной работы опубликовано 11 научных работ, в том числе 2 статьи в научных журналах, 4 статьи в трудах международных конференций, 5 тезисов докладов на российских и международных конференциях.

## Методологические подходы к ретроспективной дозиметрии радона

#### 1.1. Основные свойства радона и физические величины

В начале XVI века в Рудных горах центральной Европы среди шахтеров металлических рудников была зафиксирована высокая смертность от респираторных заболеваний, но только спустя четыре века болезнь была классифицирована как рак легких. Лишь в 20-е годы XX века в шахтах были обнаружены высокие уровни радона, и радон был впервые выдвинут в список вероятных канцерогенов. Только спустя еще полвека это было статистически доказано. Впоследствии было обнаружено, что радон, благодаря своим инертным свойствам, способен поступать и накапливаться в зданиях. Причем эффективная доза, формируемая за счет воздействия его дочерних продуктов распада, изменяется в широком диапазоне и в отдельных случаях может превышать предел дозы, установленный для лиц, профессионально работающих с излучением. По данным Научного комитета по действию атомной радиации при ООН среднемировая годовая эффективная доза, обусловленная радоном, составляет 1,2 мЗв [74]. В среднем от 10 до 14% смертей от рака легких связывается с воздействием радона, что делает его второй основной причиной этого заболевания после курения [42].

Радон образуется в природе как продукт радиоактивного распада в радиоактивных цепочках урана и тория (см. табл. 1.1, 1.2). Основным источником поступления радона в помещения является почва под зданием, менее существенные источники – строительные материалы, использованные при постройке здания, водоснабжение и природный газ.

Сам радон не представляет опасности для человека, так как, являясь инертным газом, не вступает в активное взаимодействие с тканями организма. Радиационное воздействие оказывают его короткоживущие радиоактивные продукты распада, ингаляционно поступающие в респираторный тракт.

8

Поскольку доза в легочной ткани формируется, главным образом, за счет  $\alpha$ -излучающих радионуклидов, на практике для описания интегральной объемной активности ДПР радона в воздухе используется понятие *скрытой энергии*. Скрытая энергия ( $C_p$ ) – это суммарная энергия  $\alpha$ -излучения, которая выделяется при распаде всех короткоживущих ДПР радона в единице объема воздуха. Для <sup>222</sup>Rn цепочка короткоживущих радионуклидов ограничивается четырьмя ДПР радона: <sup>218</sup>Po – <sup>214</sup>Po. Вследствие крайне малого периода полураспада <sup>214</sup>Po, этот радионуклид всегда находится в равновесии с <sup>214</sup>Bi, и их обычно рассматривают как один элемент, испускающий при распаде  $\alpha$ - и  $\beta$ -частицу.

Таблица 1.1.

Радионуклид	Период полураспада	Тип распада	Энергия частиц, МэВ
<sup>238</sup> U	4,5·10 <sup>9</sup> лет	α	4,147 (23,0)**
			4,196 (77,0)
<sup>234</sup> Th	24,1 сут	β	
<sup>234</sup> Pa <sup>m</sup>	1,17 мин	β	
<sup>234</sup> U	2,4·10 <sup>5</sup> лет	α	4,7237 (27,4)
			4,7758 (72,4)
<sup>230</sup> Th	7,7·10 <sup>4</sup> лет	α	4,621 (23,4)
			4,6875 (76,3)
<sup>226</sup> Ra	1602 лет	α	4,6019 (5,55)
			4,7845 (94,55)
<sup>222</sup> Rn (0)*	3,82 сут	α	5,4897
<sup>218</sup> Po (1)	3,05 мин	α	6,0025
<sup>214</sup> Pb (2)	26,8 мин	β	
<sup>214</sup> Bi (3)	19,9 мин	β	
<sup>214</sup> Po (3')	$1,673 \cdot 10^{-4} \text{ c}$	α	7,6871
<sup>210</sup> Pb (4)	22,26 года	β	
<sup>210</sup> Bi (5)	5,01 сут	β	
<sup>210</sup> Po (6)	138,38 сут	α	5,3045
<sup>206</sup> Pb (7)	стабильный		

Радиационные свойства членов природной цепочки распада <sup>238</sup>U

\* Индекс, присвоенный радионуклиду цепочки распада радона \*\* В скобках – выход излучения, % Однозначную взаимосвязь со скрытой энергией имеет другая физическая величина, более часто используемая в отечественной практике – эквивалентная равновесная объемная активность (ЭРОА) радона. На практике радон никогда не находится в равновесии с дочерними продуктами распада, и ЭРОА радона ( $C_{eq}$ ) определяется как объемная активность радона, находящегося в полном равновесии со своими ДПР и имеющего такую же величину скрытой энергии, как и данная неравновесная смесь. ЭРОА <sup>222</sup>Rn связана с объемными активностями короткоживущих ДПР ( $C_1 \div C_3$ ) следующим соотношением:

$$C_{eq} = 0,1046 \cdot C_1 + 0,5161 \cdot C_2 + 0,3793 \cdot C_3.$$
(1.1)

Коэффициент равновесия F определяется как отношение эквивалентной равновесной объемной активности радона в воздухе к реальной объемной активности радона ( $F = C_{eq}/C_0$ ). На практике всегда F < 1.

Таблица 1.2.

Радионуклид	Период полураспада	Тип распада	Энергия частиц, МэВ
<sup>232</sup> Th	1,41·10 <sup>10</sup> лет	α	3,953 (23,0)
			4,01 (77,0)
<sup>228</sup> Ra	5,75 лет	β	
<sup>228</sup> Ac	6,15 ч	β	
<sup>228</sup> Th	1,910 лет	α	5,3405 (26,7)
			5,4233 (72,7)
$^{224}$ Ra	3,64 сут	α	5,449 (0,49)
			5,6856 (95,1)
<sup>220</sup> Rn	55,6 c	α	6,2883
<sup>216</sup> Po	0,146 c	α	6,7785
<sup>212</sup> Pb	10,64 ч	β	
<sup>212</sup> Bi	60,55 мин	α (35,93)	6,0901 (0,96)
			6,0508 (25,22)
<sup>212</sup> Po	$2.98 \cdot 10^{-7} c$	α	8,7849
<sup>208</sup> Tl	3,053 мин	β	
<sup>208</sup> Pb	стабильный		

Радиационные свойства членов природной цепочки распада<sup>232</sup>Th

Интеграл по времени от ЭРОА радона (или от скрытой энергии) называется экспозицией:

$$\mathbf{P} = \int_{0}^{T} \mathbf{C}_{eq}(t) dt = \overline{\mathbf{C}_{eq}} \cdot \mathbf{T}, \qquad (1.2)$$

где  $\overline{C_{eq}}$  – среднее значение ЭРОА радона за время воздействия Т.

#### 1.2. Неопределенности в оценках риска от воздействия радона

В настоящее время для оценки риска возникновения раковых заболеваний легких используются три различных подхода. Первый основан на легочной дозиметрии и заключается в оценке поглощенной дозы в легочной ткани за счет осевших на ее стенки α-активных ДПР радона с использованием дозиметрических моделей поведения радионуклидов в легких. Второй подход – эпидемиологический. Было проведено исследование среди шахтеров урановых рудников, и в результате сопоставления смертности от рака легких среди этой когорты со смертностью лиц, подвергшихся общему внешнему облучению (которыми, в первую очередь, являлись жертвы атомных бомбардировок в Хиросиме и Нагасаки), исходя из равенства эффектов, была определена связь между экспозицией радона и эффективной дозой. Этот подход называется условным дозовым переходом и в настоящее время рекомендован Международной комиссией по радиологической защите [14]. Правомерность такого подхода достаточно спорна, поскольку шахтеры работают в условиях более высоких уровней радона, иных режимов пребывания, скоростей дыхания и атмосферных условиях. Поэтому возникает необходимость получения прямых данных по облучению ДПР радона в жилищах, и третий подход – эпидемиология по принципу "случайконтроль" среди населения – заключается в определении доз облучения от радона в когорте лиц с идентифицированными случаями рака легких и сопоставлении их с дозами облучения в контрольной группе, совпадающей по своим параметрам с основной.

Мерой поступления радона и его ДПР в организм человека является экспозиция. Риск возникновения рака легких за счет этих радионуклидов обусловлен их длительным воздействием в течение нескольких десятилетий. Поэтому любые косвенные оценки долгосрочной экспозиции, которой подвергалось население в прошлом, основанные на измерении современных уровней радона, изначально подвержены значительным неопределенностям [5].

Общеизвестно, что уровень радона в помещении подвержен значительным вариациям – как суточным, так и сезонным [68]. Даже достоверно оцененное среднегодовое значение может отличаться от прошлого уровня вследствие старения или модернизации здания, отличий в условиях содержания и режимах проветривания настоящих и прежних домовладельцев. Кроме того, человек может неоднократно сменить место жительства за интересующий период, и проведение измерений в каждом жилище может оказаться невозможным.

Не так давно для проведения прямых ретроспективных оценок риска было предложено измерять активность долгоживущих продуктов распада радона, которые, как оказалось, могут накапливаться в различных объектах, постоянно находящихся в помещениях. Период полураспада долгоживущего <sup>210</sup>Pb составляет 22 года, поэтому время накопления этого нуклида и последующей радиоактивной цепочки соизмеримо со временем реализации радиационно-индуцированного рака легких.

В настоящее время рассматриваются, главным образом, три потенциально применимых методики – (1) измерение <sup>210</sup>Po на поверхности стеклянных объектов или (2) в объеме пористых материалов, и (3) измерение <sup>210</sup>Pb in-vivo в костной ткани человека [59]. Кроме того, исследуется возможность применить в качестве объектов персональной дозиметрии радона линзы очков [41] и лазерные компакт-диски [72].

## 1.3. Поверхностные ловушки <sup>210</sup>Ро

Уже через несколько лет после открытия радия было замечено, что изотопы эманации радия (названные позднее радоном) могут формировать устойчивые радиоактивные отложения на некоторых поверхностях, таких как стекло. Физика процесса заключается в том, что при α-распаде осевших на поверхность короткоживущих ДПР радона ядро отдачи получает достаточную энергию для самоимплантации внутрь нее при соответствующем направлении импульса отдачи. В конце 80-х годов этому природному явлению было найдено эффектное применение. В работе [56] была исследована зависимость поверхностной активности каменных стен пещеры и окна подвального помещения от объемной активности воздуха по радону. При этом было отмечено, что измерение поверхностной  $\alpha$ -активности материалов, в которых пробег  $\alpha$ -частиц превышает глубину диффузии атомов <sup>210</sup>Pb, может служить оценкой средних уровней радона в окружающей атмосфере за длительные периоды.

В 1988 году С. Samuelsson [78] предложил использовать стеклянную поверхность объектов в помещениях в качестве ретроспективного монитора экспозиции по радону с  $\alpha$ -излучающим <sup>210</sup>Ро в качестве изотопного индикатора. С помощью импульсной ионизационной камеры был проведен  $\alpha$ -спектрометрический анализ различных стекол, находящихся в жилых помещениях. На рис. 1.1 представлены типичные спектры  $\alpha$ -излучения на поверхности стекла, обращенной в комнату (рис. 1.1, а), и на обратной поверхности стекла, изолированной от атмосферы помещения (рис. 1.1, б). Энергетические спектры стекол со стороны, имеющей контакт с внешней атмосферой, имели четко выраженный пик, соответствующий энергии излучения <sup>210</sup>Ро (5,3 МэВ).



Рис. 1.1. Спектры α-излучения стекла с портретной рамки [78](а) – сторона, обращенная в комнату; (б) – сторона, обращенная к фотографии

Острая форма пика говорит об отсутствии поглощения α-излучения в стекле, это означает, что атомы <sup>210</sup>Ро сосредоточены в приповерхностном слое. Отсутствие пика на обратной стороне стекла, изолированной от атмосферы помещения, свидетельствует о том, что первичный источник находится вне самого стекла.

Выбор стеклянных объектов (главным образом это зеркала, стекла мебели, рамки фотографий и картин) в качестве естественного монитора радона не случаен. Такие предметы являются обычными для любого жилища. Для них, как правило, хорошо известны возраст и история перемещений, и обычно они сопровождают человека при переездах. Со стеклом обращаются с особой осторожностью, поверхность поддерживается чистой и сохранной от повреждений, царапин и прочего. Ровная и гладкая поверхность стекла позволяет с хорошей достоверностью моделировать приграничные процессы и с высокой точностью измерять удельную и поверхностную активность. Все это делает стекло прекрасным материалом для интегрального измерения прошлых уровней содержания дочерних продуктов распада радона в воздухе помещений.

Хотя α-спектрометрический анализ обладает высокой точностью и позволяет подробно изучать весь спектр излучения стекол, включая фон [50], в широкомасштабных исследованиях его, как правило, трудно применить. Более того, для снятия спектра в ионизационной камере необходимо вырезать отдельный участок стекла, что не всегда может оказаться возможным.

В традиционной практике радоновых обследований для проведения интегрирующих измерений ОА радона широко используются твердотельные ядерные трековые детекторы тяжелых заряженных частиц. Являясь простым и надежным средством измерения, трековые материалы нашли применение и в ретроспективной дозиметрии радона, как детекторы внешнего приповерхностного α-излучения стекол. Основным требованием, предъявляемым в данном случае к детектору, является дискриминация фонового α-излучения стекла, формируемого природными α-излучающими радионуклидами – членами природных радиоактивных цепочек урана и тория. Пространственно-

14

энергетический спектр фона является сплошным и неравномерным во всем диапазоне вплоть до максимальной энергии 8,8 МэВ. Различными научными группами в мире было разработано несколько разных детекторов, отличающихся типом трекового материала и методами анализа.

Группой ученых из Швеции, Ирландии, Дании и Бельгии в рамках совместного проекта RARE (Retrospective Assessment of Radon Exposure – ретроспективная оценка экспозиции по радону) было разработано и испытано несколько методик [36]. Наиболее простой метод заключается в установке на поверхности стекла трекового детектора CR-39, имеющего широкий диапазон регистрируемых энергий α-частиц (от 0,1 до 60 МэВ [27]). Для измерения собственного фона стекла дополнительный детектор устанавливается с его обратной стороны. Метод применим только в случае, если обратная сторона не подвержена влиянию атмосферы помещения и, что не менее важно, доступна для проведения измерений. Очевидно, что это существенно сужает перечень объектов, пригодных для ретроспективной оценки.

Во втором методе для оценки фонового излучения на "активной" стороне стекла устанавливается второй детектор CR-39, помещаемый на слой лавсанового поглотителя, покрытого тонкой алюминиевой фольгой (общая толщина  $1,8 \text{ мг/см}^2$ ). При этом приповерхностное излучение проходит через поглотитель, а фоновое излучение, поглощаясь в объеме стекла и слое поглотителя, регистрируется в гораздо меньшей степени. Оба детектора устанавливаются рядом друг с другом на одной и той же поверхности стекла. Оценки показали, что слой поглотителя снижает количество треков, формируемых за счет излучения от <sup>210</sup>Po, на 20%, а количество фоновых треков – на 50%. По соотношению треков, зарегистрированных двумя детекторами, оценивается активность <sup>210</sup>Po.

В третьем методе в паре с детектором CR-39 ставится детектор другого типа – LR-115, имеющий узкий энергетический диапазон (1,2 ÷ 4,8 MэB) [35]. Если детектор CR-39 регистрирует все излучение, то отклик детектора LR-115 целиком определяется фоном стекла. Поверхностная активность <sup>210</sup>Po (Бк/м<sup>2</sup>) рассчитывается по эмпирической формуле, полученной из результатов измерения стеклянных образцов ретроспективным детектором и откалиброванной импульсной ионизационной камерой:

$$A_{\rm S}^{\rm Po} = \frac{N_{\rm CR} - N_{\rm LR} \cdot R}{\rm S}, \qquad (1.3)$$

где N<sub>CR</sub> и N<sub>LR</sub> – плотность треков, полученных за час облучения детекторов с вычетом фоновых значений (трек/см<sup>2</sup>·ч), R – отношение откликов разных материалов к фоновому воздействию (1,97 ± 0,02), S – чувствительность материала CR-39 к поверхностному <sup>210</sup>Po (0,118 ± 0,1 трек/см<sup>2</sup> при единичной активности 1 Бк/м<sup>2</sup>).

Так называемый CR-LR разностный детектор нашел самое широкое применение и кроме работ в рамках проекта RARE был успешно использован также в эпидемиологических исследованиях в Югославии [93], Норвегии [25], Италии [26].

В бельгийском университете был разработан детектор на основе традиционных в их практике поликарбонатных пленок Макрофола с диапазоном регистрируемых энергий от 0,3 до 2,0 МэВ [60, 28]. Для снижения энергии излучения <sup>210</sup>Ро между детектирующим материалом и стеклянной пластиной устанавливается лавсановый поглотитель толщиной 23 мкм. Детекторы также калибровались с использованием импульсной ионизационной камеры в качестве образцового измерительного прибора. Калибровочный коэффициент составил 47,8 ± 4,4 Бк·м<sup>-2</sup>/(трек·см<sup>-2</sup>·ч<sup>-1</sup>). В указанных работах не описана методика исключения треков, формируемых фоновыми  $\alpha$ -излучателями стекла, и, возможно, авторами это не было предусмотрено.

Размер и форма трека, формируемого в трековом материале, зависит от угла падения α-частицы и ее энергии. Спектроскопический анализ облученных материалов позволяет выделить треки, соответствующие приповерхностному полонию, и на этом принципе основан метод измерения, разработанный в Итальянском региональном центре по радиоактивности [85, 86]. В качестве регистрирующего материала также используется трековый детектор CR-39. Эффективность регистрации, полученная в результате калибровки в вакуумной камере

с поверхностно-барьерным кремниевым детектором, равна  $0,339 \pm 0,039$ трек·см<sup>-2</sup>·ч<sup>-1</sup> на Бк·м<sup>-2</sup>.

В будапештском исследовательском институте по атомной энергии был разработан радиохимический метод анализа содержания радионуклидов в стекле, основанный на стравливании приповерхностного слоя стекла (0,2 мкм) и последующем выделении и радиометрии β-излучающего <sup>210</sup>Bi [66]. Подобный метод существенно более трудоемок и дорог, и, кроме того, является разрушающим. Тем не менее, сама идея стравливания слоев стекла интересна с исследовательской стороны. Так, в работе [76] поэтапным стравливанием и измерением остаточной радиоактивности в стекле (импульсной ионизационной камерой) были экспериментально получены профили распределения атомов <sup>210</sup>Po по глубине стекла.

В США были разработаны два ретроспективных детектора для двух крупных эпидемиологических исследований по методу "случай-контроль".

В эпидемиологическом исследовании в штате Айова [38] применялся детекторный модуль, состоящий из трех чипов трекового полимерного материала LANTRAK<sup>®</sup>, помещенных на поверхности или внутри пластмассового контейнера [82]. Чип внутри контейнера служит для интегрирующего измерения текущих уровней радона. Чип на внешней стенке, устанавливаемой в контакте со стеклом, измеряет имплантированную активность и имеет дополнительную область, покрытую тонким фильтром, снижающим энергию  $\alpha$ -частиц на 6 МэВ, для оценки содержания фоновых изотопов полония <sup>212</sup>Ро и <sup>214</sup>Ро. Третий чип на внешней стенке, обращенной к комнате, оценивает оседание продуктов распада радона на стены и также имеет области, закрытые фильтром, снижающим энергию на 6 и 7 МэВ для регистрации либо совместно <sup>212</sup>Ро и <sup>214</sup>Ро, либо отдельно <sup>212</sup>Ро. Осаждение изотопов <sup>218</sup>Ро оценивается по третьей, незакрытой, области чипа путем вычитания отклика на совместное воздействие <sup>212</sup>Ро и <sup>214</sup>Ро.

В эпидемиологическом исследовании в штате Миссури использовались детекторы на базе материала CR-39 [19], аналогичные описанным выше. Для исключения треков, формируемых природными α-излучателями, проводился анализ структуры и формы треков и сравнение с детектором, облученном на стандартном образце, содержащем <sup>210</sup>Ро.

Как в Европе [25, 94], так и в США [37] была осуществлена интеркалибровка разных ретроспективных детекторов на базе лабораторных и полевых измерений, которая показала хорошую согласованность результатов измерений разными типами детекторов. В работе [81] ретроспективные оценки двумя американскими детекторами были проведены в домах, в которых в течение последних двух десятилетий проводились постоянные измерения уровней радона, и коэффициент корреляции с поверхностной активностью стекол составил более 0,8.

Во многих работах отмечается, что метод поверхностных ловушек можно использовать не только для оценки прошлых уровней радона, но и для измерения предстоящих. Например, в качестве индивидуального дозиметра может выступать, как предложил С. Samuelsson [78], небольшое зеркало, используемое индивидом в течение жизни. Измерение поверхностной активности зеркала в каждый последующий год позволит отследить процесс накопления дозы облучения за счет радона и его ДПР. В работе [39] метод поверхностных ловушек был напрямую испытан в качестве средства измерения ОА радона в атмосфере. Для этого в исследуемых помещениях были установлены пустые новые портретные рамки, покрытые стеклом. Каждая рамка сопровождалась также обычным интегрирующим детектором радона на основе материала LR-115. Рамки экспонировались в течение 18 месяцев, после чего выдерживались 15 месяцев для накопления <sup>210</sup>Ро. Результаты поверхностных измерений стекол показали строгую взаимосвязь с измерениями радона, а также с моделью накопления продуктов распада радона в стекле.

## 1.4. Объемные ловушки <sup>210</sup>Ро

Объемными ловушками называют пористые и губчатые материалы, такие как, например, матрасы или мягкая мебель, которые всегда можно найти в жилищах. Газообразный радон может свободно диффундировать вовнутрь и рас-

18

пасться в порах. Образуемые продукты распада оседают на поверхностях пор, и содержание накопленного <sup>210</sup>Ро может быть измерено радиохимическими методами [65].

Принципиальным преимуществом метода является то, что, в отличие от поверхностных ловушек, содержание накопленного полония не зависит от концентрации аэрозолей в воздухе и других параметров помещения, влияющих на процессы оседания ДПР радона на поверхностях. Измеряемая величина напрямую зависит от объемной активности газообразного радона, а не его продуктов распада.

Метод был успешно опробован и отработан в Норвегии, Германии и Югославии [67], и обычной практикой является комбинированное использование методов поверхностных и объемных ловушек. Тем не менее, главным недостатков метода является полное разрушение исходного образца, и поэтому в условиях России, где замена обстановки комнаты значительной частью населения производится крайне редко, а старые вещи обычно не выбрасываются, а переходят на другой уровень использования, метод объемных ловушек тяжело применить в широкомасштабных исследованиях.

## 1.5. Измерение <sup>210</sup>Pb in-vivo

Оценку длительного воздействия радона принципиально можно провести, измеряя <sup>210</sup>Pb in-vivo в человеческом скелете в низкофоновом счетчике излучения человека. Основная проблема заключается в том, что лишь единицы процентов скелетного <sup>210</sup>Pb обусловлены ингаляционным поступлением и последующим распадом взвешенных в воздухе короткоживущих ДПР радона. Основная часть (около 86%) формируется за счет перорального поступления и примерно 12% – за счет непосредственного вдыхания атмосферного <sup>210</sup>Pb. Еще около 75% может добавляться за счет курения [18].

Метод измерения реализуем только для людей, подвергавшихся высоким уровням воздействия радона в течение длительного времени – например, шах-

19

теров урановых рудников или людей, проживающих в геологических зонах с высокой радоноопасностью [52].

#### 1.6. Другие методы ретроспективной дозиметрии

Одним из широко используемых материалов линз очков является аллилдигликоль карбонат – пластмасса, чувствительная к  $\alpha$ -излучения, которая является основой детектирующего материала CR-39. Для лиц, постоянно носящих очки, число накопленных треков от  $\alpha$ -частиц, испускаемых радоном и его ДПР, даст оценку экспозиции по радону за время использования очков [41]. Недостатками метода является то, что он не может быть массовым, во-первых, потому что многие люди не носят очков (либо носят в течение ограниченного времени), а во-вторых, каждый набор линз требует индивидуальной калибровки, что ведет к увеличению времени и стоимости исследований. Кроме того, среднее время ношения одних очков составляет от 2 до 5 лет, что не позволит оценить более раннюю экспозицию, и потом метод является разрушающим и применим только в том случае, когда индивид готов отказаться от очков.

Упоминаемые ранее поликарбонатные пленки Макрофола и другие эквиваленты наряду со свойствами образования треков при воздействии  $\alpha$ излучения обладают также способностью поглощать радон. Эти поликарбонаты часто используются в качестве основного конструктивного материала компактдисков, делая их ретроспективным детектором радона [72, 73]. После химического или механического удаления слоя, толщина которого превышает максимальный пробег  $\alpha$ -излучения ДПР радона, количество треков в материале становится пропорциональным поглощенному радону <sup>222</sup>Rn. При этом исключается необходимость анализировать процессы осаждения радона и его ДПР на материале. Длительность экспозиции компакт-диска может достигать двадцати лет и более. На настоящий момент метод испытан только в лабораторных условиях, ретроспективных оценок на реальных объектах не проводилось. Из рассмотренных выше методологических подходов к ретроспективной дозиметрии радона перспективным для использования в широкомасштабных исследованиях является только метод поверхностных ловушек [4]. Проведенный анализ показал, что имеющиеся варианты реализации метода имеют, как правило, ряд недостатков:

1. Наличие нескольких типов чувствительного материала [88, 36, 35], каждый из которых обладает собственной систематической и случайной погрешностью, ведет к увеличению общей неопределенности конечного результата.

2. Использование в паре с детектором дополнительного детектора с поглотителем [60, 36, 82] не позволяет корректно оценить влияние разного для каждого исследуемого образца спектра фонового излучения стекла.

3. Калибровка детекторов ведется методом сличения показаний с образцовым средством измерения (например, импульсной ионизационной камерой) по некоторым образцам, принятым за стандартные, которые в реальности воспроизводят лишь некоторые сочетания измеряемого и фонового сигналов, при этом отсутствует анализ отклика детектора на их произвольное соотношение (в том числе, на разный спектр фонового излучения).

4. Отсутствует анализ чувствительности модели к варьированию параметров (за исключением [88]) и анализ общей неопределенности метода.

5. Отсутствует оценка минимальных измеряемых активностей и рабочих диапазонов детекторов.

Кроме того, подобные детекторы не разрабатывались ранее в России, и не было проведено ни одного эпидемиологического исследования с ретроспективным восстановлением доз облучения продуктами распада радона.

В связи с этим в настоящей работе была поставлена следующая основная цель: разработка ретроспективного детектора на основе методологии "поверхностных ловушек" на базе одного регистрирующего материала с возможностью оценки собственного фона исследуемых объектов и его качественного анализа. В качестве материала детектора выбран диэлектрический трековый материал LR-115, широко используемый в радоновых исследованиях в России, и, более того, внедренный в государственную методику выполнения интегральных измерений ОА радона трековым методом [17].

Предложена оригинальная конструкция ретроспективного детектора, заключающаяся в многослойной установке трекового материала с узкой энергетической чувствительностью. Слои такого детектора одновременно играют роль регистрирующего материала и роль поглотителя, снижающего энергию входного излучения. Достоинством метода является то, что слои детектора изначально одинаковы по фону, а после экспонирования обрабатываются в едином технологическом цикле. В работе показано, что излучение от <sup>210</sup>Ро регистрируется только во втором слое, и анализ отклика лишь первых двух слоев позволяет оценить и активность <sup>210</sup>Ро, и суммарную удельную активность фоновых радионуклидов. Третий слой дает возможность раздельной оценки содержания уранового и ториевого семейств, а включение в рассмотрение четвертого слоя делает этот метод самосогласованным.

Сама идея экспонирования нескольких детекторов в составе единого блока не нова, и используется, например, для идентификации тяжелых заряженных частиц в радиационно-физических и радиобиологических экспериментах [16].

Многослойный детектор может быть также использован для оценки  $\alpha$ -активных поверхностных загрязнений. Высокая чувствительность детектора по  $\alpha$ -излучению (до 0,02 мБк/см<sup>2</sup>) и прозрачность по отношению к  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучению, возможность задания детектору произвольной площади и формы, а также использования его на изогнутых поверхностях, сохранение информации по поверхностному распределению  $\alpha$ -излучающих радионуклидов и возможность определения радионуклидов в смеси существенно расширяет сферы практической применимости детектора.

Составной частью метода ретроспективного определения объемной активности радона в помещении является модель поведения радона и его ДПР, позволяющая установить связь между измеряемой поверхностной активностью стекла по <sup>210</sup>Ро и средней объемной активностью радона в помещении, и следующая глава целиком ей посвящена.

Кроме того, отдельной главой в диссертационной работе рассматривается второстепенная, но не менее важная, проблема – измерение доли свободных продуктов распада радона в атмосфере. Подобные исследования, также как и исследования в области ретроспективной дозиметрии радона, ранее не проводились в России. В данной работе было сконструировано средство измерения доли свободных атомов (диффузионная батарея экранного типа) и проведен комплекс исследований по Екатеринбургу и Свердловской области, результаты которого используются в работе для оценки одного из ключевых параметров модели поведения ДПР радона в помещении – концентрации аэрозольных частиц.

В заключительной части работы проведен комплексный анализ неопределенности метода и сделаны рекомендации по проведению эпидемиологических исследований с привлечением ретроспективного анализа воздействия радона.

## 2. Модель поведения продуктов распада радона в воздухе помещений

Численное моделирование является мощным инструментом для изучения закономерностей поведения радона и его ДПР – крайне динамичной системы, никогда не находящейся в равновесном состоянии. Множество различных процессов влияет на эту систему, и разными авторами были предприняты попытки моделирования ее поведения. В 1972 году W. Jacobi предложил модель, которая стала основой большинства используемых сегодня моделей [48].

В модели рассматривается относительное распределение нуклидов цепочки распада по всем выделяемым состояниям и их взаимодействие с учетом всевозможных процессов. Изначально анализировалось поведение лишь короткоживущих ДПР радона, но логическое продолжение модели на долгоживущую часть цепочки распада радона позволяет применить ее в анализе поставленной задачи. В следующем подразделе поэтапно описываются процессы и параметры, характеризующие поведение системы, дается обзор численных оценок соответствующих констант, взятых из различных источников.

#### 2.1. Физические процессы и константы модели

#### Образование кластеров

Инертный газ радон всегда находится в свободном состоянии. При  $\alpha$ распаде образуется атом <sup>218</sup>Ро с кинетической энергией отдачи ~100 кэВ и, как правило, положительно заряженный. Длина пробега атома в воздухе составляет ~50 мкм, и за несколько наносекунд он теряет свою энергию при столкновениях с молекулами газа и может нейтрализоваться. Кроме того, он адсорбирует молекулы воздушного пара, либо объединяется с газовыми примесями, и в результате формируются мелкие частицы размером от 0,5 до 5 нм, называемые *кластерами* или *неприсоединенными* продуктами распада [69]. Также это состояние условно называется *свободным*. При последующих актах распада образуются другие короткоживущие свободные ДПР.

#### Присоединение к аэрозольным частицам

Продукты распада радона, мигрируя в воздухе, могут сталкиваться с атмосферными аэрозольными частицами и прилипать к ним, образуя радиоактивные аэрозоли (*присоединенные* продукты распада). Спектр размеров аэрозольных частиц может быть различным и, как правило, достаточно широк. Исследования показывают, что распределение аэрозольных частиц по размеру в различных условиях хорошо описывается логнормальным распределением [44]:

$$\frac{1}{N}\frac{\partial N}{\partial \ln d} = \frac{1}{\ln \sigma_g \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln d - \ln \mu}{\ln \sigma_g}\right)^2\right),$$
(2.1)

где μ – геометрический медианный диаметр, соответствующий максимуму кривой, σ<sub>g</sub> – геометрическое стандартное отклонение, характеризующее ширину кривой.

Соответственно, распределение активности присоединенных продуктов распада радона по размеру частиц также аппроксимируется логнормальным распределением:

$$\frac{1}{C_{p}}\frac{\partial C_{p}}{\partial \ln d} = \frac{1}{\ln \sigma_{g} \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln d - \ln AMD}{\ln \sigma_{g}}\right)^{2}\right),$$
(2.2)

где AMD – активностный медианный диаметр, C<sub>p</sub> – скрытая энергия.

В общем, распределение аэрозольных частиц может быть описано суммой трех логнормальных распределений, называемых *модами*. На рис. 2.1 представлены типичные распределения активности продуктов распада радона по размеру частиц [71]. По сравнению с открытой атмосферой, мода аккумуляции в помещениях сдвигается в область меньших размеров, а крупнозернистая мода исчезает вследствие осаждения этих частиц на поверхностях помещения. В местах с наличием одного доминирующего источника аэрозолей, например, при работе газовой плиты, а в наибольшей степени – при курении в помещении, либо при функционировании двигателя внутреннего сгорания в производственном помещении, спектр принимает вид одного логнормального распределения.

Динамика процесса присоединения ДПР радона к аэрозолям в большой степени зависит от концентрации аэрозолей в атмосфере (Z) и их распределения по размерам [83]. Константа присоединения, выражающая скорость адсорбции продуктов распада радона к аэрозолю, равна  $\lambda_{\chi}(d) = \beta(d) \cdot Z(d)$ , где  $\beta$  – вероятность присоединения к частице размером d. Среднее значение  $\beta$ , полученное экспериментально, составляет 4,7·10<sup>-3</sup> см<sup>3</sup>/ч, а концентрация частиц в воздухе помещений (без дополнительных источников аэрозолей), как правило, изменяется от 2·10<sup>3</sup> до 3·10<sup>4</sup> част/см<sup>3</sup> [70]. Наличие дополнительных источников аэрозолей увеличивает концентрацию частиц, например: сигары – 8·10<sup>4</sup>част/см<sup>3</sup>, приготовление пищи – 2,5·10<sup>5</sup> част/см<sup>3</sup>, свечи – 3,9·10<sup>5</sup> част/см<sup>3</sup> [45].

В работе [13] проводится обзор оценок коэффициента  $\lambda_{\chi}$ , сделанных различными авторами. Для жилых помещений наиболее распространенным диапазоном изменения является 25 ÷ 100 ч<sup>-1</sup>. В помещениях с высоким содержанием сигаретного дыма  $\lambda_{\chi}$  может достигать 700 ч<sup>-1</sup>. При проведении теоретических оценок величина  $\lambda_{\chi}$  является, как правило, наиболее варьируемым параметром.



Рис. 2.1. Распределение активности ДПР радона по размеру частиц [71]

В работе [70] установлена зависимость между долей свободных продуктов распада f<sub>p</sub> (отношение скрытой энергии свободных ДПР к суммарной скрытой энергии) и концентрацией аэрозольных частиц:

$$f_{\rm p} \approx 400 \,/\,{\rm Z}.$$
 (2.3)

Это соотношение получено теоретически и подтверждено результатами многочисленных измерений, проведенных в разнообразных атмосферных условиях. Таким образом, по измерениям доли свободных атомов можно сделать косвенную оценку концентрации аэрозолей. В третьей главе описан метод измерения доли свободных ДПР радона в воздухе, применявшийся в данной работе при полевых исследованиях параллельно с ретроспективными измерениями. Результаты измерения доли свободных ДПР использовались при последующем моделировании.

#### Отделение от аэрозольных частиц

При распаде присоединенных к аэрозолям атомов ядро отдачи, за счет передаваемой ему энергии, может десорбироваться с поверхности аэрозоля. Этот процесс особенно существенен при  $\alpha$ -распаде. Значение вероятности десорбции обычно принимается равным  $p_{\alpha} = 0,83$  [13, 39, 28]. Образуемый атом переходит в свободное состояние и может повторно присоединится к аэрозольной частице. Энергия, передаваемая ядру при  $\beta$ -распаде, невелика (~4 эВ), поэтому вероятность десорбции пренебрежимо мала ( $p_{\beta} = 0,01$ ).

#### Вентиляция

Вентиляция может быть как источником поступления радона в помещение, так и наоборот. Что касается продуктов распада радона, то принято считать, что поступающий воздух не может перенести их в помещение, и вентиляция способствует только уменьшению их активности. Кратность воздухообмена (вентиляции)  $\lambda_v$  показывает, какая часть воздуха в помещении обменивается за счет вентиляции в единицу времени, и значение этой величины лежит в пределах от 0,2 до 3,0 ч<sup>-1</sup> для жилых помещений [13]. Как и коэффициент присоединения к аэрозолям, эта величина подвержена наибольшей вариабельности.

#### Оседание на поверхностях

Как свободные продукты распада радона, так и присоединенные к аэрозолям, оседают на всех доступных им поверхностях в помещении. Свободные атомы, вследствие своего малого размера, обладают большей диффузионной способностью по сравнению с аэрозольной фракцией и с большей вероятностью диффундируют к поверхностям. Они могут переноситься к стенам и поверхностям не только воздушными потоками, но и за счет случайного броуновского движения и притяжения электростатическими силами. Константа оседания на поверхности свободных атомов обычно полагается на два порядка большей, чем константа оседания аэрозолей:  $\lambda_d^a \approx 0.01 \lambda_d^u$  [48].

Константа оседания связана со скоростью оседания соотношением  $\lambda_d = v_d \cdot S/V$ , где S/V – отношение общей площади всех поверхностей в помещении к объему воздуха в нем. Многие исследователи теоретически и экспериментально определяли скорости оседания свободных и присоединенных ДПР радона. Совокупность всех значений, опубликованных в литературе, дает весьма широкий диапазон для данных величин:  $v_d^u = 1 \div 35$  м/ч и  $v_d^a = 0,01 \div 0,1$  м/ч [39, 88]. В большинстве своем это полуэмпирические оценки, косвенно определенные моделированием по результатам измерения других величин. Такой значительный разброс приводит к большой суммарной неопределенности модели, что обусловило необходимость более тщательного исследования величин скоростей оседания.

В последнее время появились результаты прямых экспериментальных измерений скоростей оседания продуктов распада радона в разных атмосферных условиях и для различных поверхностей [55, 79]. Общим выводом работ является существенное отличие скорости оседания (и, соответственно, констант оседания) атомов <sup>218</sup>Ро (как свободных, так и присоединенных) от скоростей оседаниях других короткоживущих ДПР радона. Кроме того, разброс величин, действительно характерных для атмосферы в помещениях, оказался существенно ниже. Так, скорость оседания свободных атомов <sup>218</sup>Ро составила  $v_{d1}^{u} = 1 \div 5$  м/ч и принимает более высокие значения лишь при высокой циркуляции воздуха около поверхности, для присоединенных атомов <sup>218</sup>Po  $v_{d1}^{a} = 0,2 \div 0,7$  м/ч. Диапазоны изменения скоростей оседания атомов <sup>214</sup>Pb и <sup>214</sup>Bi составили:  $v_{d2,3}^{u} = 0,2 \div 0,5$  м/ч и  $v_{d2,3}^{a} = 0,02 \div 0,07$  м/ч.

При высоких уровнях радона наблюдается значительное увеличение констант оседания, что происходит, главным образом, за счет роста доли свободных атомов и, следовательно, уменьшения среднего размера частиц [54].

#### Отделение от поверхностей

В литературе существуют лишь немногочисленные оценки коэффициента слета ядер отдачи с поверхностей при распаде материнского нуклида. В случае отрыва ядра от поверхности, его пробег в воздухе не превышает 0,12 мм, поэтому ядро не покидает приповерхностный слой, и предполагается, что оно достаточно быстро снова оседает на поверхность. Поэтому в данной работе коэффициент десорбции осевших ДПР с поверхностей был принят равным нулю.

#### Отношение площади к объему

Соотношение между взвешенной в воздухе активностью и осевшей на поверхностях напрямую зависит от отношения суммы площадей всех поверхностей в помещении к объему воздухе в нем. Большее отношение S/V соответствует большей поверхностной активности <sup>210</sup>Po. Значение S/V уникально для каждого помещения и зависит от размеров комнаты, формы, мебельной обстановки и даже от используемых материалов.

Простой расчет для стандартной и относительно просторной жилой комнаты, мало заставленной мебелью, дает минимально возможное значение S/V около 2 м<sup>-1</sup>. Установка дополнительной мебели и разнообразных предметов интерьера и уменьшение размеров комнаты увеличивает отношение до 5 м<sup>-1</sup>, а использование шероховатых покрытий и высокая заполненность помещения могут приводить и к бо́льшим значениям. В работе [51] проводилось экспериментальное определение отношения S/V и предложено среднее значение 4,9 м<sup>-1</sup>.

#### Имплантация в стекло

При  $\alpha$ -распаде осевших на стекло короткоживущих изотопов полония <sup>218</sup>Ро и <sup>214</sup>Ро ядра отдачи получают энергию 110 и 140 кэВ, соответственно, могут самоимплантироваться внутрь стекла [32]. После распада <sup>218</sup>Ро имплантированное ядро испытывает два акта  $\beta$ -распада, превращается в <sup>214</sup>Ро и вновь испытывает  $\alpha$ -распад, при котором ядро отдачи изменяет свое положение в стекле. Таким образом, возможными являются две схемы имплантации продуктов распада радона внутрь стекла (см. рис. 2.2).

Для определения коэффициентов имплантации (вероятностей того, что при α-распаде осевших на стекло изотопов полония ядра отдачи имплантируются в стекло) в данной работе было проведено моделирование соответствующих процессов методом Монте-Карло с использованием программы для расчета пробега ионов в веществе SRIM-2003 [92]. Подробное изложение алгоритма моделирование и полученных результатов приведено в разд. 2.4.

Очевидно, что для свободных и присоединенных ДПР радона доля имплантированных частиц будет различной. Поэтому моделирование процессов имплантации было проведено для этих состояний независимо, и в модели они выделяются как отдельные состояния. По результатам моделирования получены следующие коэффициенты [7]:



Рис. 2.2. Варианты имплантации ядер отдачи в стекло (а) – двухстадийный процесс имплантации при распаде атома <sup>218</sup>Ро (б) – одностадийный процесс имплантации при распаде атома <sup>214</sup>Ро

для свободных продуктов распада радона, осевших на стекло:

- коэффициент имплантации ядер при распаде <sup>218</sup>Ро (p<sup>su</sup><sub>in1</sub>) 0,46;
- коэффициент имплантации ядер при распаде <sup>214</sup>Po (p<sup>su</sup><sub>in2</sub>) 0,46;
   для присоединенных продуктов распада радона, осевших на стекло:
- коэффициент имплантации ядер при распаде <sup>218</sup>Ро (p<sup>sa</sup><sub>in1</sub>) 0,23;
- коэффициент имплантации ядер при распаде <sup>214</sup>Ро (p<sup>sa</sup><sub>in2</sub>) 0,23;

Видно, что различие энергии ядер отдачи в двух вариантах имплантации оказалось не принципиальным. Размер аэрозольной частицы, к которой присоединился радионуклид, также не оказывает существенного влияния на вероятность имплантации, и во всем интересующем диапазоне размеров аэрозолей коэффициент практически не изменяется.

В работе [76] проводилось аналогичное моделирование процессов имплантации. Однако были получены только профили внедрения ядер и не были оценены интегральные характеристики (коэффициенты имплантации и обратного вылета ядер). Кроме того, никак не рассматривались процессы имплантации с аэрозольных частиц. Параллельно с теоретическим моделированием в работе [75] были экспериментально исследованы профили внедрения ДПР радона методом поэтапного стравливания слоев стекла. Результирующие распределения показали хорошую согласованность с численным моделированием.

#### Обратный вылет из стекла

После второго  $\alpha$ -распада ядра, имплантированного по схеме на рис. 2а, радионуклид может как изменить свое местоположение в стекле, так и вылететь из него. Оценки коэффициента, показывающего, какая часть ядер покинет стекло, составляют ~ 0,3 [39, 88]. В данной работе в результате моделирования второго акта распада (см. разд. 2.4) был получен коэффициент обратного вылета имплантированных ядер  $p_{out} = 0,27$ . Для присоединенной фракции полученный коэффициент оказался таким же, что объясняется тем, что профили внедрения свободных и аэрозольных ДПР радона практически не отличаются. Вследствие граничных эффектов предполагается, что вылетевший изотоп остается на поверхности стекла и в дальнейшем рассматривается как осажденный на поверхности.

#### Очистка

Часть адсорбированных на поверхностях продуктов распада радона может удаляться во время периодических уборок в помещении, сухой или влажной очистке стеклянных поверхностей. В работе [57] было экспериментально получено, что при очистке удаляется от 90 до 98% атомов <sup>218</sup>Po, от 50 до 80% атомов <sup>214</sup>Po и до 30% атомов <sup>210</sup>Po (от общей активности – и осажденной и имплантированной). В работе [33] теоретически оцененное значение доли счищаемых долгоживущих продуктов распада с поверхности стекла составило  $p_c = 0,85$ , и обычно именно это значение принимается при расчетах во многих работах. Это значение согласуется и с экспериментами по удалению поверхностной активности, проведенными в данной работе (см. разд. 4.5).

В различных работах часто поднимается вопрос о возможности миграции имплантированных атомов в стекле, воздействии различных эффектов – коррозии, гидратации, выщелачивании и т.д. [40], в том числе и очистки стекол. Тем не менее, все экспериментальные измерения, проведенные на стеклах, подтверждают гипотезу о том, что удаление имплантированных долгоживущих продуктов распада радона происходит только за счет радиоактивного распада [77].

## 2.2. Аналитическое представление модели

Наиболее удобная аналитическая запись модели заключается в составлении уравнений баланса активности для каждого выделяемого состояния. Формализм уравнений аналогичен записи закона радиоактивного распада: –  $dN/dt = \lambda \cdot N = A$  (скорость убывания числа атомов радионуклида пропорциональна постоянной распада и количеству атомов). Аналогично, например, убывание числа свободных атомов за счет присоединения к аэрозолям описывается выражением  $\lambda_{\gamma} \cdot N^{u}$ . Все возможные переходы между состояниями модели и превращения радионуклидов схематически представлены на рис. 2.3 [7]. Сплошные стрелки соответствуют переходам, сопровождающим процессы радиоактивного распада, пунктирные стрелки относятся к процессам оседания на аэрозоли и поверхности, штрихпунктирная линия символизирует то, что часть осевшей активности удаляется со стекла во время очистки.



Рис. 2.3. Модель поведения продуктов распада радона в воздухе помещений

Во всех последующих уравнениях используются следующие обозначения: N – количество атомов радионуклида, нижние индексы определяют нуклид цепочки распада радона (0 – <sup>222</sup>Rn, 1 – <sup>218</sup>Po, 2 – <sup>214</sup>Pb, 3 – <sup>214</sup>Bi (<sup>214</sup>Po), 4 – <sup>210</sup>Pb, 5 – <sup>210</sup>Bi, 6 – <sup>210</sup>Po), верхние индексы указывают на состояние, в котором находится данный нуклид (и – свободный, а – присоединенный к аэрозольной частице, su – свободный, осевший на поверхность, sa – аэрозольный, осевший на поверхность, i – имплантированный),  $\lambda_0...\lambda_6$  – константы радиоактивного распада, остальные обозначения соответствуют процессам, описанным в предыдущем разделе. В правой части уравнений с положительным знаком записываются члены, описывающие образование атомов, с отрицательным – их убыль.

### Радон <sup>222</sup>Rn

$$\frac{\mathrm{dN}_{0}}{\mathrm{dt}} = \lambda_{v} n_{0} \mathrm{V} + \frac{\dot{\mathrm{A}}}{\lambda_{0}} - \left(\lambda_{0} + \lambda_{v}\right) \mathrm{N}_{0}, \qquad (2.4)$$

где  $n_0$  – концентрация атомов радона в наружном воздухе, V – объем воздуха в помещении,  $\dot{A}$  – скорость поступления радона за счет всех механизмов переноса из стен, пола, потолка помещения и т.п. В условиях обсуждаемой проблемы конкретизация путей поступления радона не является принципиальной, и при моделировании число атомов радона в воздухе, как правило, принималось равным некоторому фиксированному значению с последующим нормированием на эту величину.

## Полоний <sup>218</sup>Ро (RaA)

$$\frac{dN_1^u}{dt} = \lambda_0 N_0 - \left(\lambda_1 + \lambda_v + \lambda_\chi + \lambda_{d1}^u\right) N_1^u, \qquad (2.5)$$

$$\frac{dN_1^a}{dt} = \lambda_{\chi} N_1^u - \left(\lambda_1 + \lambda_{\nu} + \lambda_{d1}^a\right) N_1^a, \qquad (2.6)$$

$$\frac{dN_{1}^{su}}{dt} = \lambda_{d1}^{u} N_{1}^{u} - \lambda_{1} N_{1}^{su}, \qquad (2.7)$$

$$\frac{dN_{1}^{sa}}{dt} = \lambda_{d1}^{a} N_{1}^{a} - \lambda_{1} N_{1}^{sa}, \qquad (2.8)$$

$$N_1^i = 0.$$
 (2.9)

Свинец <sup>214</sup>Pb (RaB)

$$\frac{dN_2^u}{dt} = \lambda_1 N_1^u + p_\alpha \lambda_1 N_1^a - \left(\lambda_2 + \lambda_\nu + \lambda_\chi + \lambda_{d2}^u\right) N_2^u, \qquad (2.10)$$

$$\frac{dN_2^a}{dt} = \lambda_{\chi} N_2^u + (1 - p_{\alpha}) \lambda_1 N_1^a - (\lambda_2 + \lambda_{\nu} + \lambda_{d2}^a) N_2^a, \qquad (2.11)$$

$$\frac{dN_{2}^{su}}{dt} = \lambda_{d2}^{u}N_{2}^{u} + (1 - p_{in1}^{su})\lambda_{1}N_{1}^{su} + p_{\alpha}(1 - p_{in1}^{sa})\lambda_{1}N_{1}^{sa} - \lambda_{2}N_{2}^{su}, \qquad (2.12)$$

$$\frac{dN_2^{sa}}{dt} = \lambda_{d2}^a N_2^a + (1 - p_\alpha) \lambda_1 N_1^{sa} - \lambda_2 N_2^{sa}, \qquad (2.13)$$

$$\frac{dN_{2}^{i}}{dt} = p_{in1}^{su}\lambda_{1}N_{1}^{su} + p_{\alpha}p_{in1}^{sa}\lambda_{1}N_{1}^{sa} - \lambda_{2}N_{2}^{i}.$$
(2.14)

## Висмут <sup>214</sup>Ві (RaC), полоний <sup>214</sup>Ро (RaC')

$$\frac{\mathrm{d}N_3^{\mathrm{u}}}{\mathrm{d}t} = \lambda_2 N_2^{\mathrm{u}} + p_\beta \lambda_2 N_2^{\mathrm{a}} - \left(\lambda_3 + \lambda_\nu + \lambda_\chi + \lambda_{\mathrm{d}3}^{\mathrm{u}}\right) N_3^{\mathrm{u}}, \qquad (2.15)$$

$$\frac{\mathrm{d}\mathbf{N}_{3}^{\mathrm{a}}}{\mathrm{d}t} = \lambda_{\chi}\mathbf{N}_{3}^{\mathrm{u}} + (1 - \mathbf{p}_{\beta})\lambda_{2}\mathbf{N}_{2}^{\mathrm{a}} - (\lambda_{3} + \lambda_{\nu} + \lambda_{\mathrm{d}3}^{\mathrm{a}})\mathbf{N}_{3}^{\mathrm{a}}, \qquad (2.16)$$

$$\frac{dN_3^{su}}{dt} = \lambda_{d3}^{u} N_3^{u} + \lambda_2 N_2^{su} - \lambda_3 N_3^{su}, \qquad (2.17)$$

$$\frac{dN_3^{sa}}{dt} = \lambda_{d3}^a N_3^a + \lambda_2 N_2^{sa} - \lambda_3 N_3^{sa}, \qquad (2.18)$$

$$\frac{dN_{3}^{i}}{dt} = \lambda_{2}N_{2}^{i} - \lambda_{3}N_{3}^{i}.$$
(2.19)

## Свинец <sup>210</sup>Pb (RaD)

Начиная с <sup>210</sup>Pb, все радионуклиды цепочки распада радона являются долгоживущими, и их объемная активность в атмосфере никогда не достигает значимых величин. Поэтому состояния взвешенных в воздухе свободных и присоединенных продуктов распада радона в модели не рассматриваются.

$$\frac{dN_4^{su}}{dt} = (1 - p_{in2}^{su})\lambda_3 N_3^{su} + p_\alpha (1 - p_{in2}^{sa})\lambda_3 N_3^{sa} + p_{out}\lambda_3 N_3^i - \lambda_4 N_4^{su}, \qquad (2.20)$$

$$\frac{\mathrm{d}N_4^{\mathrm{sa}}}{\mathrm{d}t} = \left(1 - p_\alpha\right)\lambda_3 N_3^{\mathrm{sa}} - \lambda_4 N_4^{\mathrm{sa}},\tag{2.21}$$

$$\frac{dN_4^i}{dt} = p_{in2}^{su} \lambda_3 N_3^{su} + p_\alpha p_{in2}^{sa} \lambda_3 N_3^{sa} + (1 - p_{out}) \lambda_3 N_3^i - \lambda_4 N_4^i.$$
(2.22)

## Висмут<sup>210</sup>Bi (RaE)

$$\frac{dN_{5}^{su}}{dt} = \lambda_{4}N_{4}^{su} - \lambda_{5}N_{5}^{su}, \qquad (2.23)$$

$$\frac{dN_{5}^{sa}}{dt} = \lambda_{4}N_{4}^{sa} - \lambda_{5}N_{5}^{sa}, \qquad (2.24)$$

$$\frac{dN_{5}^{i}}{dt} = \lambda_{4}N_{4}^{i} - \lambda_{5}N_{5}^{i}.$$
(2.25)

## Полоний <sup>210</sup>Ро (RaF)

$$\frac{\mathrm{dN}_6^{\mathrm{su}}}{\mathrm{dt}} = \lambda_5 N_5^{\mathrm{su}} - \lambda_6 N_6^{\mathrm{su}}, \qquad (2.26)$$

$$\frac{\mathrm{dN}_6^{\mathrm{sa}}}{\mathrm{dt}} = \lambda_5 N_5^{\mathrm{sa}} - \lambda_6 N_6^{\mathrm{sa}},\tag{2.27}$$

$$\frac{dN_{6}^{i}}{dt} = \lambda_{5}N_{5}^{i} - \lambda_{6}N_{6}^{i}.$$
(2.28)

Суммарное число атомов <sup>210</sup>Ро с учетом того, что часть поверхностной активности удаляется при очистке, равно

$$N_{6} = (1 - p_{c}) \cdot (N_{6}^{su} + N_{6}^{sa}) + N_{6}^{i}.$$
(2.29)

## 2.3. Использование модели при проведении ретроспективных оценок

Основная задача модели поведения ДПР радона в данной работе – установить связь между измеряемой поверхностной активностью стекла и объемной активностью радона в помещении, усредненной за период нахождения стеклян-
ного объекта в этом помещении. Один из вариантов использования модели – численное решение системы дифференциальных уравнений (2.4) – (2.28) методом Эйлера (последовательными итерациями по времени). Такой метод позволяет задавать любые комбинации коэффициентов и произвольно варьировать их в течение моделирования нахождения объекта в помещении. Недостатком является относительно большое время вычисления. Другой вариант предполагает принятие условий равновесия. В этом случае уравнения для короткоживущих ДПР радона (2.4) – (2.19) приравниваются к нулю (dN<sub>i</sub>/dt = 0). Долгоживуцие радионуклиды не достигают равновесия в течение длительного времени, поэтому для их описания используется рекурсивный формализм [64]:

$$N_{4}^{su} = \left( \left( 1 - p_{in2}^{su} \right) \lambda_{3} N_{3}^{su} + p_{\alpha} \left( 1 - p_{in2}^{sa} \right) \lambda_{3} N_{3}^{sa} + p_{out} \lambda_{3} N_{3}^{i} \right) \left( 1 - p_{c} \right) F_{44}, \qquad (2.30)$$

$$N_{5}^{su} = \left( \left( 1 - p_{in2}^{su} \right) \lambda_{3} N_{3}^{su} + p_{\alpha} \left( 1 - p_{in2}^{sa} \right) \lambda_{3} N_{3}^{sa} + p_{out} \lambda_{3} N_{3}^{i} \right) \left( 1 - p_{c} \right) \lambda_{4} F_{45}, \quad (2.31)$$

$$N_{6}^{su} = \left( \left( 1 - p_{in2}^{su} \right) \lambda_{3} N_{3}^{su} + p_{\alpha} \left( 1 - p_{in2}^{sa} \right) \lambda_{3} N_{3}^{sa} + p_{out} \lambda_{3} N_{3}^{i} \right) \left( 1 - p_{c} \right) \lambda_{4} \lambda_{5} F_{46}, \quad (2.32)$$

$$N_{4}^{sa} = ((1 - p_{\alpha})\lambda_{3}N_{3}^{sa})(1 - p_{c})F_{44}, \qquad (2.33)$$

$$N_{5}^{sa} = ((1 - p_{\alpha})\lambda_{3}N_{3}^{sa})(1 - p_{c})\lambda_{4}F_{45}, \qquad (2.34)$$

$$N_{6}^{sa} = ((1 - p_{\alpha})\lambda_{3}N_{3}^{sa})(1 - p_{c})\lambda_{4}\lambda_{5}F_{46}, \qquad (2.35)$$

$$N_{4}^{i} = \left(p_{in2}^{su}\lambda_{3}N_{3}^{su} + p_{\alpha}p_{in2}^{sa}\lambda_{3}N_{3}^{sa} + (1-p_{out})\lambda_{3}N_{3}^{i}\right)F_{44}, \qquad (2.36)$$

$$N_{5}^{i} = \left(p_{in2}^{su}\lambda_{3}N_{3}^{su} + p_{\alpha}p_{in2}^{sa}\lambda_{3}N_{3}^{sa} + (1 - p_{out})\lambda_{3}N_{3}^{i}\right)\lambda_{4}F_{45}, \qquad (2.37)$$

$$N_{6}^{i} = \left(p_{in2}^{su}\lambda_{3}N_{3}^{su} + p_{\alpha}p_{in2}^{sa}\lambda_{3}N_{3}^{sa} + (1 - p_{out})\lambda_{3}N_{3}^{i}\right)\lambda_{4}\lambda_{5}F_{46}, \qquad (2.38)$$

где F<sub>ij</sub> – рекурсивные функции, определяемые выражениями:

$$F_{i,j}(t) = \frac{1 - \exp(-\lambda_i \cdot T)}{\lambda_i}, \qquad \qquad \text{для } i = j \qquad (2.39)$$

$$F_{i,j}(t) = \frac{F_{i,j-1}(t) - F_{i+1,j}(t)}{\lambda_j - \lambda_i}, \qquad \qquad \text{для } i < j \qquad (2.40)$$

где Т – возраст стеклянного объекта.

При таком подходе все дифференциальные уравнения преобразовываются в простые линейные уравнения, решаемые последовательно. При этом связь между поверхностной активностью полония и ОА радона устанавливается для некоторого фиксированного набора коэффициентов модели, которые предположительно не изменяются в течение всей жизни стеклянного объекта (либо описываются средними величинами). Так, для средних значений коэффициентов модели, приведенных в разделе 2.1, связь средней объемной активности радона  $C_0$  (Бк/м<sup>3</sup>) в помещении за время существования стеклянного объекта T с измеренной поверхностной активностью полония в стекле  $A_S^{Po}$  (мБк/см<sup>2</sup>) имеет вид:

$$C_0 = \frac{245 \cdot A_S^{Po}}{1 - \exp(-\lambda_4 \cdot T)}.$$
(2.41)

Уравнение справедливо для периодов времени, значительно превышающих период полураспада <sup>210</sup>Ро (138 сут). Поскольку для ретроспективной оценки экспозиции по радону целесообразно использовать объекты с возрастом не менее 10 лет, для них это условие выполняется всегда.

Модель поведения ДПР радона может использоваться не только для установления ретроспективной связи, другим применением модели может быть:

- выявление ключевых процессов или параметров, требующих подробного анализа или измерения для проведения более точных оценок (например, характера оседания частиц на поверхности);
- теоретическая оценка эффективности различных мер снижения и контроля уровней радона и его ДПР (например, вентиляция воздуха);
- численная оценка одних физических параметров исходя из экспериментального определения других (например, доли свободных ДПР радона из сдвига равновесия между радоном и его ДПР);
- оценка распределения активности между различными состояниями (например, доли неприсоединенных частиц);
- моделирование отклика различных типов радоновых детекторов при разных объемных активностях радона и внешних условиях;
- прогноз долгосрочных вариаций уровней радона в помещении за счет естественных процессов.

# 2.4. Моделирование процессов имплантации продуктов распада радона в стекло

Для оценки доли частиц, проникающих в приповерхностные слои стекла за счет передаваемой им при α-распаде энергии, в данной работе было проведено моделирование процессов имплантации ядер отдачи в стекло [9].

## 2.4.1. Моделирование процессов имплантации свободных ДПР радона, осевших на стекло

При  $\alpha$ -распаде <sup>218</sup>Ро ядру отдачи передается энергия 110 кэВ, а при распаде <sup>214</sup>Ро – 140 кэВ. Угловое распределение испускаемых при распаде частиц изотропное, поэтому вероятность испускания ядра отдачи в направлении, ограниченном телесным углом d $\Omega$ , пропорциональная величине этого телесного угла и равна d $\Omega/4\pi$ . Направление вылета частицы удобно задавать в сферической системе координат (ССК) (рис. 2.4, а) двумя направляющими углами – долготой  $\varphi$  и широтой  $\theta$ . Элемент телесного угла, задаваемый интервалами [ $\varphi$ ,  $\varphi$  + d $\varphi$ ] и [ $\theta$ ,  $\theta$  + d $\theta$ ] равен [10]:

$$d\Omega = \sin\theta \, d\theta \, d\phi, \tag{2.42}$$

а направляющие косинусы (косинусы углов, образованных заданным направлением с положительными направлениями осей координат ОХ, ОҮ, ОZ)

$$Cos\alpha_{x} = Sin\theta Cos\phi$$

$$Cos\alpha_{y} = Sin\theta Sin\phi$$

$$Cos\alpha_{z} = Cos\theta$$
(2.43)

Если в первом приближении считать траектории пробега ядер отдачи прямолинейными, а длину пробега постоянной для всех частиц, то очевидно, что коэффициент имплантации ядер отдачи в вещество составит 0,5. Если рассматривать материнское радиоактивное ядро, находящееся в начале координат, и полубесконечный слой вещества, лежащий в области x > 0, то область возможных точек, в которой может остановиться испускаемое ядро отдачи (стать имплантированным), опишется полусферой с центром в начале координат. Вероятность имплантации ядра отдачи на глубине [x, x + dx] от внешней поверхности пропорциональна площади шарового слоя, ограниченного этим диапазоном (рис. 2.4, б). Формула для вычисления площади (в данном случае h = dx) [10]:

 $S = 2\pi Rh . (2.44)$ 

Как видно, площадь не зависит от расстояния между слоем и центром окружности, и, следовательно, профиль внедрения (распределение имплантированных частиц по глубине) равномерен в интервале от 0 до R.

В действительности существует статистический разброс длины пробега частиц в веществе, траектории пробега отличаются от прямолинейных, и при малых углах падения ( $\cos\alpha_x \approx 0$ ) возможен обратный вылет частицы. Для учета этого расчет траекторий ядер отдачи выполнялся с помощью программы для расчета пробега ионов в веществе SRIM-2003 [92].

Входными данными для программы SRIM-2003 являются характеристики падающих ионов (элемент, энергия, глубина залегания в мишени, угол падения – три направляющих косинуса) и мишени (элементный состав слоев, плотность, толщина). Для каждого заданного иона (или определенного количества одина-ковых ионов) программа просчитывает возможную траекторию полета в мишени и выдает конечные координаты остановки иона в веществе (либо вне его).

В качестве вещества мишени здесь и далее использовался стандартный состав стекла со следующим элементным составом: O – 60%, Si – 25%, Na – 10%, Ca – 3%, Mg – 1%, Al – 1% (плотность 2,4 г/см<sup>3</sup>).



Рис. 2.4. Сферическая система координат (а) – элемент телесного угла, (б) – шаровой слой

#### Алгоритм моделирования

1. Задание дискретности N и M по углам φ и θ

$$\varphi_{i} = i \cdot \frac{2\pi}{N}, \ \theta_{j} = j \cdot \frac{\pi}{M}$$
(2.45)

$$\phi_{0_{i}} = \phi_{i} + \frac{\phi_{i+1} - \phi_{i}}{2}, \ \theta_{0_{j}} = \theta_{j} + \frac{\theta_{j+1} - \theta_{j}}{2}$$
(2.46)

- 2. Вычисление элементарного телесного угла  $d\Omega_{i,j} = \sin\theta_{0_j} (\theta_{j+1} - \theta_j) \cdot (\phi_{i+1} - \phi_i)$ (2.47)
- 3. Вычисление направляющих косинусов

$$Cos\alpha_{x_{i,j}} = Sin\theta_{0j}Cos\phi_{0i}$$

$$Cos\alpha_{y_{i,j}} = Sin\theta_{0j}Sin\phi_{0i}$$

$$Cos\alpha_{z_{i,j}} = Cos\theta_{0j}$$
(2.48)

4. Моделирование прохождения частиц через вещество в SRIM-2003
 входные данные: {E (кэВ), H (нм), Cosα<sub>xi,j</sub>, Cosα<sub>yi,j</sub>, Cosα<sub>zi,j</sub>}
 выходные данные: { x<sub>i,j</sub>, y<sub>i,j</sub>, z<sub>i,j</sub> }

5. Расчет гистограммы по глубине x (от 0 до максимальной глубины проникновения H<sub>max</sub> с дискретностью P)

для 
$$x_{i,j} > 0$$
  
 $k = \frac{x_{i,j}}{150} \cdot P, \quad H_k = H_k + d\Omega_{i,j}$ 
(2.49)

6. Вычисление коэффициента имплантации

для 
$$x_{i,j} < 0$$
  
 $\Omega_{\text{out}} = \Omega_{\text{out}} + d\Omega_{i,j}$ 
(2.50)

$$p_{\rm in} = \frac{4\pi - \Omega_{\rm out}}{4\pi} \tag{2.51}$$

В результате 10<sup>6</sup> итераций коэффициент имплантации для обоих αизлучающих изотопов полония <sup>218</sup>Ро и <sup>214</sup>Ро составил 0,46. Профили внедрения ядер представлены на рис. 2.5.



Рис. 2.5. Профили внедрения ядер отдачи после первого распада (a) – распад <sup>218</sup>Ро, (б) – распад <sup>214</sup>Ро

Имплантированные после распада <sup>218</sup>Ро ядра отдачи испытывают повторный α-распад и могут изменить свое положение в стекле, либо покинуть его. Для определения коэффициента обратного вылета и результирующего профиля внедрения производилось моделирование распада имплантированных ионов на разной глубине стекла. Для учета неравномерного распределения частиц по глубине после первого распада элемент телесного угла домножался на относительную долю ионов на каждой конкретной глубине:

$$d\Omega_{i,j,k} = H_k \cdot \operatorname{Sin}_{0_j} \left( \theta_{j+1} - \theta_j \right) \cdot \left( \phi_{i+1} - \phi_i \right)$$
(2.52)

На рис. 2.6, а представлено оценочное распределение, полученное в приближении прямолинейных траекторий частиц и постоянного пробега в веществе, а на рис. 2.6, б – результат моделирования в программе SRIM-2003. Коэффициент обратного вылета составил 0,27.

Таким образом, после первого акта распада максимальная глубина внедрения ядра отдачи составляет 60 ÷ 70 нм, а распределение при этом близко к нормальному. В результате второго акта распада спектр расширяется до 100 ÷ 110 нм, распределение в интервале от 0 до 60 нм становится практически равномерным, а в интервале от 60 до 100 нм – равномерно спадающим.

Имплантированные по двум разным вариантам (см. рис. 2.2) ядра отдачи формируют результирующий профиль внедрения, как суперпозицию спектров с

42

рисунков 2.5 и 2.6. Отношение числа атомов, имплантированных в результате двух стадий распада <sup>218</sup>Ро, к числу атомов, имплантированных в результате одного акта распада <sup>214</sup>Ро, было получено методом Монте-Карло. Каждому параметру модели поведения радона и его ДПР присваивалось случайное значение в соответствии с характерным для него вероятностным распределением (см. табл. 5.3) и рассчитывалось соотношение между атомами, имплантированными по двум разным вариантам. Среднее значение составило 0,64, результирующий профиль внедрения представлен на рис. 2.7.



Рис. 2.6. Профиль внедрения ядер отдачи после второго распада (а) – оценка, (б) – моделирование в SRIM-2003



Рис. 2.7. Результирующий профиль внедрения ядер отдачи при распаде свободных продуктов распада радона, осевших на стекло

# 2.4.2. Моделирование процессов имплантации присоединенных ДПР радона, осевших на стекло

Вероятность имплантации продуктов распада радона, присоединенных к аэрозольным частицам, снижается за счет того, что часть ядер отдачи вылетает в направлении к аэрозолю, а остальные имплантируются не с самой поверхности стекла, а с некоторого расстояния от него. В данной работе проведено моделирование процессов имплантации для аэрозольной частицы сферической формы (см. рис. 2.8). В каждой точке сферы, с которой может вылететь ядро отдачи, вводится новая система координат X'Y'Z' ( $\psi$  – долгота, 9 – широта), начало которой совпадает с этой точке. Для удобства углы θ и 9 откладываются от осей ОХ и O'X'. Предполагается, что ядро отдачи может имплантироваться внутрь стекла только при углах вылета, для которых соs $\alpha_{x'}$  > 0.



Рис. 2.8. Имплантация ядра отдачи с поверхности аэрозольной частицы

Формулы преобразования, связывающие координаты x, y, z c координатами x', y', z', имеют вид [15]:

$$x = t_{11}x'+t_{12}y'+t_{13}z'+x_{0} y = t_{21}x'+t_{22}y'+t_{23}z'+y_{0} z = t_{31}x'+t_{32}y'+t_{33}z'+z_{0}$$
(2.53)

где  $t_{11}$ ,  $t_{21}$ ,  $t_{31}$  – направляющие косинусы оси O'X' относительно системы XYZ,  $t_{12}$ ,  $t_{22}$ ,  $t_{32}$  – направляющие косинусы оси O'Y',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{13}$ ,  $t_{23}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{33}$ ,  $t_{33}$ ,  $t_{33}$  – направляющие косинусы оси O'Z',  $t_{33}$ ,  $t_$ 

Для системы координат Х'Ү'Z', у которой плоскость Ү'Z' является касательной к сфере, а ось О'Ү' пересекает ось ОХ в некоторой точке, матрица направляющих косинусов следующая:

$$T = \begin{pmatrix} \cos\theta & -\sin\theta & 0\\ \sin\theta\cos\phi & \cos\theta\cos\phi & -\sin\phi\\ \sin\theta\sin\phi & \cos\theta\sin\phi & \cos\phi \end{pmatrix},$$
 (2.54)

а координаты начала системы:

$$\begin{array}{l} x_{0} = R\cos\theta \\ y_{0} = R\sin\theta\cos\varphi \\ z_{0} = R\sin\theta\sin\varphi \end{array} \right\},$$
(2.55)

где R – радиус аэрозольной частицы.

Для частицы, испускаемой из точки ( $x_0$ ,  $y_0$ ,  $z_0$ ) в направлении, задаваемом углами  $\psi$  и 9, направляющие косинусы в системе координат XYZ можно найти по формулам [15]:

$$\cos\alpha_{x} = \frac{x - x_{0}}{\sqrt{(x - x_{0})^{2} + (y - y_{0})^{2} + (z - z_{0})^{2}}} \cos\alpha_{y} = \frac{y - y_{0}}{\sqrt{(x - x_{0})^{2} + (y - y_{0})^{2} + (z - z_{0})^{2}}} \cos\alpha_{z} = \frac{z - z_{0}}{\sqrt{(x - x_{0})^{2} + (y - y_{0})^{2} + (z - z_{0})^{2}}}$$
(2.56)

где (x, y, z) – координаты точки на направляющем векторе, для которой

$x' = \cos \vartheta$	
$y' = \sin \vartheta \cos \psi$	(2.57)
$z' = \sin \vartheta \sin \psi$	

(переход из системы координат X'Y'Z' в систему XYZ осуществляется по формуле (2.51)).

Алгоритм моделирования имплантации присоединенных к аэрозолям продуктов распада радона аналогичен алгоритму для свободных ДПР, но с варьированием четырех углов (φ,θ,ψ,θ). Элементарный вклад частицы, направление вылета которой задается этими углами, равен

 $dN = \sin\theta \sin\theta \, d\varphi \, d\theta \, d\psi \, d\theta. \tag{2.58}$ 

Оценка коэффициентов имплантации в приближении прямолинейных траекторий пробега частицы и постоянной длины пробега показала, что на всем интересующем диапазоне размеров частиц (диаметр d от 10 нм до 10 мкм, см. рис. 2.1) численное значение коэффициента практически не изменяется и для обоих изотопов полония равно 0,25. Относительное распределение частиц по глубине, как и в случае свободных продуктов распада, является равномерным. Это объясняется тем, что пробег ядер отдачи в воздухе значительно превышает размер аэрозольной частицы и геометрический фактор не сказывается на коэффициенте имплантации. Так, при диаметре аэрозоля 10 мкм коэффициент составляет 0,23, гипотетическое увеличение диаметра до 100 мкм приводит к снижению коэффициента до 0,14, а при 1 мм он равен 0,01. При этом наблюдается смещение средней глубины имплантации в область меньших значений и формирование хвоста распределения вплоть до максимального значения.

Моделирование имплантации с помощью пакета SRIM-2003 для типичных значений АМД двух мод – 200 нм (аккумуляционная мода) и 3000 нм (крупнозернистая мода) дало следующие результаты (рис. 2.9). Значение коэффициента имплантации во всем диапазоне размеров аэрозольных частиц практически не изменяется и составляет 0,23.



Рис. 2.9. Профили внедрения ядер отдачи при распаде ДПР радона, осевших на аэрозольные частицы с диаметром 200 нм (а) и 3000 нм (б)

Коэффициент обратного вылета для разных изотопов полония и разного размера аэрозолей также слабо изменяется, и среднее значение, полученное в результате моделирования, составляет 0,26.

Данная глава является вводной для последующего текста диссертационной работы и посвящена постановке, адаптации и формулировке модели поведения радона и его продуктов распада в помещении. Все теоретические оценки, проводимые в последующих разделах, в той или иной степени, основаны на использовании этой модели. В качестве итоговых результатов второй главы можно выделить следующие:

1. Дан анализ всех физических процессов, влияющих на состояние дочерних продуктов распада радона, определены коэффициенты модели, характеризующие эти процессы, и проведен обзор опубликованных данных по их теоретическим и экспериментальным оценкам, выявлены наиболее характерные диапазоны изменения коэффициентов.

2. Впервые в модели поведения ДПР радона проведено разделение осевших на поверхности продуктов распада радона на кластерное и аэрозольное состояния.

3. Проведено независимое моделирование процессов имплантации ДПР радона в стекло для свободных и присоединенных ДПР. Для каждого варианта

47

имплантации получено распределение ядер отдачи по глубине стекла и рассчитаны коэффициенты имплантации и обратного вылета.

3. Представлена аналитическая формулировка модели поведения ДПР радона в виде системы дифференциальных уравнений, готовая к проведению ретроспективных оценок и задачам моделирования.

4. Для средних значений коэффициентов модели получено уравнение, связывающее поверхностную активность <sup>210</sup>Ро в стекле и среднюю объемную активность радона в помещении за время существования стеклянного объекта.

# 3. Многослойный детектор поверхностной активности имплантированного в стекло <sup>210</sup>Ро

Твердотельные ядерные трековые детекторы прочно вошли в практику радоновых исследований, как за рубежом, так и нашей стране. Перспективный метод радиационно-физического и радиобиологического эксперимента [16, 12], используемый для регистрации и идентификации тяжелых заряженных высокоэнергетических частиц, стал успешно применяться для измерения содержания α-излучающих изотопов радона и его продуктов распада в воздухе. Сравнительно большая длительность экспозиции детектора (несколько месяцев), необходимая для формирования отклика от невысокой концентрации радионуклидов в воздухе, делает метод измерения интегрирующим и отвечает актуальным принципам проведения радоновых обследований.

С появлением новых подходов в эпидемиологии радона, ориентирующихся на ретроспективное восстановление данных по облучению организма человека, трековые детекторы стали основой одного из наиболее доступных методов проведения таких исследований. Широкий арсенал трековых материалов обусловил появление разнообразных ретроспективных детекторов, разработанных разными институтами. Наряду с регистрацией излучения от долгоживущих продуктов распада радона, ретроспективный детектор должен дискриминировать фоновое излучение. Поэтому конструкция детекторов, как правило, включает в себя два трековых материала разного типа, либо два одинаковых, один из которых покрыт слоем поглотителя.

В данной работе разработан детектор с одним трековым материалом LR-115, устанавливаемым в многослойной конфигурации, что позволяет не только четко выделить излучение от <sup>210</sup>Po из общего спектра, но и оценить и учесть радионуклидный состав фонового излучения.

Материал LR-115 является основой утвержденной Госстандартом методики выполнения измерений ОА радона интегральным трековым методом [17], правила обращения и режимы обработки материала регламентированы.

### 3.1. Материалы и методы

В данной диссертационной работе используется трековый метод измерения активности α-излучающих радионуклидов. Чувствительным элементом детектора является твердотельный диэлектрический трековый материал. Испускаемые радионуклидом заряженные частицы, проходя через диэлектрик, теряют часть или всю свою энергию, производя радиационные нарушения вещества. В результате вдоль траектории образуется область, в которой находится вещество с измененной структурой, обладающее, как правило, повышенной химической растворимостью [16]. Благодаря отсутствию в диэлектриках свободных электронов область сформированного, так называемого, латентного трека является довольно стабильной и в зависимости от материала и внешних условий может сохраняться без изменений в течение нескольких месяцев или лет. При воздействии на диэлектрики специально подобранных химических реагентов область латентных треков травится, и на их месте образуются пустотелые конические или цилиндрические каналы (выявленные треки), которые могут быть обнаружены различными способами (оптический, электро-искровой, кондуктометрический и т.д.).

Основой ретроспективного детектора, разработанного в данной работе, является трековый материал LR-115 (производитель – фирма Kodak Pathé, Франция). Материал поставляется в виде листовой пленки, состоящей из тонкого (12,8 мкм) однородного α-чувствительного слоя красного цвета, нанесенного на подложку из полиэстера (100 мкм) и удерживаемого на ней за счет сил адгезии. Основа чувствительного материала – нитрат целлюлозы.

Механизмы передачи энергии частицы веществу детектора сложны, многообразны и недостаточно изучены [12]. Очевидно, что не каждая частица способна сформировать латентный трек в материале детектора. В простейшем приближении критерием образования выявляемого трека является превышение удельных потерь энергии dE/dx частицы (при пересечении детектора) некоторой пороговой величины, числовое значение которой определяется материалом детектора и условиями травления. Детектор LR-115 имеет узкое энергетическое окно и чувствителен к  $\alpha$ -частицам с энергией в диапазоне от 1,5 до 4 МэВ. В качестве критерия образования регистрируемых треков в материале детектора использовались данные по экспериментальным исследованиям эффективности регистрации  $\alpha$ -частиц материалом LR-115 в широком диапазоне энергий Е и углов падения частиц  $\theta$ , полученные в работах [21, 58] (см. рис. 4.1). Для  $\theta = 0$  функция эффективности имеет плато между  $E \approx 2$  МэВ и 3,5 Мэв и обращается в нуль при  $E \approx 1$  МэВ и 4,25 МэВ. С увеличением  $\theta$  ширина плато уменьшается (особенно со стороны низких энергий), и кривая становится в значительной степени ассиметричной с более крутым наклоном со стороны высоких энергий. Для  $\theta > 40^\circ$  максимальное значение эффективности становится меньше единицы, для  $50^\circ < \theta < 55^\circ$  эффективность резко падает и для  $\theta = 60^\circ$  практически равна нулю при любых энергиях.

Для описания энергетически-угловой зависимости эффективности регистрации в работе [34] предложена следующая аналитическая функция:

$$\epsilon(\mathbf{E}, \theta) = (1 + \exp(-c_1\eta_1) + \exp(-c_2\eta_2))^{-1},$$
  

$$\eta_1 = \mathbf{E} - c_3 + \frac{c_4 - c_5\theta}{|c_4 - c_5\theta|} |c_4^3 - (c_5\theta)^3|^{1/3},$$
  

$$\eta_2 = -\mathbf{E} + c_3 + \frac{c_4 - c_5\theta}{|c_4 - c_5\theta|} |c_4^3 - (c_5\theta)^3|^{1/3},$$
(3.1)

где коэффициенты  $c_1$  и  $c_2$  регулируют левый и правый наклоны кривой, соответственно,  $c_3$  регулирует значение энергии, относительно которого кривая зацентрирована,  $c_4$  и  $c_5$  управляют характером зависимости эффективности регистрации частиц от разных значений угла  $\theta$ .

Подгонка коэффициентов уравнения в пакете TableCurve 3D (v.4.0) дала следующие значения:  $c_1 = 3,89$ ;  $c_2 = 16,2$ ;  $c_3 = 2,84$ ;  $c_4 = 1,12$ ;  $c_5 = 2,03 \cdot 10^{-2}$ . По-грешность подгонки составляет не более 9%. Во всех последующих расчетах использовалась функция (3.1) с этими значениями. На рис. 3.2. представлен

трехмерный вид энергетически-угловой зависимости эффективности регистрации α-излучения материалом LR-115.



Рис. 3.1. Зависимость эффективности регистрации α-излучения материалом LR-115 от энергии для углов (от внешней кривой к внутренней): 0°, 30°, 40°, 50°, 55°, 60° [58]



Рис. 3.2. Объемное представление функции (3.1)

Эффективность регистрации α-излучения также зависит от условий травления. В работе [58] травление производилось в 2,5-нормальном растворе NaOH при 60°C в течение 110 мин. Скорость травления для такого режима составляет 3,27 мкм/ч [62, 22], и соответственно, стравливаемая толщина равна 6 мкм (при перемешивании раствора скорость травления увеличивается до 6,65 мкм/ч [90]). При травлении в 2,5-нормальном растворе NaOH при 50°C скорость травления составляет 1,75 мкм/ч [62]. Соотношение скоростей травления при разных температурах равно 0,54.

В данной работе обработка трековых материалов выполнялось в соответствии с утвержденной Госстандартом методикой выполнения интегральных измерений ОА радона [17]. Предписываемый режим травления: 150 мин в 6-нормальном растворе NaOH при 50°C. В работе [20] дана скорость травления для 6-нормального раствора при 60°С: 4,49 мкм/ч. Следовательно, при 50°С скорость травления составляет  $4,49 \cdot 0,54 = 2,4$  мкм/ч. При травлении в течение 150 мин стравливаемая толщина также составит 6 мкм, поэтому можно считать, формула (3.1)описывает эффективность что адекватно регистрации α-излучения и для режима травления, используемого в данной работе. Последующая экспериментальная проверка подтвердила данное предположение.

Методика обращения, экспонирования, травления и последующей обработки трекового материала LR-115 подробно изложена в [17] и неукоснительно соблюдалась. Подсчет количества треков в материале детектора осуществлялся электро-искровым методом. При планировании экспериментов необходимая для набора плотность треков выбиралась из диапазона, рекомендуемого методикой: 400 ÷ 4000 трек/см<sup>2</sup>. Этому участку соответствует линейный диапазон измеряемых значений, и статистическая погрешность не превышает 5%.

Принцип идентификации треков, формируемых поверхностно-имплантированным <sup>210</sup>Ро в стекле, и дискриминации треков от фоновых радионуклидов стекла заключается в установке нескольких слоев трекового материала на исследуемых образцах.

# 3.2. Отклик детектора на воздействие излучения поверхностнораспределенного<sup>210</sup>Ро

Максимальная глубина имплантации продуктов распада радона в стекло составляет около 100 нм. Энергия, теряемая  $\alpha$ -частицей при прохождении такого слоя пренебрежимо мала. Поэтому  $\alpha$ -излучение на поверхности стекла, испускаемое атомами <sup>210</sup>Ро, можно считать моноэнергетическим с энергией 5,3 МэВ. Вклад dф в плотность потока  $\alpha$ -излучения на поверхности от частиц, испускаемых радионуклидом в направлении ( $\phi$ ,  $\theta$ ) (см. рис. 3.3), равен

$$d\phi = A_{S}^{Po} \cdot \frac{d\Omega}{4\pi} = A_{S}^{Po} \cdot \frac{\sin\theta \,d\theta \,d\phi}{4\pi}$$
(3.2)

где  $A_S^{Po}$  – поверхностная активность <sup>210</sup>Po;  $0 \le \theta \le \pi/2$ ;  $0 \le \phi \le 2\pi$ .

Скорость образования треков в слоях нитроцеллюлозы, установленных на поверхности стекла, соответственно равна

$$d\mu = d\phi \cdot \varepsilon(E, \theta) = A_{S}^{Po} \cdot \frac{\varepsilon(E, \theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi}{4\pi}.$$
(3.3)



Рис. 3.3. Испускание α-частиц приповерхностным <sup>210</sup>Ро

Энергия α-частиц, попадающих на первый слой равна 5,3 МэВ, с прохождением слоев детектора энергия частиц снижается. Для i-го слоя энергия входного излучения является функцией угла θ, и ее можно оценить по остаточному пробегу:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}(\theta) = \mathbf{E}_{\mathrm{LR}}\left(\mathbf{R}_{\mathrm{LR}}(5,3) - \frac{12,8 \cdot \mathbf{i}}{\cos\theta}\right),\tag{3.4}$$

где  $R_{LR}(E)$  – пробег  $\alpha$ -частицы с энергией E в материале детектора LR-115,  $E_{LR}(R)$  – энергия  $\alpha$ -частицы, пробег которой в материале LR-115 равен R.

Таким образом, скорость образования треков в слое і равна

$$\mu = \int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{\frac{\pi}{2}} \varepsilon \left( E_{LR} \left( R_{LR} \left( 5,3 \right) - \frac{12,8 \cdot i}{\cos \theta} \right), \theta \right) \frac{A_{S}^{Po} \sin \theta}{4\pi} d\theta d\phi \,. \tag{3.5}$$

Предполагается, что если пробег частицы  $R_{LR}(5,3)$  меньше расстояния до поверхности слоя  $12,8 \cdot i / \cos\theta$ , то для такой частицы  $\varepsilon(E,\theta) = 0$ . Функции  $E_{LR}(R)$  и  $R_{LR}(E)$  генерировались в пакете SRIM-2003 [92]. Рассчитанные значения плотности потока частиц перед слоем и скорости образования треков в слое представлены в табл. 3.1 (второй и четвертый столбцы).

Для учета непрямолинейности траекторий и статистического разброса длины пробега частиц в стекле для каждого направления (φ, θ) моделировалось прохождение α-частиц через слой нитроцеллюлозы с помощью программы SRIM-2003. Алгоритм моделирования уже описывался в разделе 2.3. Полученные значения также приведены в табл. 3.1 (третий и пятый столбцы).

Таблица 3.1

Отклик детектора на воздействие излучения приповерхностного <sup>210</sup>Ро

елиничной активности (	1	$F\kappa/cM^{2}$	١
сдиничной активности (	Ţ	DK/CM	,

Hower	Плотность потока частиц		Скорость образования треков,	
помер	перед слоем, част/см <sup>2</sup> ·с		трек/см <sup>2</sup> ·с	
СЛОЯ	расчет	моделирование	расчет	моделирование
1	$5 \cdot 10^{-1}$		$2,07 \cdot 10^{-11}$	
2	$2,91 \cdot 10^{-1}$	$2,92 \cdot 10^{-1}$	$1,89 \cdot 10^{-1}$	$1,90 \cdot 10^{-1}$
3	$8,17 \cdot 10^{-2}$	8,41.10 <sup>-2</sup>	$1,85 \cdot 10^{-3}$	$2,09 \cdot 10^{-3}$
4	0		0	

На поверхности стекла плотность потока  $\alpha$ -излучения от <sup>210</sup>Ро соответствует частицам, испускаемым в положительном направлении оси ОХ (в  $2\pi$ геометрию), и равна  $0.5 A_S^{Po}$ . Спектр излучения моноэнергетичный и изотропный. Спектры излучения, образуемые после прохождения первых двух слоев, представлены на рис. 3.4, 3.5.



Рис. 3.4. Относительное распределение α-частиц по энергии и углу вылета после прохождения первого слоя детектора



Рис. 3.5. Относительное распределение α-частиц по энергии и углу вылета после прохождения второго слоя детектора

Энергия  $\alpha$ -излучения от <sup>210</sup>Ро не попадает в рабочий диапазон материала LR-115, поэтому отклик первого слоя пренебрежимо мал и будет определяться фоновым излучением. После прохождения первого слоя энергия  $\alpha$ -частиц снижается до значений не выше 3,7 МэВ, и они с высокой эффективностью регистрируются вторым слоем. Энергия излучения после второго слоя составляет менее 1,3 МэВ, и отклик третьего слоя на два порядка меньше предыдущего и также будет определяться фоном. Три слоя нитроцеллюлозы целиком поглощают  $\alpha$ -излучение полония, поэтому для четвертого слоя значения нулевые.

# 3.3. Отклик детектора на воздействие излучения объемнораспределенных радионуклидов

Энергия α-излучения, испускаемого фоновыми радионуклидами стекла, поглощается не только в слоях детектора, но и в самом объеме стекла. Вклад dφ в плотность потока α-излучения на поверхности стекла от частиц, испускаемых с глубины х в направлении (φ, θ) (см. рис. 3.6), равен

$$d\phi = A_{m} \cdot dx \cdot \frac{d\Omega}{4\pi} = A_{m} \cdot dx \cdot \frac{\sin\theta \, d\theta \, d\phi}{4\pi} \cdot \begin{cases} 1, \ \frac{x}{\cos\theta} > R_{\alpha} \\ 0, \ \frac{x}{\cos\theta} \le R_{\alpha} \end{cases}, \tag{3.6}$$

где  $A_m$  – удельная активность радионуклида в стекле (Бк/г), x – расстояние до поверхности стекла (г/см<sup>2</sup>),  $R_{\alpha}$  – пробег излучения радионуклида в стекле. Интегрирование ведется в интервалах  $0 \le \theta \le \pi/2$ ;  $0 \le \phi \le 2\pi$ ;  $0 \le x \le R_{\alpha}$ .

Скорость образования треков в слоях детектора равна

$$d\mu = d\phi \cdot \varepsilon(E, \theta), \qquad (3.7)$$

а энергия α-частицы с учетом поглощения во всех веществах:

$$E = E_{LR} \left( R_{LR} \left( E_{GL} \left( R_{GL} \left( E_0 \right) - \frac{x}{\cos \theta} \right) \right) - \frac{12.8 \cdot i}{\cos \theta} \right).$$
(3.8)

Здесь  $E_0$  – начальная энергия  $\alpha$ -частицы,  $R_{GL}(E)$  и  $R_{LR}(E)$  – пробеги  $\alpha$ -частицы с энергией E в стекле и нитроцеллюлозе, соответственно,  $E_{GL}(R)$  и  $E_{LR}(R)$  – энер-

гии α-частиц, имеющих пробег R в стекле и нитроцеллюлозе, соответственно, i – номер слоя детектора.

В табл. 3.2 и на рис. 3.7 – 3.10 в качестве иллюстрации представлены результаты расчетов и моделирования выхода из стекла частиц с максимальной энергией α-излучателей уранового и ториевого рядов – 8,78 МэВ от <sup>212</sup>Ро (ThC') [6].



Рис. 3.6. Испускание α-частиц фоновым радионуклидом стекла

Таблица 3.2

Отклик детектора на воздействие излучения объемного источника <sup>212</sup>Ро

Номер	Плотность потока частиц перед слоем, част/см <sup>2</sup> ·с		Скорость образования треков, трек/см <sup>2</sup> ·с	
слоя	расчет	моделирование	расчет	моделирование
1	$3,00 \cdot 10^{-3}$	$3,02 \cdot 10^{-3}$	$3,27 \cdot 10^{-4}$	3,30.10-4
2	$1,95 \cdot 10^{-3}$	$1,96 \cdot 10^{-3}$	$3,21 \cdot 10^{-4}$	3,23.10-4
3	$1,13 \cdot 10^{-3}$	$1,15 \cdot 10^{-3}$	3,16.10-4	$3,18 \cdot 10^{-4}$
4	$5,42 \cdot 10^{-4}$	$5,52 \cdot 10^{-4}$	$2,50 \cdot 10^{-4}$	$2,49 \cdot 10^{-4}$

#### единичной удельной активности (1 Бк/г)





на поверхности стекла



Рис. 3.8. Относительное распределение α-частиц по энергии и углу вылета



после прохождения первого слоя детектора

Рис. 3.9. Относительное распределение α-частиц по энергии и углу вылета

после прохождения второго слоя детектора

59



Рис. 3.10. Относительное распределение α-частиц по энергии и углу вылета после прохождения третьего слоя детектора

Природные долгоживущие изотопы урана и тория распадаются по цепочкам радиоактивного распада, состоящим из более чем десятка радионуклидов. Поэтому для излучения, образуемого фоном стекла, характерно наличие нескольких энергетических линий (см. табл. 1.1, 1.2). На рис. 3.11 представлено энергетическое распределение частиц, образуемое на поверхности стекла за счет объемного содержания природных  $\alpha$ -излучателей [1]: <sup>238</sup>U в полном равновесии со своими дочерними продуктами распада (рис. 3.11, а), и <sup>232</sup>Th в полном равновесии со своими ДПР (рис. 3.11, б).



Рис. 3.11. Относительное распределение α-частиц по энергии на поверхности стекла для равновесных цепочек распада <sup>238</sup>U (а) и <sup>232</sup>Th (б)

60

В цепочках распада урана и тория самым подвижным элементом является радон, и в природе равновесие цепочек нарушается именно за счет него. В стекле же радон и его ДПР находятся в равновесии с материнским нуклидом, потому как после изготовления стекла их подвижность блокируется, они быстро выходят в равновесие. Сдвиг равновесия цепочки в сырье может также сформироваться для <sup>238</sup>U и <sup>226</sup>Ra и, соответственно, присутствовать в изготовленном стекле. В цепочке распада <sup>232</sup>Th радионуклиды имеют относительно малые периоды полураспада, поэтому ториевая цепочка в измеряемых стеклах практически всегда будет в равновесии. В табл. 3.3 приведены результаты моделирования отклика детектора на комплексное воздействие радионуклидов цепочек урана и тория с различным сдвигом равновесия между ураном и радием (в расчете на суммарную удельную активность  $\alpha$ -излучателей) [6].

Таблица 3.3

		Скорост	ь образован	ия треков, т	рек/см <sup>2</sup> ·с	
Номер споя	сдвиг равновесия между <sup>226</sup> Ra и <sup>238</sup> U					
Слоя	1,5	1,4	1,3	1,2	1,1	1
1	3,30.10-4	3,30.10-4	3,30.10-4	3,30.10-4	3,30.10-4	3,30.10-4
2	$1,84 \cdot 10^{-4}$	$1,81 \cdot 10^{-4}$	$1,79 \cdot 10^{-4}$	$1,76 \cdot 10^{-4}$	$1,72 \cdot 10^{-4}$	$1,69 \cdot 10^{-4}$
3	$4,79 \cdot 10^{-5}$	$4,70 \cdot 10^{-5}$	$4,59 \cdot 10^{-5}$	$4,47 \cdot 10^{-5}$	$4,34 \cdot 10^{-5}$	$4,19 \cdot 10^{-5}$
4	$9,70 \cdot 10^{-6}$	9,51·10 <sup>-6</sup>	9,29·10 <sup>-6</sup>	$9,05 \cdot 10^{-6}$	$8,79 \cdot 10^{-6}$	$8,49 \cdot 10^{-6}$
	сдвиг равновесия между <sup>226</sup> Ra и <sup>238</sup> U				<sup>232</sup> Tb	
	0,9	0,8	0,7	0,6	0,5	111
1	3,30.10-4	$3,30 \cdot 10^{-4}$	3,30.10-4	$3,30 \cdot 10^{-4}$	$3,30 \cdot 10^{-4}$	$3,30 \cdot 10^{-4}$
2	$1,64 \cdot 10^{-4}$	$1,60 \cdot 10^{-4}$	$1,54 \cdot 10^{-4}$	$1,48 \cdot 10^{-4}$	$1,40 \cdot 10^{-4}$	$2,49 \cdot 10^{-4}$
3	$4,03 \cdot 10^{-5}$	$3,83 \cdot 10^{-5}$	$3,61 \cdot 10^{-5}$	$3,35 \cdot 10^{-5}$	$3,05 \cdot 10^{-5}$	$8,30.10^{-5}$
4	$8,15 \cdot 10^{-6}$	$7,76 \cdot 10^{-6}$	$7,31 \cdot 10^{-6}$	$6,79 \cdot 10^{-6}$	$6,17 \cdot 10^{-6}$	$3,93 \cdot 10^{-5}$

## Отклик детектора на воздействие излучения радионуклидов природных цепочек с единичной удельной активностью (1 Бк/г)

## 3.4. Совместная оценка поверхностной и удельной активности стекла

Многослойная конфигурация детектора на основе трекового материала LR-115 позволяет провести совместную оценку как приповерхностного содержания долгоживущего продукта распада радона <sup>210</sup>Po, так и удельного содержания природных радионуклидов. Из табл. 3.1, 3.3 видно, что <sup>210</sup>Po регистрируется практически только во втором слое, в то время как отклик на фоновое излучение спадает от первого слоя к последнему.

Треками, формируемыми излучением от <sup>210</sup>Ро в первом слое можно пренебречь, и отклик слоя однозначно определяет суммарную удельную активность стекла, вне зависимости от радионуклидного состава. Если N<sub>1</sub> – число треков, образованных в первом слое, то удельная активность стекла по суммарному содержанию  $\alpha$ -излучающих радионуклидов уранового и ториевого рядов будет равна (Бк/г):

$$A_{\rm m} = \frac{3.51 \cdot 10^{-2}}{\rm T \cdot S} \,\rm N_1, \tag{3.9}$$

где T – длительность экспозиции детектора (сут), S – площадь рабочей поверхности детектора (см<sup>2</sup>).

Треки во втором слое могут быть образованы как излучением <sup>210</sup>Po, так и фоном. Количество фоновых треков во втором слое можно оценить по первому слою. Хотя для второго слоя однозначного соответствия между числом треков и суммарной удельной активностью стекла нет, и его отклик зависит от относительного содержания радионуклидов урановой и ториевой цепочек, если из табл. 3.3 взять усредненное значение, то грубую оценку поверхностной активности <sup>210</sup>Po (мБк/см<sup>2</sup>) можно провести по формуле [6, 24]:

$$A_{S}^{Po} = \frac{6.09 \cdot 10^{-2}}{T \cdot S} (N_{2} - 0.6 \cdot N_{1}).$$
(3.10)

Для стекла с фоновой удельной активностью 0,1 Бк/г, находящегося в течение 20 лет в помещении со средней объемной активностью радона 100 Бк/м<sup>3</sup>, погрешность такой оценки, обусловленная неизвестным радионуклидным составом стекла, составит не более 15%. Таким образом, уже двухслойный детектор может использоваться в ретроспективной дозиметрии радона с приемлемой точностью.

Для третьего слоя влияние <sup>210</sup>Ро мало (на два порядка меньше чем для второго), отклик также зависит от энергетического состава фонового излучения. Решая систему уравнений для трех слоев относительно поверхностной активности <sup>210</sup>Ро и удельных активностей уранового и ториевого рядов, имеем [6,24]:

$$A_{\rm S}^{\rm Po} = \frac{10^{-2}}{\rm T \cdot S} \left( -1,65 \cdot \rm N_1 + 6,23 \cdot \rm N_2 - 12,1 \cdot \rm N_3 \right)$$
(3.11)

$$A_{\rm m}^{\rm U} = \frac{10^{-2}}{\rm T \cdot S} \left( 7,0 \cdot \rm N_1 + 0,32 \cdot \rm N_2 - 28,8 \cdot \rm N_3 \right)$$
(3.12)

$$A_{m}^{Th} = \frac{10^{-2}}{T \cdot S} \left( -3,49 \cdot N_{1} - 0,32 \cdot N_{2} + 28,8 \cdot N_{3} \right)$$
(3.13)

Четвертый слой позволяет провести вторую независимую оценку этих величин. Отклик четвертого слоя определяется, главным образом, содержанием радионуклидов ториевого ряда (чувствительность слоя к ториевому ряду в 5 раз выше, чем к урановому). Решая аналогичную систему уравнений для первых двух и четвертого слоев, получаем:

$$A_{S}^{Po} = \frac{10^{-2}}{T \cdot S} \left( -2,71 \cdot N_{1} + 6,09 \cdot N_{2} - 15,8 \cdot N_{4} \right)$$
(3.15)

$$A_{\rm m}^{\rm U} = \frac{10^{-2}}{\rm T \cdot S} (4,47 \cdot N_1 - 37,6 \cdot N_4)$$
(3.16)

$$A_{m}^{Th} = \frac{10^{-2}}{T \cdot S} \left( -0.97 \cdot N_{1} + 37.6 \cdot N_{4} \right)$$
(3.17)

Возможность проведения второй оценки делает метод измерения самосогласованным.

#### 3.5. Лабораторные испытания детектора

Для проверки корректности проведенных расчетов и моделирования, достоверности полученных формул и адекватности модели поведения радона и его ДПР был проведен ряд испытаний многослойного детектора на различных радиоактивных образцах, воспроизводящих различные спектры входного αизлучения [24].

### Образцовый источник <sup>239</sup>Ри

Энергия α-излучения <sup>239</sup>Pu (5,15 МэВ) незначительно отличается от энергии излучения <sup>210</sup>Po (5,3 МэВ). Образцовый источник α-излучения с радионуклидом <sup>239</sup>Pu вполне подходит для воссоздания ситуации с поверхностнораспределенным <sup>210</sup>Po. Испытания многослойного детектора проводились на источнике 4П9-253.91 с площадью рабочей поверхности 40 см<sup>2</sup>. Активность радионуклида в источнике – 2,69·10<sup>3</sup> Бк, внешнее излучение источника – 1,32·10<sup>3</sup> с<sup>-1</sup>, равномерность внешнего излучения – не менее 80%.

Многослойный детектор устанавливался в центральной части источника, где фиксировался максимальный выход излучения. Плотность потока частиц в месте установки детектора контролировалась радиометром УИМ-2 и составила  $64,1 \text{ c}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ . Длительность экспозиции детектора выбиралась в интервале от 20 до 120 с, при этом количество треков, образующихся во втором слое детектора, изменялось от 300 до 2000, соответственно.

На рис. 3.12 представлены экспериментальные значения скорости образования треков в слоях детектора (количество зарегистрированных треков, деленное на длительность экспозиции детектора и нормированное на единицу площади). На рисунке показаны средние значения и максимальные отклонения от него, а также расчетные значения (пунктирная линия).

Как и следовало ожидать, отклик детектора сформировался только во втором слое. Число треков в остальных слоях лежит на уровне фона. В первом слое наблюдается некоторое превышение над фоном. Это обусловлено тем, что при высокой активности источника часть треков формируется в моменты монтажа и демонтажа детектора, при этом регистрируется излучение источника, частично ослабленное воздухом. Среднее значение чувствительности для второго слоя составило  $0,20 \pm 0,02$  трек/см<sup>2</sup> с на Бк/см<sup>2</sup>. Расчетное значение (0,19) лежит в пределах доверительных границ экспериментального среднего значения.



Рис. 3.12. Отклик детектора на воздействие источника <sup>239</sup>Ри

#### Объемный источник <sup>232</sup>Th

Для исследования отклика детектора на монопольное воздействие радионуклидов ториевой цепочки нами был специально приготовлен ториевый объемный источник путем размешивания ториевого концентрата в эпоксидной смоле. Источник был отлит в форме диска диаметром 85 мм и толщиной 3 мм. Средняя удельная активность <sup>232</sup>Th в источнике (по результатам измерений  $\gamma$ спектрометром) составила 5,06 Бк/г. Суммарный выход  $\alpha$ -излучения на внешней поверхности источника составил 15,5 с<sup>-1</sup>.

Для эпоксидной смолы аналогично стеклу (см. разд. 3.3) было проведено моделирование выхода излучения из объема вещества и взаимодействия со слоями детектора. Полученные значения в сравнении с результатами моделирования для стекла приведены в табл. 3.4.

На рис. 3.13 представлены результаты измерений, проведенных в разных точках на активной стороне ториевого источника. Длительность экспозиции детектора составляла от 3 до 5 ч. Разброс значений, полученных для каждого слоя в отдельности, может быть объяснен неравномерностью распределения тория в

пределах образца. Тем не менее, относительное распределение числа треков по слоям в пределах каждого конкретного измерения хорошо согласуется с расчетными значениями (с третьей колонкой в табл. 3.4). Полученные отношения числа треков в первом слое к числу треков в остальных слоях составили:  $N_1/N_2 = 1,31 \pm 0,12; N_1/N_3 = 3,70 \pm 0,22; N_1/N_4 = 7,47 \pm 0,98$ . Максимальный разброс значений получен для четвертого слоя, что обусловлено невысокой плотностью потока частиц, достигающих слой. По результатам измерений средняя удельная активность источника (суммарная по всем  $\alpha$ -излучающим радионуклидам) составила 83,3 Бк/г. Измерения, проведенные на обратной стороне источника, показали фоновые значения.

#### Таблица 3.4

Отклик детектора на воздействие излучения радионуклидов ториевой цепочки с

Номер	скорость образования треков, $cm^{-2}c^{-1}$			
слоя	эпоксидная смола	$N_1/N_i$	стекло	$N_1/N_i$
1	3,11.10 <sup>-4</sup>	1	3,30.10-4	1
2	$2,43 \cdot 10^{-4}$	1,28	$2,49 \cdot 10^{-4}$	1,33
3	$8,25 \cdot 10^{-5}$	3,77	$8,30 \cdot 10^{-5}$	3,98
4	$3,97 \cdot 10^{-5}$	7,83	3,93·10 <sup>-5</sup>	8,40

единичной удельной α-активностью (1 Бк/г) в разных веществах



Рис. 3.13. Отклик детектора на воздействие источника <sup>232</sup>Th

### Объемный источник <sup>238</sup>U + <sup>232</sup>Th

Для исследования отклика детектора на комбинированное воздействие радионуклидов урановой и ториевой цепочек были проведены измерения на природном минерале с относительно высоким содержанием этих элементов. В качестве такого объекта был выбран поделочный камень чароит, для которого характерны повышенные уровни радиоактивности, что обусловлено местом его происхождения. Измерения проводились на образце, имеющим форму пластины размером 60 х 90 мм и толщиной 4 мм с хорошо отшлифованными поверхностями.

По результатам  $\gamma$ -спектрометрического анализа содержание природных радионуклидов в минерале составило: <sup>40</sup>K – 2,62 кБк/кг, <sup>226</sup>Ra – 149 Бк/кг, <sup>238</sup>U – 74,4 Бк/кг, <sup>232</sup>Th – 57,1 Бк/кг. Соответственно, суммарная удельная активность минерала по  $\alpha$ -излучателям цепочек урана, радия и тория равна 1,33 Бк/г. От-клик детектора на совокупное воздействие  $\alpha$ -излучения с таким составом был рассчитан по методике, представленной в разд. 3.3. Результаты представлены в табл. 3.5.

Таблица 3.5

Номер слоя	Скорость образования треков, см <sup>-2</sup> с <sup>-1</sup>	N <sub>1</sub> /N <sub>i</sub>
1	$3,30 \cdot 10^{-4}$	1
2	$2,17 \cdot 10^{-4}$	1,52
3	$6,52 \cdot 10^{-5}$	5,05
4	$2,30 \cdot 10^{-5}$	14,4

Отклик детектора на воздействие излучения чароита с единичной

удельной активностью (1 Бк/г)

Многослойный детектор устанавливался на чароите на срок от 3 до 4 сут. Результаты измерений представлены на рис. 3.14. Как и следовало ожидать для природного образца, локальное распределение радионуклидов в минерале оказалось неоднородным как по абсолютному значению, так и по относительному содержанию урановой и ториевой цепочек. Тем не менее, средние значения от-

ношений числа треков в слоях находятся в хорошем соответствии с теоретическим расчетом:  $N_1/N_2 = 1,79 \pm 0,35$ ;  $N_1/N_3 = 6,67 \pm 2,61$ . Число треков в четвертом слое оказалось на уровне фоновых значений (по теоретическим оценкам – в 14 раз меньше, чем в первом слое) и на рисунке не представлено. Удельная  $\alpha$ активность чароита (усредненная по точкам измерения) составила 1,60 ± 0,49 Бк/г. Как видно, значение удельной активности, измеренное  $\gamma$ спектрометром, лежит в полученном доверительном интервале.



Рис. 3.14. Отклик детектора на воздействие чароита

### Поверхностный источник <sup>210</sup>Ро

Для воссоздания ситуации, близкой к реальным условиям использования многослойного детектора, в данной работе были специально получены стекла с поверхностно-имплантированным <sup>210</sup>Po. В герметичную камеру были помещены стеклянные пластины и источник <sup>226</sup>Ra. Механизм имплантации продуктов распада радона, образующихся в цепочке распада радия, аналогичен естественным процессам имплантации ДПР радона в стекло в помещениях.

В качестве стеклянных объектов использовались ядерные фотопластины с удаленным слоем фотоэмульсии, заведомо не содержащие в своем составе α-излучающих радионуклидов. Размер пластин – 60 х 90 х 3 мм. Активность радиевого источника – 5,18·10<sup>5</sup> Бк, коэффициент эманации радона из источника –

0,26. Камера имела форму цилиндра с диаметром основания 10 см и высотой 10,5 см. Срок экспонирования стекол в камере – 10 месяцев.

Для теоретической оценки активности накопленного в стеклах полония использовалась модель поведения радона и его ДПР в атмосфере. Отличием применения модели от ситуации в помещении является принятие нулевых значений для кратности воздухообмена и концентрации аэрозольных частиц, а также возможность точного вычисления соотношения S/V.

Динамика накопления <sup>210</sup>Ро в стекле представлена на рис. 3.15. Сплошной линией показана теоретически рассчитанная зависимость поверхностной активности полония от времени. Диапазон времени от нуля до обозначенного на рисунке момента А соответствует облучению стекол в камере. Начиная с момента А идет накопление полония за счет распада материнских ядер, осевших и имплантировавшихся во время нахождения в камере. Предполагается, что оседания новых радионуклидов не происходит (стекла хранятся в герметичной среде). В момент времени В была проведена очистка поверхностей у части стекол таким же образом, как это обычно делается в жилищах. Активность протертых стекол сразу упала, и далее накопление шло по другой закономерности, показанной на рисунке штриховой линией. При расчетах коэффициент очистки поверхностно-осевшей активности был принят равным 0,85.



Рис. 3.15. Динамика накопления полония в стеклах

Точками на рис. 3.15 обозначены экспериментально измеренные значения активности стекол. До момента очистки все стекла имели одинаковую поверхностную активность, после очистки активность стекол уменьшилась в полтора раза.

Как видно, экспериментальные точки повторяют ход расчетных кривых. Тем самым подтверждается правомерность использования модифицированной модели Якоби для описания поведения радона и его продуктов распада в атмосфере. Предлагаемое различными авторами значение 0,85 для коэффициента очистки поверхностной активности стекол также является достоверным. Кроме того, экспериментально подтвержден характер отклика многослойного детектора на воздействие приповерхностного <sup>210</sup>Ро. В качестве примера на рис. 3.16 представлены результаты измерения активности неочищенных стекол (473 день). Число треков во всех слоях, кроме второго, практически равно фоновым значениям [24]. Между количеством треков во втором слое и расчетной поверхностной активностью стекла наблюдается четкое соответствие.



Рис. 3.16. Отклик детектора на воздействие приповерхностного <sup>210</sup>Ро

## 3.6. Сличение детекторов с ирландскими ретроспективными детекторами

В период с декабря 2000 года по май 2001 года в Свердловской области в рамках международного научного сотрудничества был проведен комплекс ретроспективных измерений радона. Работы проводились Институтом промышленной экологии УрО РАН (Екатеринбург, Россия) совместно с Институтом ядерных наук "Винча" (Белград, Югославия) и Университетским колледжем Дублина UCD (Дублин, Ирландия).

В исследовании использовались ретроспективные детекторы, разработанные в UCD (CR-LR разностные детекторы). Детектор UCD состоит из двух трековых элементов – CR-39, регистрирующий все  $\alpha$ -излучение (диапазон энергий от 0,1 до 60 МэВ), и LR-115, имеющий узкий энергетический диапазон, в который не попадает излучение от <sup>210</sup>Po, и, соответственно, отклик материала пропорционален фоновому воздействию. В данном случае трековый элемент LR-115 в детекторе UCD в точности соответствует первому слою многослойного ретроспективного детектора.

Всего было проведено 30 измерений в жилых домах в следующих населенных пунктах: Сысерть, Щелкун, Двуреченск и Бобровский. Экспонированные детекторы отправлялись на обработку в Университетский колледж Дублина.

В 2003 году было принято решение провести дублирующее исследование с использованием разработанного многослойного детектора, осуществив, тем самым, интеркалибровку с детекторами UCD. В период с октября 2003 года по февраль 2004 года такое исследование было выполнено. Во время первого обследования все объекты с установленными на них детекторами фотографировались, и во втором обследовании детекторы устанавливались в тех же самых помещениях и на тех же самых объектах. Из 30 объектов повторить измерения удалось только на 12 – в некоторых помещениях объекты были выброшены или разрушены, в других не было получено согласия на проведение измерений. Как и в первом обследовании, параллельно с ретроспективными измерениями проводились мгновенные и интегральные измерения уровней радона. Итоги обследования 2001 года представлены в табл. 3.6, итоги обследования 2004 года – в табл. 3.7. В таблицах сведены результаты измерений текущей ОА радона интегрирующим методом и суммарное число треков, зарегистрированных в каждом трековом элементе ретроспективных детекторов. В предпоследних колонках показаны значения поверхностной активности имплантированного в стекло <sup>210</sup>Po, определенные ретроспективными детекторами, а в последних колонках – конечные результаты ретроспективной оценки ОА радона. Результаты ретроспективных оценок ОА радона, представленные в табл. 3.6, были получены в самом колледже UCD.

На рис. 3.17 приведено сравнение числа треков в материале LR-115 в разных типах детекторов, отнесенных ко времени экспонирования. Поскольку в обоих детекторах присутствует неэкранированный слой материала LR-115, то согласованность отклика этих слоев в разных детекторах подтверждает корректность и воспроизводимость измерений, соответствие условий обработки экспонированных материалов, а также то, что измерения проводятся на одних и тех же объектах. Только для одного объекта (SY-27) наблюдается отличие в 1,5 раза, для всех остальных разница не превышает 25%. Коэффициент корреляции составляет 0,89.

На рис. 3.18 представлено сравнение результатов оценок поверхностной активности <sup>210</sup>Ро разными детекторами. Существенное расхождение наблюдается только для объекта SY-13 (почти в два раза). Для остальных объектов различие также не превышает 25%. Если в результатах измерения фона многослойные детекторы показывали завышенные значения по сравнению с CR-LR разностным детектором, то в результатах оценки поверхностной активности <sup>210</sup>Ро – заниженные, что, в принципе, логично, так как фоновые значения вычитаются при оценке поверхностной активности. Коэффициент корреляции между результатами оценки поверхностной активности <sup>210</sup>Ро составляет 0,94.

Сопоставление результатов ретроспективных оценок ОА радона, проведенных на базе измерений двумя детекторами разного типа показано на рис. 3.19.
Номер	Возраст стекла, лет	Экспозиция, сут	ОА Rn, Бк/м <sup>3</sup>	CR, трек/см <sup>2</sup>	LR, трек/см <sup>2</sup>	А <sup>Ро</sup> , мкБк/см <sup>2</sup>	Оценка OA Rn, Бк/м <sup>3</sup>
SY-6	30	153	89	1909	144	447	142,2
SY-8	40	148	223	2302	238	521	167,4
SY-10	15	148	27	734	124	139	72,2
SY-11	40	141	51	1737	403	281	76,3
SY-13	80	88	92	1117	113	428	90,1
SY-18	50	85	145	1228	127	484	118,5
SY-19	50	85	249	1559	110	665	464,9
SY-21	22	83	70	731	99	272	302,8
SY-25	20	83	95	1430	321	404	172,7
SY-27	12	83	25	597	271	29,1	18,4
SY-31	20	83	36	607	103	204	75,1
SY-33	16	83	95	1143	209	371	161,2

Результаты обследования 2001 года (детектор UCD)

Таблица 3.7

Результаты обследования 2004 года (многослойный детектор)

Номер	Экспозиция, сут	OA Rn, Бк/м <sup>3</sup>	LR-1, трек/см <sup>2</sup>	LR-2, трек/см <sup>2</sup>	LR-3, трек/см <sup>2</sup>	А <sup>Ро</sup> , мкБк/см <sup>2</sup>	Оценка OA Rn, Бк/м <sup>3</sup>
SY-6	101	173	164	782	63	400	150,7
SY-8	101	309	240	954	78	473	155,0
SY-10	101	24	129	295	56	120	68,1
SY-11	101	24	389	610	91	225	73,8
SY-13	101	34	210	520	78	216	56,8
SY-18	101	151	226	889	82	432	129,4
SY-19	101	196	174	1015	72	528	352,5
SY-21	91	105	189	529	71	259	221,1
SY-25	91	84	497	810	99	353	167,4
SY-27	91	35	251	185	74	14,9	9,2
SY-31	91	20	144	351	60	163	77,3
SY-33	91	33	239	505	75	229	124,8



Рис. 3.17. Сравнение результатов измерения фона стекла (один слой LR-115)



Рис. 3.18. Сравнение результатов измерения поверхностной активности <sup>210</sup>Ро



Рис. 3.19. Сравнение результатов ретроспективной оценки ОА радона

При проведении ретроспективных оценок многослойным детектором учитывались такие параметры, как концентрация аэрозольных частиц в помещении, кратность воздухообмена и отношение S/V, оцененные непосредственно при проведении измерений. Для помещений SY-19 и SY-21 вследствие курения характерны высокие значения концентрации аэрозольных частиц, поэтому коэффициент перехода от измеренной поверхностной активности стекла к OA радона в воздухе для них максимален. Кроме того, учитывалось, что возраст стекол стал на 3 года больше значений, зафиксированных в первом исследовании. В целом, наблюдается очень хорошая сходимость результатов. Расхождение в результатах ретроспективных оценок не превышает 30%.

Поверхностная и удельная активности стекла рассчитывалась как по первым двум слоям детектора, так и по трем слоям. В табл. 3.8 представлено сравнение результатов. Как видно, расхождение оценок минимальное, и двухслойная конфигурация вполне применима для ретроспективной дозиметрии радона. Достоинством трехслойной конфигурации является дополнительный анализ содержания радионуклидов в стекле и меньшая погрешность результата.

Таблица 3.8

	Двухслойный		Трехслойный				
Номер	A <sup>Po</sup> ,	A <sub>m</sub>	A <sup>Po</sup> ,	A <sub>m</sub> <sup>U</sup> ,	$A_m^{Th}$ ,	A <sub>m</sub>	
	мкБк/см <sup>2</sup>	мБк/г	мкБк/см <sup>2</sup>	мБк/г	мБк/г	мБк/г	
SY-6	403	43,1	400	22,7	21,4	44,1	
SY-8	479	69,5	473	34,1	37,0	71,1	
SY-10	122	30,9	120	17,7	13,9	31,6	
SY-11	217	12,1	225	10,2	22,0	12,4	
SY-13	228	59,1	216	13,1	47,3	60,4	
SY-18	445	64,6	432	13,2	52,9	66,1	
SY-19	539	46,6	528	46,4	43,0	47,6	
SY-21	267	57,5	259	19,9	38,9	58,8	
SY-25	332	17,6	353	17,2	79,2	18,0	
SY-27	12,8	81,4	14,9	58,7	24,5	83,2	
SY-31	166	40,1	163	18,9	22,1	41,0	
SY-33	231	76,8	229	46,3	32,2	78,5	

Результаты оценок двухслойным и трехслойным детекторами

Комплекс теоретических расчетов и экспериментальных исследований, проведенных в третьей главе, напрямую доказывает *первое защищаемое по-ложение*: разработанный многослойный детектор на базе трекового материала LR-115 позволяет проводить совместные измерения поверхностной активности имплантированного в стекло <sup>210</sup>Ро и удельной активности радионуклидов природных рядов.

Результатами главы является следующее:

1. Проведено моделирование процессов прохождения  $\alpha$ -излучения через многослойный детектор для <sup>210</sup>Po, распределенного в приповерхностной области стекла, и для каждого изотопа цепочек распада урана и тория, распределенных в объеме стекла, а также для комплексного воздействия. Получены энергетические и угловые спектры распределения частиц, формируемые после прохождения стекла и каждого слоя детектора. Рассчитаны численные значения отклика детектора на воздействие  $\alpha$ -излучения для каждого варианта.

2. Получены уравнения, связывающие число треков, образуемых в слоях детектора, с поверхностной активностью <sup>210</sup>Ро в стекле и удельной активностью фоновых радионуклидов для двух-, трех- и четырехслойного детектора.

3. Созданы материалы, воспроизводящие приповерхностное содержание <sup>210</sup>Ро в стекле и объемное содержание <sup>232</sup>Th и его ДПР в органической среде, для тестирования и калибровки детектора.

4. Проведены лабораторные испытания многослойного детектора на образцовом источнике  $^{239}$ Pu, объемном источнике  $^{232}$ Th, природном уран-торий содержащем минерале и стеклах с поверхностно-имплантированным  $^{210}$ Po. Результаты всех измерений согласуются с расчетными значениями и результатами  $\gamma$ -спектрометрического и радиометрического анализа.

5. Проведена интеркалибровка многослойных детекторов с CR-LR разностными детекторами, разработанными в Университетском колледже Дублина, на базе комплекса полевых измерений в жилых помещениях Свердловской области. Несмотря на небольшой объем выборки, результаты полученных нами ретроспективных оценок подтверждаются независимым исследованием UCD.

## Средство измерения доли свободных продуктов распада радона в воздухе

Особая радиологическая значимость свободных продуктов распада радона отмечалась уже в самых ранних исследованиях, связанных с воздействием радона и его ДПР на организм человека. Уже в 1959 году Международная комиссия по радиологической защите (МКРЗ) ввела формулу для вычисления предельно допустимого уровня радона в воздухе, как функцию доли свободных ДПР радона [47]. Практически все последующие и современные дозиметрические модели, рассчитывающие легочную дозу при ингаляционном поступлении продуктов распада радона, подчеркивают исключительную важность этого параметра.

Место и степень отложения частиц в респираторном тракте напрямую зависит от их размера [46] (см. рис. 4.1). Бо́льшая часть частиц крупнее нескольких мкм осаждается в носовой области и верхней части дыхательных путей (отделы ET1, ET2), меньшие частицы проходят глубже, оседая в альвеолах (отдел AI).



Рис. 4.1. Осаждение частиц в отделах респираторного тракта [46]

Частицы нанометровых размеров представляют наибольшую опасность, так как организм не обладает эффективными механизмами их удаления из легких. Существует также предположение, что такие частицы могут проникнуть сквозь клеточную мембрану [44]. Дозовый коэффициент принимает максимальное значение именно для нанометровых частиц [49] (см. рис. 4.2).

В ретроспективном методе поверхностных ловушек доля свободных атомов также играет важную роль. Скорость оседания свободных продуктов распада радона на поверхностях помещения на один-два порядка выше скорости оседания аэрозольных частиц (см. разд. 2.1), и именно свободные атомы в значительной степени определяют рост имплантированной активности в стекле. Проведенный нами анализ чувствительности метода (см. разд. 5.1) показал, что неопределенность ретроспективной оценки в максимальной степени обусловлена неопределенностью концентрации аэрозольных частиц в помещении – параметра, напрямую определяющего долю свободных атомов.



Рис. 4.2. Доза на единицу экспозиции по скрытой энергии как функция термодинамического диаметра частицы [49]

Термин неприсоединенной или свободной фракции впервые ввели в использование А. Chamberlain и Е. Dyson в 1956 году при описании характера осаждения взвешенных в воздухе продуктов распада радона, не осевших на окружающих аэрозольных частицах, в модели трахеи человека [30]. Впоследствии, признание важности этого параметра научной общественностью привело к развитию техники измерения доли свободных атомов. Основной принцип измерения заключается в физическом отделении кластера от аэрозольной фракции. Методы такого разделения чаще всего основаны на диффузионных свойствах свободных продуктов распада радона. Из-за своего малого размера неприсоединенные ДПР радона обладают большей диффузивностью по сравнению с аэрозольными частицами и в большей степени диффузионного осаждения свободных атомов применяют различные геометрии собирающих устройств, называемых диффузионными батареями.

Самыми распространенными, благодаря портативности и простоте использования, стали диффузионные батареи экранного типа [89, 61]. Собирающее устройство такой батареи представляет собой мелкую проволочную сетку, на которой в основном и оседают свободные атомы, и задний фильтр, собирающий все прошедшие через сетку продукты распада радона. Для измерения распределения свободных продуктов распада радона по размеру частиц последовательно устанавливают несколько разных сеток с различным шагом проволоки, а для определения интегральной характеристики (доли свободных атомов) достаточно одной. В некоторых работах диффузионной батарее дают название "бронхиального дозиметра" [91] или "эффективного дозиметра" [80].

#### 4.1. Материалы и методы

В данной работе диффузионная батарея экранного типа была создана на базе серийно выпускаемого прибора – радонового монитора RAMON-01. Прибор RAMON-01 предназначен для экспрессного определения объемной активности радона <sup>222</sup>Rn, торона <sup>220</sup>Rn, величины скрытой энергии ДПР радона и то-

79

рона, объемной активности ДПР, эквивалентной равновесной объемной активности радона и торона в воздухе помещений и на открытой местности аспирационным методом. Для регистрации  $\alpha$ -излучения используется полупроводниковый кремниевый детектор с p-n переходом площадью 20 см<sup>2</sup> и эффективностью регистрации (по результатам поверки)  $\varepsilon_{\phi} = 0,34$ . Отбор проб воздуха осуществляется с помощью встроенного воздухозаборного устройства, в котором устанавливаются стандартные аэрозольные фильтры типа АФА-РСП-20 (эффективность сбора аэрозолей  $\eta_{\phi} = 0,95$ ). Скорость прокачки воздуха составляет 30 л/мин.

Для измерения доли свободных продуктов распада радона отбор проб воздуха проводился через диффузионную батарею (см. рис. 4.3), крепящуюся к воздухозаборному устройству прибора RAMON-01, и состоящую из последовательно установленных экрана и фильтра [2, 8].

Материал экрана выбирался экспериментально из нескольких десятков различных синтетических, тканых и металлических сетчатых материалов. Максимальная эффективность сбора свободных продуктов распада радона была получена для латунной сетки с ячеистостью 200 меш (число отверстий на линейный дюйм), которая использовалась во всех последующих измерениях.

Экспериментальные исследования характеристик диффузионной батареи проводились по схемам, показанным на рис. 4.4. Пробоотбор воздуха осуществлялся из лабораторного бокса с высокой объемной активностью радона (до 2 кБк/м<sup>3</sup>).

Для определения эффективности сбора свободных атомов ДПР радона экраном перед фильтром последовательно устанавливались три одинаковых сетки (см. рис. 4.4, а). Из соотношения активностей, собираемых на соседних экранах, определяется коэффициент проскока:

$$H = \frac{A_2}{A_1} \approx \frac{A_3}{A_2}, \qquad (4.1)$$

где A<sub>i</sub> – активность i-го экрана, измеренная после прокачки воздуха через систему.

Эффективность экрана связана с коэффициентом проскока соотношением:  $\eta_3 = 1 - H$ . По результатам серии измерений эффективность экрана была определена равной  $\eta_3 = 0,860 \pm 0,018$ .

При прокачке воздуха через экран свободные продукты распада радона оседают как на фронтальную поверхность экрана, так и на боковые участки проволоки. Поэтому эффективность регистрации  $\alpha$ -излучения, испускаемого частицами, осевшими на экран ( $\varepsilon_{9}$ ), отличается от соответствующего аттестованного значения для фильтра ( $\varepsilon_{\phi}$ ). Для экспериментального определения этого значения, пробоотбор воздуха производился параллельно двумя приборами RAMON-01 (см. рис. 4.4, б), на одном из которых была установлена диффузионная батарея, а второй выполнял обычное измерение ОА радона.



Рис. 4.3. Структура диффузионной батареи



Рис. 4.4. Схемы экспериментальных исследований диффузионной батареи

Активности, собираемые на экране А<sub>э</sub> и фильтре А<sub>ф</sub> диффузионной батареи, связаны с активностью открытого фильтра А<sub>оф</sub> соотношением:

$$\frac{A_{\mathfrak{H}}}{\varepsilon_{\mathfrak{H}}} + \frac{A_{\mathfrak{H}}}{\varepsilon_{\mathfrak{H}}} = \frac{A_{\mathfrak{H}}}{\varepsilon_{\mathfrak{H}}}, \qquad (4.2)$$

поэтому эффективность регистрации излучения экрана равна

$$\varepsilon_{\mathfrak{H}} = \frac{A_{\mathfrak{H}} \cdot \varepsilon_{\mathfrak{H}}}{A_{\mathfrak{h}\mathfrak{H}} - A_{\mathfrak{H}}}.$$
(4.3)

По результатам комплекса измерений эффективность регистрации излучения экрана составила  $\varepsilon_9 = 0,188 \pm 0,012$ .

Для подтверждения того, что на экран оседают только свободные продукта распада радона, был проведен эксперимент в атмосфере с высоким содержанием аэрозольных частиц. Для этого лабораторный бокс был наполнен сигаретным дымом (см. рис. 4.4, в). При этом собираемая на экране активность снизилась до предела обнаружения прибором, показания которого приняли нулевые значения.

Все измерения проводились по методу Кузнеца [13] в следующем режиме: прокачка воздуха – 10 мин, выдержка – 40 мин, измерение активности фильтра и экрана – по 10 мин.

#### 4.2. Расчет характеристик диффузионной батареи

Коэффициент диффузии частицы размером d задается уравнением Эйнштейна [43]:

$$D = \frac{kTC_{c}(d)}{3\pi\mu d},$$
(4.4)

где k – постоянная Больцмана (1,38·10<sup>-16</sup> эрг/К); Т – температура, °К; µ – вязкость газа (1,83·10<sup>-4</sup> г/см·с для воздуха); С<sub>с</sub> – корректирующий коэффициент Каннингхэма:

$$C_{c} = 1 + \frac{\lambda}{d} \left( 2,429 + 0,84 \exp\left(-0,43\frac{d}{\lambda}\right) \right)$$

$$(4.5)$$

где  $\lambda$  – средний свободный пробег в газе (6,53·10<sup>-6</sup> см для воздуха при 20°С).

В работе [92] разработана теория фильтрации, связывающая проницаемостные характеристики диффузионной батареи с параметрами сетки и скоростью потока воздуха. Проницаемость экрана Р описывается следующим полуэмпирическим уравнением:

$$P = \exp\left(-n\frac{4\alpha b_n}{\pi(1-\alpha)d_f}\varepsilon\right)$$
(4.6)

где n – количество экранов; b<sub>n</sub> – толщина экрана; d<sub>f</sub> – диаметр проволоки экрана;  $\alpha = 4 m_n / \pi d_n^2 b_n \rho_f$  – доля твердого объема; m<sub>n</sub> – масса экрана; d<sub>n</sub> – диаметр экрана;  $\rho_f$  – характерная плотность материала экрана.

Эффективность сбора частиц отдельным волокном (є) выражается через сумму эффективностей разных процессов удаления частиц из потока: диффузии (є<sub>D</sub>), задерживания (є<sub>IN</sub>), соударения (є<sub>IM</sub>) и диффузионного задерживания (є<sub>ID</sub>). Согласно теории фильтрации:

$$\varepsilon_{\rm D} = 2,7 \,{\rm Pe}^{-2/3},$$
(4.7)

$$\varepsilon_{\rm IN} = (2 \cdot \kappa)^{-1} f(\mathbf{R}), \tag{4.8}$$

$$\varepsilon_{\rm IM} = (2 \cdot \kappa)^{-2} \, \mathrm{I} \, \mathrm{St} \,, \tag{4.9}$$

$$\varepsilon_{\rm ID} = 1,24 (\kappa \cdot {\rm Pe})^{-1/2} {\rm R}^{2/3}.$$
 (4.10)

В приведенных выше формулах буквенными обозначениями заменены следующие выражения:

$$f(R) = (1+R)^{-1} - (1+R) + 2(1+R)\ln(1+R), \qquad (4.11)$$

$$\mathbf{I} = (29, 6 - 28 \,\alpha^{0, 62}) \cdot \mathbf{R}^2 - 27, 5 \,\mathbf{R}^{2, 8}, \tag{4.12}$$

$$\kappa = -0.5 \ln\left(\frac{2\alpha}{\pi}\right) + \frac{2\alpha}{\pi} - 0.75 - \left(\frac{\alpha}{\pi}\right)^2,\tag{4.13}$$

$$Pe = \frac{d_f v_0}{D}$$
(число Пеклета), (4.14)

$$St = \frac{\rho_p d^2 v_0 C_c}{9 \mu d_f}$$
(число Стокса), (4.15)

где R = d / d<sub>f</sub> – параметр захвата; v<sub>0</sub> – линейная скорость потока воздуха;  $\rho_p$  – плотность частиц.

Геометрические характеристики проволочной сетки определялись с помощью оптического микроскопа МИН-8, элементный состав материала проволоки – рентгено-флуоресцентным анализом.

Функция проницаемости экрана, рассчитанная по формулам (4.4) – (4.15), представлена на рис. 4.5 [2]. Функция проницаемости экрана может принимать значения от 0 до 1. Меньшие значения проницаемости соответствуют большей степени собирания частиц на стенках сетки. Размер частицы, для которой проницаемость экрана составляет 0,5, называется диаметром отсечки. Для используемого материала диаметр отсечки составил  $d_{50} = 1,92$  нм.

Для неприсоединенных продуктов распада радона измерение распределения активности по размеру частиц в реальных атмосферных условиях и уровнях активности является весьма затруднительным. Поэтому при численных оценках принимается постоянное логнормальное распределение с  $AMD_u = 0,8$  нм и  $\sigma_{gu} = 1,3$  для любых атмосферных условий [69]. Эффективность задержки экраном потока частиц с таким распределением можно найти из кривой проницаемости интегрированием по всему спектру размеров частиц:



Рис. 4.5. Зависимость проницаемости экрана от размера проходящей частицы

$$\eta = \int f(d, AMD, \sigma_g) \cdot (1 - P(d)) \cdot \partial d =$$

$$= \int \frac{1 - P(d)}{\lg \sigma_g \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{\lg d - \lg AMD}{\lg \sigma_g}\right)^2\right) \partial d \qquad (4.16)$$

Расчетное значение эффективности экрана составило 0,875 и лежит в пределах доверительных границ экспериментально полученного значения.

#### 4.3. Результаты полевых измерений

В период с 2001 по 2003 годы было проведено около 200 измерений в 50 помещениях разного типа Екатеринбурга и Свердловской области. Основные результаты представлены в табл. 4.1.

Параллельно с долей свободных атомов проводились инспекционные измерения ЭРОА радона, индивидуальных ОА короткоживущих продуктов распада радона, а также проводилось определение сдвига равновесия F по штатному алгоритму, заложенному в прибор RAMON-01 (по сдвигу равновесия между отдельными ДПР радона). Кроме того, фиксировались характеристики окружающей среды: температура внутри и вне помещения, влажность в помещении, давление и проводились интегральные измерения ОА радона трековыми экспозиметрами.

Таблица 4.1.

Тип помещения	ЭРОА радо	на С <sub>еq</sub> , Бк/м <sup>3</sup>	Свободная фракция f <sub>p</sub> , %		
тип помещения	диапазон	среднее	диапазон	среднее	
офисы с курением	1,2 ÷ 13,1	5,1	0 ÷11,3	3,4	
офисы без курения	$0,8 \div 34,5$	10,9	1,9 ÷ 22,6	7,2	
детские сады	2,0 ÷ 23,7	10,7	2,9 ÷ 16,6	7,5	
городские квартиры	$1,0 \div 29,9$	6,6	0 ÷ 21,3	7,5	
сельские дома	2,9 ÷ 208	70,6	$1,3 \div 20,7$	9,6	

#### Результаты измерений ЭРОА радона и доли свободных атомов

На каждое помещение составлялась типовая регистрационная карта, в которую вносились данные о типе, возрасте и этажности здания, материале конструкций и покрытий, количестве и возрасте жильцов, курении в помещении и наличии других источников аэрозольных частиц и прочее (общий вид карты представлен в приложении). В 2003 году также проводились ретроспективные оценки объемной активности радона.

Как и следовало ожидать, минимальное значение доли свободных атомов соответствует офисным помещениям, в которых разрешено курение. При этом нулевые значения доли свободных атомов соответствуют измерениям, которые проводились вскоре после курения. Максимальное значение соответствует дню, когда в помещении никто не курил.

В целом, частотное распределение доли свободных атомов удовлетворительно описывается логнормальным распределением с геометрическим средним 0,062 и геометрическим стандартным отклонением 1,94 (см. рис. 4.6) [3]. При анализе неопределенности модели поведения продуктов распада радона это распределение использовалось, как характерное для жилых и общественных помещений Екатеринбурга и Свердловской области при моделировании случайных вариаций концентрации аэрозольных частиц (см. разд. 5.2).



Рис. 4.6. Частотное распределение доли свободных продуктов распада радона (по результатам 200 экспериментальных измерений)

Одной из задач исследования было изучение влияния атмосферных условий на уровни радона и долю свободных атомов. Для этого были рассчитаны коэффициенты корреляции среди всех наборов данных. Значимой корреляции не было обнаружено ни для одного из параметров [23]. Стоит отметить, что в работе [53], стояла аналогичная задача, но в комплексе более 7000 измерений корреляции между уровнями радона и торона и атмосферными условиями также не было получено.

Единственный значимый уровень коэффициента корреляции был получен для доли свободных атомов и сдвига равновесия – 0,38. На рис. 4.7 отложены экспериментально полученные точки, функциональная зависимость аппроксимированная прямой:  $F = 0,55 - 1,02 \cdot f_p$ .

Взаимосвязь сдвига равновесия и доли свободных атомов для экспериментально полученного закона распределения  $f_p$  была промоделирована методом Монте-Карло. Для этого в модели поведения радона и его ДПР в помещении каждому варьируемому параметру (Z, v<sup>j</sup><sub>i</sub>,  $\lambda_v$ , S/V) присваивалось случайное значение из вероятного диапазона (см. табл. 5.3) и вычислялась доля активности, приходящаяся на свободные ДПР, и сдвиг равновесия между ними. Полученная в результате 2000 итераций зависимость представлена на рис. 4.8.

Теоретический набор точек в точности соответствует экспериментально полученным данным, аппроксимирующая прямая имеет вид:  $F = 0,54 - 0,94 \cdot f_p$ . Параметры прямой практически не отличаются от экспериментальной зависимости.

В работах [84, 87] также проводились параллельные измерения параметров F и f<sub>p</sub> в лабораторных условиях и в жилых помещениях. При этом были получены аналогичные закономерности (см. рис. 4.9). Набор экспериментальных точек работы [84] внешне схож с данными на рис. 4.7, а для доли свободных атомов и сдвига равновесия также были получены логнормальные распределения.



Рис. 4.7. Экспериментальная взаимосвязь равновесия и свободной фракции



Рис 4.8. Расчетная взаимосвязь равновесия и свободной фракции



Рис. 4.9. Связь равновесия и свободной фракции, полученная в [84]

Четвертая глава диссертационной работы посвящена методу определения доли свободных продуктов распада радона в атмосфере. В ходе работы сделано следующее:

1. На базе серийно выпускаемого прибора RAMON-01, предназначенного для измерения ОА и ЭРОА радона аспирационным способом, создано средство измерения доли свободных продуктов распада радона по типу диффузионной батареи экранного типа.

2. Проведен комплекс испытаний различных материалов экрана диффузионной батареи и выбран материал, наиболее эффективно собирающий свободные продукты распада радона.

3. Выполнены лабораторные исследования параметров диффузионной батареи и определены метрологические характеристики устройства.

4. Проведен теоретический расчет проницаемостных характеристик диффузионной батареи, результаты расчета согласуются с экспериментом.

5. Проведен комплекс полевых измерений доли свободных атомов в помещениях Екатеринбурга и Свердловской области (всего около 200 измерений в 50 помещениях разного типа). Полученное частотное распределение доли свободных продуктов распада радона описывается логнормальным законом.

6. Анализ взаимосвязи доли свободных продуктов распада радона с различными факторами выявил значимую корреляцию со сдвигом равновесия и курением в помещении, взаимосвязь с другими внешними факторами не обнаружена. Результаты численного моделирования подтвердили экспериментально полученную зависимость между долей свободных атомов и сдвигом равновесия.

# Анализ неопределенности метода ретроспективной оценки объемной активности радона в помещении

#### 5.1. Анализ чувствительности модели к вариации параметров

Модель поведения продуктов распада радона в помещении позволяет осуществить переход от измеренной поверхностной активности стеклянного объекта к средней объемной активности радона в атмосфере, в которой находился этот объект. Алгоритм перехода может заключаться в простом расчете системы дифференциальных уравнений модели. Однако точность оценки ОА радона напрямую зависит от неопределенности параметров модели. Значения некоторых параметров определены с малой погрешностью и характерны для любого помещения, в то время как другие могут изменяться в широких диапазонах и напрямую зависеть от конкретного помещения. Средние значения и диапазоны изменения параметров модели приведены в табл. 5.1 (для помещения без дополнительных источников аэрозолей).

На рис. 5.1 показана динамика накопления <sup>210</sup>Ро в стекле, рассчитанная для средних (или наиболее вероятных) значений коэффициентов модели и при крайних значениях, способствующих более интенсивному оседанию частиц на поверхностях (верхняя кривая) и слабому оседанию (нижняя кривая). Ход кривых накопления описывается экспоненциальным законом с показателем экспоненты, пропорциональным константе распада <sup>210</sup>Pb (самого долгоживущего радионуклида в цепочке распада радона):

$$A_{S}^{Po}(t) = k \cdot C_{0} \cdot (1 - \exp(-\lambda_{4} \cdot T)), \qquad (5.1)$$

где k – коэффициент пропорциональности, равный при средних значениях коэффициентов модели 4,09 мкБк·см<sup>-2</sup>/Бк·м<sup>-3</sup> (для стандартного режима оседания, см. рис. 5.1). Верхней кривой накопления (интенсивное оседание) соответствует коэффициент, равный 11,5 мкБк·см<sup>-2</sup>/Бк·м<sup>-3</sup>, а нижней кривой (слабое оседание) – 1,24 мкБк·см<sup>-2</sup>/Бк·м<sup>-3</sup>. Таким образом, разброс ретроспективной оценки ОА радона может достигать одного порядка.



Рис. 5.1. Динамика накопления <sup>210</sup>Ро в стекле

Таблица 5.1

### Параметры модели и диапазоны их изменения

Параметр	МИН.	средн.	макс.
концентрация аэрозолей (Z, см <sup>-3</sup> )	2000	10000	30000
скорость оседания свободного $^{218}$ Ро ( $v_{d1}^{u}$ , м/ч)	1	3	5
скорость оседания свободных $^{214}$ Pb, $^{214}$ Po ( $v_{d2,3}^{u}$ , м/ч)	0,2	0,43	0,7
скорость оседания аэрозолей $^{218}$ Ро ( $v_{d1}^{a}$ , м/ч)	0,2	0,3	0,5
скорость оседания аэрозолей $^{214}$ Pb, $^{214}$ Po ( $v_{d2,3}^{a}$ , м/ч)	0,02	0,04	0,07
кратность воздухообмена ( $\lambda_{v}$ , ч <sup>-1</sup> )	0,2	0,5	3,0
отношение площади к объему (S/V, м <sup>-1</sup> )	3	5	7
коэффициент присоединения к аэрозолям (β, см <sup>3</sup> /ч)		$4,7.10^{-3}$	
коэффициент десорбции с аэрозолей при $\alpha$ -распаде ( $p_{\alpha}$ )		0,83	
коэффициент десорбции с аэрозолей при β-распаде (р <sub>β</sub> )		0,01	
коэффициент имплантации свободных ДПР в стекло ( $p_{in}^{si}$	u 1)	0,46	
коэффициент имплантации аэрозольных ДПР в стекло ()	p <sub>in</sub> <sup>sa</sup> )	0,23	
коэффициент обратного вылета из стекла (p <sub>out</sub> )		0,27	
коэффициент очистки поверхности стекла (p <sub>c</sub> )		0,85	

На начальном участке кривой сказывается неравновесное состояние других долгоживущих членов цепочки распада радона, и функция накопления не описывается формулой (5.1). При T >>  $\lambda_5$ ,  $\lambda_6$  эти радионуклиды выходят в равновесие. Минимальный латентный период формирования рака легких составляет 5 лет, и, соответственно, эта величина является минимальным возрастом стекла, которое целесообразно использовать при ретроспективных оценках (обычно выбираются стеклянные объекты в возрасте от 20 лет). Для такого интервала времени формула (5.1) является справедливой.

Из рис. 5.1 видно, что за 80 лет активность полония в стекле выходит в равновесие с внешней объемной активностью радона, и этот возраст является верхней границей при выборе объекта для ретроспективной оценки ОА радона в помещении.

Для оценки чувствительности модели к изменению каждого параметра было проведено индивидуальное независимое варьирование параметров с фиксированием остальных коэффициентов. Коэффициент чувствительности определялся как  $S = (1 - C_{0.min} / C_{0.max})$ , где  $C_{0.min}$  и  $C_{0.max}$  – минимальное и максимальное оцененное по модели значение объемной активности радона в диапазоне изменения данного параметра.

Значение коэффициента чувствительности лежит в диапазоне от 0 до 1, и чем меньше это значение, тем менее критична модель к изменению конкретного параметра. На рис. 5.2 - 5.5 показана зависимость оценки модели от каждого из варьируемых параметров. Возраст стекла принимался равным 20 годам, поверхностная активность <sup>210</sup>Ро принималась равной 0,1 мБк/см<sup>2</sup>. Сам возраст стекла тоже является источником неопределенности, так как в некоторых случаях бывает невозможно его установить с точностью, лучше чем  $\pm 2$  года, поэтому для этого параметра было также проведено варьирование. Из рисунков видно, что наиболее значимое влияние на модель оказывают концентрация аэрозольных частиц, скорость оседания свободных атомов <sup>218</sup>Ро и кратность воздухообмена. Частично это обусловлено тем, что диапазоны возможных значений для этих параметров существенно шире, чем для других.



Рис. 5.2. Зависимость ретроспективной оценки ОА радона от концентрации аэрозольных частиц в помещении и возраста стекла



Рис. 5.3. Зависимости ретроспективной оценки ОА радона от кратности воздухообмена и отношения площади поверхностей в помещении к объему воздуха



Рис. 5.4. Зависимости ретроспективной оценки ОА радона от скорости оседания свободных продуктов распада радона



Рис. 5.5. Зависимости ретроспективной оценки ОА радона от скорости оседания присоединенных продуктов распада радона

Стоит отметить, что использованные значения для концентрации аэрозольных частиц в воздухе соответствуют помещениям без крупных источников аэрозольных частиц. Реальный разброс значений может быть значительно больше, поэтому этот параметр является глобально доминирующим в модели.

Законы изменения оценки объемной активности радона при варьировании параметров описываются следующими функциями:

$$f_1(Z) = 2,47 \cdot Z^{0,331}, \tag{5.2}$$

$$f_2(\lambda_v) = 47, 1+7, 58 \cdot \lambda_v^{0,686}, \tag{5.3}$$

$$f_3(S/V) = 38,6 + 2,64 \cdot S/V,$$
 (5.4)

$$f_4\left(v_{d1}^{u}\right) = -134 + 212 \cdot \left(v_{d1}^{u}\right)^{-0,114},$$
(5.5)

$$f_5(v_{d2}^u) = 37,0 + 18,4 \cdot \exp(-0,505 \cdot v_{d2}^u),$$
 (5.6)

$$f_6(v_{d1}^a) = 36,6 + 23,5 \cdot \exp(-1,44 \cdot v_{d1}^a),$$
 (5.7)

$$f_7(v_{d2}^a) = 37,4 + 23,7 \cdot \exp(-12,4 \cdot v_{d2}^a).$$
 (5.8)

Эти функции позволяют упростить алгоритм перехода к ОА радона и заменяют расчет системы уравнений модели (2.4) – (2.40) унифицированным уравнением (2.41), рассчитанным при средних параметрах модели, с возможностью скорректировать значения любых необходимых параметров:

94

$$C_0 = \frac{245 \cdot A_S^{Po}}{1 - \exp(-\lambda_4 \cdot T)} \cdot \prod_i \frac{f_i(p_i)}{f_i(\overline{p_i})},$$
(5.9)

где  $f_i - \phi$ ункция изменения ретроспективной оценки при варьировании параметра i,  $\overline{p_i}$  – среднее значение параметра i (см. табл. 5.1),  $p_i$  – значение параметра i, более адекватно характеризующее конкретные условия в помещении.

В большинстве реальных жилых помещений такие параметры, как отношение площади к объему и кратность воздухообмена подвержены слабым изменениям и ограничены узким диапазоном. Во время проведения измерений в помещении всегда можно провести грубую оценку этих параметров в соответствии с классификацией: высокий, средний, низкий уровень. Измерение доли свободных атомов в воздухе позволяет сделать косвенную оценку концентрации аэрозольных частиц, что также существенно снижает неопределенность ретроспективной оценки ОА радона.

На рис. 5.6 представлены результаты совместных вычислений ОА радона по формуле (5.9) (ось абсцисс) и при полном решении системы уравнение модели (ось ординат) при случайном варьировании методом Монте-Карло всех коэффициентов, входящих в уравнения (5.2) – (5.8). Погрешность, возникающая при ретроспективной оценке с использованием формулы (5.9), не превышает 10%.



Рис. 5.6. Разброс ретроспективной оценки при использовании формулы (5.9)

Чувствительность модели к неварьируемым коэффициентам была также изучена аналогичным образом. Хотя значения большинства коэффициентов достоверно определены, коэффициент чувствительности модели рассчитывался при вариации их величин в пределах  $\pm 10\%$ . Результаты всех проведенных вариаций, ранжированные по степени влияния на конечную оценку, приведены в табл. 5.2.

Таблица 5.2

Коэффициент	минимум	основное значение	максимум	S
Z, cm <sup>-3</sup>	2000	10000	30000	0,580
$v_{d1}^{u}$ , м/ч	1	3	5	0,465
$\lambda_{v},  \mathbf{y}^{-1}$	0,2	0,5	3,0	0,197
S/V, м <sup>-1</sup>	3	5	7	0,183
v <sub>d2,3</sub> , м/ч	0,02	0,04	0,07	0,142
Т, лет	18	20	22	0,138
v <sub>d1</sub> <sup>a</sup> , м/ч	0,2	0,3	0,5	0,115
v <sup>u</sup> <sub>d2,3</sub> , м/ч	0,2	0,43	0,7	0,071
Коэффициент	-10%	Значение	+10%	S
p <sub>c</sub>	0,77	0,85	0,94	0,157
β, cm <sup>3</sup> /ч	$4,23 \cdot 10^{-3}$	$4,7 \cdot 10^{-3}$	$5,17 \cdot 10^{-3}$	0,069
$p_{in2}^{su}$	0,41	0,46	0,50	0,063
$p_{\alpha}$	0,75	0,83	0,91	0,040
p <sub>out</sub>	0,24	0,27	0,3	0,025
p <sup>su</sup> <sub>in1</sub>	0,41	0,46	0,50	0,020
$p_{in2}^{sa}$	0,21	0,23	0,25	0,014
$p_{in1}^{sa}$	0,21	0,23	0,25	0,002

Чувствительность модели к вариации параметров

Среди неварьируемых коэффициентов модели значимый коэффициент чувствительности был получен только для коэффициента очистки p<sub>c</sub>. Кроме того, этот коэффициент оценен с наибольшей степенью неопределенности. Изменение оценки ОА радона при варьировании коэффициента очистки подчиняется следующей зависимости:

$$f_8(p_c) = \frac{100}{3,51+1,86 \cdot p_c}.$$
(5.10)

#### 5.2. Влияние вариаций объемной активности радона

Величина объемной активности радона в воздухе помещения подвержена постоянным колебаниям и изменениям. Краткосрочные вариации, как, например, характерное увеличение ОА радона ночью за счет отсутствия активной деятельности в помещении, закрывании дверей и прочее, равно как снижение ОА радона днем за счет обратных процессов, не окажут влияния на величину поверхностной активности имплантированного в стекло <sup>210</sup>Ро. Однако в ряде случаев могут наблюдаться долгосрочные, либо скачкообразные изменения средней объемной активности радона, которые приведут к несоответствию накопленной в стекле активности <sup>210</sup>Ро средней ОА радона в помещении.

Систематическое снижение средней ОА радона может происходить естественным путем при элиминировании путей поступления радона в помещение за счет герметизации, уплотнения и забивания щелей и пор в процессе жизнедеятельности человека. Рост средней ОА радона может быть обусловлен обратными причинами – появлением новых трещин, старением здания, разгерметизации. Скачкообразное изменение среднего значения ОА радона может произойти вследствие глобальных изменений или переделок в здании. Например, бетонирование пола в подвале приведет к резкому снижению ОА радона на близких этажах, а перепланировка жилища напротив может открыть новые пути поступления радона.

На рис. 5.7 представлена динамика накопления полония в стекле за 20 лет (сплошная линия) при постоянной ОА радона равной 100 Бк/м<sup>3</sup> (пунктирная

линия). На рис. 5.8, 5.9 воспроизведены различные сценарии изменения ОА радона, описанные выше, и рассчитаны соответствующие кривые накопления. На графиках также записаны конечные значения поверхностной активности <sup>210</sup>Ро после пребывания стекла в помещении в течение 20 лет.



Рис. 5.7. Накопление <sup>210</sup>Ро в стекле при постоянной ОА радона







Рис. 5.9. Накопление <sup>210</sup>Ро в стекле при скачкообразном изменении ОА радона

Если в помещении наблюдаются тенденции к уменьшению ОА радона, то ретроспективная оценка объемной активности, усредненной за весь период существования стеклянного объекта, может оказаться заниженной, и наоборот. В рассмотренных случаях расхождение оцененного по имплантированному в стекло <sup>210</sup>Ро значения ОА радона в помещении и реальной средней ОА радона не превышает 7%.

### 5.3. Вероятностный анализ модели

Для оценки общей неопределенности модели был проведен вероятностный анализ методом Монте-Карло. Каждому коэффициенту модели присваивалось случайное значение из диапазона его изменения и в соответствии с характерной для коэффициента плотностью распределения вероятности. Этим имитировался некоторый из возможных типов помещения и атмосфера в нем. Для каждого набора случайных коэффициентов рассчитывалось соотношение между активностью имплантированного в стекло<sup>210</sup>Ро и ОА радона в помещении, и в результате многократного повторения процесса (10<sup>5</sup> итераций) была получена плотность распределения вероятности для ретроспективно оцениваемой объемной активности радона.

Для коэффициентов, описывающих физические процессы, характерным является распределение по логнормальному закону. При моделировании параметры распределений выбирались таким образом, чтобы частотное распределение лежало в диапазоне изменения конкретного коэффициента, а границы распределения (на уровне 10% от высоты пика) соответствовали минимальному и максимальному значению диапазона (см. табл. 5.1).

Отношение площади к объему S/V зависит от размеров помещения и от обстановки в нем, и принципиально может равновероятно иметь любое значение. Для этого параметра использовалось равномерная функция распределения во всем диапазоне изменения. Для возраста стекла, определяемого со слов хозяина жилища, который может в равной мере завысить или занизить его значение, задавалось нормальное распределение вероятности. Данные по всем вход-

ным распределениям представлены в табл. 5.3 (для концентрации аэрозольных частиц был задан весь вероятный диапазон, включающий возможное наличие дополнительных источников аэрозолей, см. разд. 2.1).

Результирующее распределение ОА радона представлено на рис. 5.10 (для возраста стекла 20 лет и поверхностной активности <sup>210</sup>Po 0,1 мБк/см<sup>2</sup>) и имеет вид нормального распределения со средним значением 85,9 Бк/м<sup>3</sup> и стандартным отклонением 28,8. Доверительный диапазон оценки ОА радона находится в интервале от 41,7 до 135 Бк/м<sup>3</sup> (от 5%-ной процентили до 95%-ной процентили), при этом погрешность оценки достигает ±60%.

На практике, частотное распределение концентрации аэрозольных частиц, характерное для помещений, в которых проводятся исследования, можно получить из комплекса измерений доли свободных продуктов распада радона в воздухе этих помещений.

Таблица 5.3

Коэффициент	Вид распределения	Параметры ра	Параметры распределения		
	логнормальное	$\mu_{g}$	$\sigma_{\rm g}$		
Z, cm <sup>-3</sup>		$2,79 \cdot 10^4$	3,42		
$v_{d1}^u$ , м/ч		2,24	1,46		
v <sup>u</sup> <sub>d2,3</sub> , м/ч		0,37	1,34		
$v_{d1}^a$ , м/ч		0,32	1,24		
v <sub>d2,3</sub> , м/ч		0,037	1,34		
$\lambda_{ m v},{ m y}^{-1}$		0,77	1,88		
	нормальное	μ	σ		
возраст стекла, лет		20	0,93		
	равномерное	МИН.	макс.		
$S/V, m^{-1}$		3	7		

Параметры входных распределений вероятностей



Рис. 5.10. Результирующее распределение вероятности для ОА радона

Исходя из данных по экспериментальным измерениям доли свободных атомов, проведенных в жилых и общественных помещениях Екатеринбурга и Свердловской области (см. разд. 3), используя полуэмпирическую формулу, связывающую долю свободных атомов и концентрацию аэрозольных частиц в воздухе (2.3), было получено частотное распределение для концентрации аэрозолей, описываемое логнормальным распределением с геометрическим средним 6700 см<sup>-3</sup> и стандартным геометрическим отклонением 1,94 (см. рис. 5.11).



Рис. 5.11. Частотное распределение концентрации аэрозольных частиц

При использовании этого распределения в качестве входного для Z результирующее распределение для OA радона приобретает вид логнормального с геометрическим средним 54,3 Бк/м<sup>3</sup> и геометрическим стандартным отклонением 1,33 (см. рис. 5.12). Значения процентилей составляют 34,1 и 86,4.



Рис. 5.12. Распределение ОА радона при уточнении распределения Z

При проведении ретроспективных исследований непосредственно на месте выполнения измерений можно оценить некоторые параметры, вносящие наибольшую неопределенность в конечный результат. Такая оценка может быть проведена либо субъективно, либо с помощью опроса жильцов. Исходя из наличия источников аэрозольных частиц в помещении (курения, газовых плит, открытого пламени, обогревателей и т.п.) величину концентрации аэрозольных частиц можно отнести к одной из трех категорий: высокая, средняя, низкая. Внешний осмотр помещения позволяет категорично оценить отношение площади к объему. Кратность воздухообмена оценивается после выяснения предпочитаемых режимов проветривания и условий содержания жилища. Сузив, таким образом, гипотетический разброс этих коэффициентов (например, при следующих параметрах распределений:  $Z(6700; 1,2); \lambda_v(0,5; 1,2); S/V(4,5; 5,5))$ , результирующее распределение принимает вид, показанный на рис. 5.13.

Результирующее логнормальное распределение имеет геометрическое среднее 52,1 Бк/м<sup>3</sup> и геометрическое стандартное отклонение 1,20 (5% процентиль – 38,8, 95% процентиль – 69,7). Как видно, разброс вероятных значений ретроспективно оцениваемой ОА радона существенно сужается и составляет от -25% до +35%.

Также частотное распределение было получено для ЭРОА радона (см. рис. 5.14). Параметры всех полученных распределений представлены в табл. 5.4.



Рис. 5.13. Распределение ОА радона при конкретизации параметров



Рис. 5.14. Распределение ЭРОА радона при конкретизации параметров

Исследование неопределенности ретроспективной оценки методом Монте-Карло также проводилось в работе [29]. Варьирование задавалось трем параметрам: кратности воздухообмена ( $0,2 \div 1,5 \ eventsismath{u}^{-1}$ ), отношению S/V ( $4,0 \div 10$ ) и константе присоединения к аэрозолям ( $10 \div 160 \ eventsismath{u}^{-1}$ ). При этом результирующее распределение для ОА радона также описывается логнормальной зависимостью, а разброс значений лежит в диапазоне от -45% до +80%. Большая неопределенность оценки ОА радона как раз обусловлена отсутствием конкретизации критических параметров модели.

Таблица 5.4

Величина	Вид	Параметры распределения		Проце	ентили
	распределения			5%	95%
для всего диапазона Z		μ	σ		
С <sub>0</sub> , Бк/м <sup>3</sup>	нормальное	85,9	28,8	41,7	135
для экспериментального диапазона Z		$\mu_{ m g}$	$\sigma_{ m g}$		
С <sub>0</sub> , Бк/м <sup>3</sup>	логнормальное	54,3	1,33	34,1	86,4
при конкретизации параметров		$\mu_{ m g}$	$\sigma_{ m g}$		
С <sub>0</sub> , Бк/м <sup>3</sup>	логнормальное	52,1	1,20	38,8	69,7
С <sub>еq</sub> , Бк/м <sup>3</sup>	логнормальное	23,5	1,31	12,1	45,5

Параметры выходных распределений вероятностей

#### 5.4. Неопределенности, обусловленные детектором

При измерении поверхностной α-активности стекла трековыми детекторами возникают следующие источники погрешностей:

#### Систематическая погрешность

Одним из источников неисключенной систематической погрешности детектора является неточность подгонки аналитической функции (3.1), описывающей зависимость эффективности регистрации частиц є материалом LR-115 от энергии Е и угла падения  $\theta$  частиц. В качестве исходных данных для аппроксимации функции  $\varepsilon(E,\theta)$  используются результаты экспериментальных исследований чувствительности пленки LR-115, опубликованные в работе [58]. Кроме погрешности непосредственно подгонки функции возникает также погрешность, связанная с тем, что сами экспериментальные точки получены с некоторой неопределенностью (в работе [58] для каждой точки даны средние квадратические отклонения по эффективности регистрации и энергии частиц). Разброс экспериментальных данных обусловлен систематическими и случайными погрешностями, связанными с самим трековым материалом и его обработкой, а именно: неравномерностью начальной толщины необработанного трекового материала LR-115, различной толщиной стравливаемого слоя, что, в свою очередь, может быть обусловлено различиями в условиях травления – разбросом температуры травления и плотности щелочного раствора, а также неравномерным перемешиванием раствора в емкости для травления и локальными неоднородностями.

Влияние неопределенности исходных данных по эффективности на рассчитанные значения отклика детектора исследовалось следующим образом: во всех экспериментальных точках работы [58] методом Монте-Карло по нормальному закону генерировались случайные значения эффективности и энергии в соответствии со стандартными отклонениями для конкретной точки, и формировалось 100 независимых наборов таких точек. Затем под каждый набор точек подгонялась функция (3.1) в математическом пакете Table Curve 3D v4.0 и для каждой функции рассчитывался отклик детектора по принципу, описанному в разд. 4.2, 4.3. Погрешность подгонки функции колебалась от 6,8 до 11% со средним значением 8,8%. Полученные средние значения отклика детектора и средние квадратические отклонения представлены в табл. 5.5. Погрешность, вносимая разбросом исходных экспериментальных данных, составляет 2%.

Таблица 5.5

Номер слоя	Скорость образования треков, трек/см <sup>2</sup> ·с						
	<sup>210</sup> Ро (1 Бк/см <sup>2</sup> )		U <sub>eq</sub> (1 Бк/г)		Th (1 Бк/г)		
	μ	σ	μ	σ	μ	σ	
1	~ 0		$3,24 \cdot 10^{-4}$	$6,48 \cdot 10^{-6}$	$3,23 \cdot 10^{-4}$	$6,58 \cdot 10^{-6}$	
2	$1,87 \cdot 10^{-1}$	$3,45 \cdot 10^{-3}$	$1,62 \cdot 10^{-4}$	$3,85 \cdot 10^{-6}$	$2,43 \cdot 10^{-4}$	$4,91 \cdot 10^{-6}$	
3	$1,87 \cdot 10^{-3}$	6,38.10-4	$4,04 \cdot 10^{-5}$	9,36·10 <sup>-7</sup>	$8,80 \cdot 10^{-5}$	$1,98 \cdot 10^{-6}$	
4	~ 0		$8,61 \cdot 10^{-6}$	$2,87 \cdot 10^{-7}$	$4,05 \cdot 10^{-5}$	$8,64 \cdot 10^{-7}$	

Разброс чувствительности детектора

Для оценки погрешности подгонки функции  $\varepsilon(E,\theta)$  при имеющейся неопределенности входных данных, аппроксимация функции была произведена по одному набору данных, состоящему из большого числа случайно заданных точек, сгенерированных по нормальному закону относительно каждой экспериментальной точки во всем диапазоне углов и энергий падающих частиц. В математическом пакете Table Curve 3D v4.0 были получены следующие значения коэффициентов функции (3.1):  $c_1 = 3,70$ ;  $c_2 = 12,5$ ;  $c_3 = 2,84$ ;  $c_4 = 1,10$ ;  $c_5 = 0,02$ . Погрешность определения коэффициентов не превышает 2,5%, а обцая погрешность подгонки функции под набор экспериментальных данных (с учетом их неопределенности) составляет 9,1%.

На рис. 5.15 показана зависимость отклонения подогнанной функции от реального значения в диапазоне углов и энергий падающих частиц. Как видно из рисунка, максимальный вклад в общую погрешность подгонки функции вносится участками спада функции от единицы к нулю. Число частиц, параметры которых соответствуют этим областям, достаточно мало в суммарном потоке. Поэтому систематическая погрешность результата измерения поверхностной активности, вносимая неточностью подгонки функции под набор экспериментальных точек, будет отличаться от самой погрешности подгонки. Для оценки этой величины весь диапазон возможных углов и энергий частиц был разбит на три группы по величине отклонения подогнанной функции от реального значения: от 0 до 4%, от 4% до 30% и от 30% до 60% (см. рис. 5.16).



Рис. 5.15. Пространственно-угловая погрешность подгонки функции (3.1)



Рис. 5.16. Диапазоны отклонения функции (3.1) от реальных значений

Затем в процессе моделирования отклика второго слоя детектора на воздействие поверхностного <sup>210</sup>Ро было сосчитано количество попадающих на слой частиц, соответствующих каждой группе. Результаты расчетов показаны на рис. 5.17. Первые столбцы в каждой группе соответствуют погрешности, вносимой частицами группы в общую неопределенность подгонки функции (3.1), вторые столбы представляют долю частиц группы в общем потоке частиц, попадающих на второй слой детектора. Сумма произведений доли частиц в потоке на формируемую ими погрешность дает значение, равное 10%.



Рис. 5.17. Распределение частиц по группам

При проведении измерений двухслойным детектором возникает дополнительная погрешность, обусловленная неизвестным радионуклидным составом фона стекла. На рис. 5.18 графически представлена зависимость результата измерения поверхностной активности <sup>210</sup>Ро от фонового содержания радионуклидов для стекла с типовыми значениями активности:  $A_S^{Po} = 0,19 \text{ мБк/см}^2$  и  $A_m = 100 \text{ мБк/г}$ . По оси абсцисс отложена процентная доля радионуклидов цепочки распада урана в общей уран-ториевой смеси фона стекла. Горизонтальной штриховой линией обозначено истинное значение поверхностной активности <sup>210</sup>Ро. При данном измеряемом уровне и фоне погрешность измерения двухслойным детектором не превышает 14%. Как видно из рисунка, величина от-
клонения результата измерения от реальной активности <sup>210</sup>Ро принимает максимальное значение при нулевом содержании цепочки урана (весь фон обусловлен содержанием тория и его ДПР).

Зависимость максимальной дополнительной погрешности двухслойного детектора от значения измеряемой величины и от полной удельной фоновой активности стекла (для значений 0,05; 0,1 и 0,2 Бк/г) показана на рис. 5.19.



Рис. 5.18. Зависимость результата измерения от состава фона



Рис. 5.19. Оценка систематической погрешности двухслойного детектора

При использовании трехслойного детектора, учитывающего относительное содержание радионуклидов урановой и ториевой цепочек, дополнительная погрешность обуславливается неизвестным сдвигом равновесия между ураном и радием. Зависимость максимальной погрешности трехслойного детектора от измеряемого значения  $A_S^{Po}$  и удельной активности стекла  $A_m$  (для значений 0,05; 0,1 и 0,2 Бк/г) представлена на рис. 5.20. Как видно, при нормальных условиях дополнительная погрешность не превышает 5%.



Рис. 5.20. Оценка систематической погрешности трехслойного детектора

### Случайная погрешность

Процесс радиоактивного распада по своей природе является стохастическим, что является источником случайных флуктуаций результата измерения. Если число зарегистрированных событий составляет N, то стандартное отклонение равно  $\sigma = \sqrt{N}$ , а относительная случайная погрешность результата измерения равна  $\delta = \sigma / N = 1 / \sqrt{N}$ . Для двухслойного детектора, в соответствии с формулой (3.10):

$$\sigma^{2} = \sqrt{N_{2}^{2} + N_{\phi}^{2} + (0,6)^{2} \cdot (N_{1}^{2} + N_{\phi}^{2})}.$$
(5.11)

Для стекла с характерными значениями активностей ( A<sub>S</sub><sup>Po</sup> = 0,19 мБк/см<sup>2</sup> и A<sub>m</sub> = 100 мБк/г) случайная погрешность составляет 5,1%.

На рис. 5.21 показана зависимость случайной погрешности от поверхностной активности <sup>210</sup>Ро для трех значений удельной активности: 0,05, 0,1 и 0,2 Бк/г.

Аналогично для трехслойного детектора (см. формулу (3.11)):

$$\sigma^{2} = \sqrt{N_{2}^{2} + N_{\phi}^{2} + (0,28)^{2} \cdot (N_{1}^{2} + N_{\phi}^{2}) + (1,94)^{2} \cdot (N_{3}^{2} + N_{\phi}^{2})}.$$
(5.12)

Для такого же стекла случайная погрешность составляет 5,0%. Зависимость случайной погрешности от характеристик стекла приведена на рис. 5.22. Как видно, значения случайной погрешности практически идентичны для двухслойного и трехслойного детекторов во всем диапазоне измеряемых активностей.



Рис. 5.21. Оценка случайной погрешности двухслойного детектора



Рис. 5.22. Оценка случайной погрешности трехслойного детектора

### Суммарная погрешность

Общая неисключенная систематическая погрешность при наличии нескольких источников погрешности определяется по формуле

$$\Theta = \mathbf{k} \cdot \sqrt{\sum_{i=1}^{n} \Theta_i^2} , \qquad (5.13)$$

где k = 1,1 при уровне значимости 0,95 [11]. Общая погрешность равна

$$\Delta = \mathbf{k} \cdot (\Theta + \delta), \tag{5.14}$$

где k принимает различные значения в диапазоне от 0,7 до 0,8 в зависимости от отношения Θ/δ (см. [11]).

Совокупность всех описанных выше источников погрешностей дает в результате зависимости, показанные на рис. 5.23, 5.24.



Рис. 5.23. Оценка суммарной погрешности двухслойного детектора



Рис. 5.24. Оценка суммарной погрешности трехслойного детектора

### Границы применимости детектора

Результаты исследований различных стеклянных объектов с возрастом от 12 до 80 лет, находящихся в жилых помещениях, показали, что поверхностная активность <sup>210</sup>Ро лежит в диапазоне 0,03  $\div$  0,7 мБк/см<sup>2</sup>. Подобная накопленная активность соответствует невысоким уровням радона в помещениях – так, для стекла, находящегося в течение 20 лет в атмосфере с объемной активностью радона 100 Бк/м<sup>3</sup>, накопленная поверхностная активность <sup>210</sup>Ро составляет 0,19 мБк/см<sup>2</sup>. Удельная активность  $\alpha$ -излучающих радионуклидов в исследованных стекле лежит в диапазоне 45  $\div$  200 мБк/г.

Минимальная детектируемая активность (МДА) в соответствии с [63] определяется как:

MДA = 
$$\frac{3+4,65\sqrt{N_{\phi}}}{KT}$$
, (5.15)

где N<sub>ф</sub> – среднее число фоновых импульсов (в данном случае – число фоновых треков на неэкспонированной пленке), К – коэффициент пропорциональности (отклик детектора на измеряемую величину), Т – длительность измерения.

Длительность экспозиции детектора обычно выбирается в диапазоне от одного до трех месяцев. Среднее число фоновых треков для материала LR-115 составляет 10 трек/см<sup>2</sup>. Для стекла, не содержащего фоновые  $\alpha$ -излучающие радионуклиды, минимальная детектируемая поверхностная активность <sup>210</sup>Po (по второму слою) составляет 12 мкБк/см<sup>2</sup>. В соответствии с той же формулой, минимальная детектируемая активность  $\alpha$ -излучающих радионуклидов в стекле (по первому слою) равна 6,90 мБк/г.

При прохождении через слои детектора α-излучение ослабляется, и количество треков, регистрируемых в слое, снижается. Использование четвертого слоя многослойного детектора, позволяющее проводить вторую, независимую, оценку содержания фоновых радионуклидов в стекле, на практике реализуемо лишь при достаточно высокой фоновой активности. Так, для ряда урана минимальная активность, детектируемая четвертым слоем, составляет 268 мБк/г, а для ряда тория – 57,9 мБк/г. Таким образом, использование четырехслойного детектора целесообразно для стекол с высоким (или доминирующим) содержанием радионуклидов ториевого ряда, а также для мониторинга поверхностных α-излучающих загрязнений на промышленных предприятиях.

Для оценки минимальной детектируемой активности при условии дополнительного воздействия на результат измерения других факторов (кроме измеряемой величины) формула (5.15) преобразуется к виду:

MДA = 
$$\frac{3+4,65\sqrt{N_{\phi}+N_{B}}}{KT}$$
, (5.16)

где N<sub>B</sub> – число импульсов, формируемое за счет этих факторов.

Для стекла с удельной активностью фоновых α-излучателей равной 0,1 Бк/г минимальная детектируемая активность <sup>210</sup>Ро составляет 39 мкБк/см<sup>2</sup>. На рис. 5.25 представлена зависимость МДА от уровня фона стекла.



Рис. 5.25. Зависимость МДА <sup>210</sup>Ро от фоновой удельной активности стекла

### 5.5. Оценка суммарной неопределенности

Совокупная погрешность метода ретроспективного определения экспозиции по ОА радона складывается из случайной и систематической погрешностей измерения поверхностной активности <sup>210</sup>Ро в стекле многослойным трековым детектором и неопределенности связи между измеряемой величиной и среднего уровня радона в помещении, возникающей вследствие неопределенности коэффициентов модели поведения радона и его ДПР в атмосфере помещения.

Ниже приводится общий список всех погрешностей метода для измерений, выполняемых трехслойным детектором. Там, где это нужно, численные значения погрешности рассчитываются для референсного стекла с поверхностной активностью  $^{210}$ Po 0,19 мБк/см<sup>2</sup> и удельной фоновой активностью 0,1 Бк/г. Уровень значимость равен P = 0,95.

 Случайная погрешность, возникающая вследствие стохастического характера процесса распада, δ = 5%.

5. Неисключенная систематическая погрешность определения связи между измеренным значением поверхностной активности стекла и средней объемной активностью радона в воздухе,  $\Theta_1 = 30\%$ .

2. Неисключенная систематическая погрешность, возникающая при использовании функциональной зависимости эффективности регистрации  $\alpha$ -излучения от энергии и угла падения частицы, обусловленная исходным разбросом экспериментальных точек, по которым ведется аппроксимация функции,  $\Theta_2 = 2\%$ .

 Неисключенная систематическая погрешность, вносимая неточностью подгонки функции под набор исходных точек, Θ<sub>3</sub> = 10%.

4. Неисключенная систематическая погрешность, обусловленная сдвигом равновесия между ураном и радием,  $\Theta_4 = 5\%$ .

В соответствии с формулами (5.14), (5.14) общая погрешность метода ретроспективного определения экспозиции по ОА радона при типовых условиях экспонирования стекла не превышает 35%.

Для двухслойного детектора вместо неисключенной систематической погрешности, обусловленной сдвигом равновесия между  $^{238}$ U и  $^{226}$ Ra, появляется неисключенная систематическая погрешность, обусловленная неизвестным соотношением между  $^{238}$ U и  $^{232}$ Th, равная 14%. При этом общая погрешность составляет не более 40%.

# 5.6. Методика проведения ретроспективных исследований объемной активности радона в помещениях

Комплекс проведенных в работе исследований позволяет предложить следующую обобщенную методику проведения ретроспективных исследований объемной активности радона в помещениях:

- При выборе стеклянного объекта в помещении следует руководствоваться следующими критериями:
  - оптимальными объектами являются зеркала, стекла на фоторамках или картинах, стекла на внутренних дверях и шкафах, стекла на крупных настенных часах
  - в идеальном случае, объект должен находиться в спальной или гостиной
  - поверхность объекта должна быть плоской (в крайнем случае, слегка изогнутой)
  - поверхность объекта должна быть обращена к центру комнаты и не должна быть скрыта в углу комнаты или в шкафу
  - объект не должен находится вблизи источников возмущающих воздействий, таких как, источники тепла, генераторы аэрозольных частиц (свечи, камины, плиты и пр.), места с высокой вентилируемостью, а также электрооборудование
  - не рекомендуется, но допускается использование керамических или эмалированных объектов, аквариумных стекол, стеклянных ваз или украшений (в случае использования точка измерения должна быть удалена от других поверхностей как минимум на 30 см)
  - исключается использование оконных стекол (в особенности, подверженных воздействию прямых солнечных лучей), стекол в ванной комнате и уборной, объектов с грязной, шероховатой и рифленой поверхностью

- возраст объекта должен быть хорошо известен, чем меньше возраст, тем с большей точностью его следует определить
- оптимальный возраст объекта лежит в диапазоне от 20 до 80 лет
- необходимо установить длительность нахождения объекта в текущем помещении, а также в любом другом предыдущем помещении
- оптимальная длительность экспонирования детектора на объекте составляет от одного до трех месяцев
- 2. При монтаже/демонтаже трекового детектора необходимо:
  - очистить поверхность выбранного объекта протиранием влажной мягкой тканью
  - при непосредственной установке детектора поверхность объекта должна быть сухая (при необходимости протереть сухой мягкой тканью)
  - записать дату и время установки и снятия детектора
  - после снятия детектора его поверхность следует закрыть дополнительной пленкой, детектор поместить в герметичный пакет и как можно быстрее убрать в безрадоновую атмосферу
- 3. Часть ретроспективных детекторов, используемых в качестве фоновых, необходимо поместить в безрадоновую атмосферу и по окончании экспонирования детекторов на объектах помещений включить в общий технологический процесс обработки и подсчета числа треков
- Комплекс дополнительных измерений, проводимых дважды (в день установки и день снятия ретроспективного детектора) включает в себя следующее:
  - инспекционное измерение текущей ОА и ЭРОА радона и сдвига равновесия
  - интегрирующее измерение ОА радона трековым или другим методом за время нахождения ретроспективного детектора в помещении (возможно проведение более длительных измерений)

- измерение доли свободных продуктов распада радона
- измерение температуры и влажности воздуха внутри помещения, уличной температуры, давления
- измерение фона γ-излучения
- При проведении измерений необходимо сделать следующие качественные оценки:
  - записать характеристики строения (год постройки, тип дома, этажность, тип отопления, материал стен, пола и потолка, типы их покрытий, наличие подвала и пола в нем)
  - записать характеристики жилища (количество жильцов и длительность проживания, наличие среди них курильщиков с указанием частоты курения в жилище, перечисление внутренних и внешних источников аэрозольных частиц)
  - записать характеристики комнаты (тип помещения, курение в нем, частота проветривания, другие особенности режима содержания помещения)
  - сфотографировать место установки ретроспективного детектора и обстановку в комнате, непосредственно на месте или позднее по фотографиям сделать субъективную оценку отношения площади поверхностей к объему помещения
  - на основе личных наблюдений, а также из общения с хозяевами жилища сделать качественную оценку характерных для помещения значений концентрации аэрозольных частиц в воздухе и кратности воздухообмена
- 6. На основе комплекса измерений доли свободных продуктов распада радона, проведенных во всех помещениях, необходимо сделать следующий макроанализ:
  - разбить все исследованные помещения на отдельные группы по типу помещения, наличию источников аэрозольных частиц и режиму содержания

- в каждой группе провести анализ частотного распределения доли свободных продуктов распада радона и сделать косвенную оценку параметров распределения концентрации аэрозольных частиц
- полученные параметры распределения концентрации аэрозольных частиц использовать как характерные для данной группы помещений при установлении ретроспективной связи между поверхностной активностью имплантированного в стекло <sup>210</sup>Ро и средней объемной активности радона в помещении

Таким образом, можно значительно снизить неопределенность критического параметра метода ретроспективного определения ОА радона и повысить точность ретроспективных оценок.

Общая форма записи результатов измерений и наблюдений, рекомендуемая к использованию при проведении ретроспективных исследований, представлена в приложении.

Последняя глава диссертационной работы целиком посвящена анализу и оценке различных погрешностей, возникающих при проведении ретроспективной оценки ОА радона.

В данной главе сделано следующее:

1. Выработан общий алгоритм перехода от измеренной активности <sup>210</sup>Ро в стекле к объемной активности радона в воздухе. Проведен анализ чувствительности модели поведения радона и его ДПР в помещениях к вариации всех параметров и коэффициентов модели и проведено ранжирование по степени их влияния.

2. Для удобства практического использования получено унифицированное уравнение перехода, исключающее необходимость проведения комплексных расчетов модели. Уравнение дает возможность проводить оценку ОА радона как при средних параметрах модели, так и задавать любому (или всем) параметрам необходимое значение. Погрешность использования уравнения оценена и составляет не более 10%. 3. Изучено влияние вариаций средней объемной активности радона на значение поверхностной активности имплантированного в стекло <sup>210</sup>Po.

4. Проведен вероятностный анализ модели поведения радона и его ДПР в помещении и оценена погрешность ретроспективной оценки, обусловленная неопределенностью коэффициентов модели. Показано, что уточнение критических параметров модели при непосредственном проведении измерений в помещении может снизить погрешность метода до 35%.

5. Проанализированы и рассчитаны случайные и систематические погрешности двух- и трехслойного детектора поверхностной активности имплантированного в стекло <sup>210</sup>Ро при разных измеряемых и фоновых уровнях. Оценены значения минимальных детектируемых активностей.

6. Оценена общая погрешность метода ретроспективного определения объемной активности радона в помещении.

7. Описаны общие подходы и рекомендации к проведению ретроспективных исследований ОА радона в помещениях (выбор оптимальных объектов исследования, обращение с трековыми детекторами, измерение и качественная оценка дополнительных параметров, анализ результатов наблюдений).

Результаты, полученные в пунктах 1 и 2 подтверждают *второе защищаемое положение:* разработанный алгоритм перехода от измеренной активности <sup>210</sup>Ро в стекле к объемной активности радона в воздухе позволяет определить искомую величину, ранжировать по степени влияния параметры помещения и атмосферы и учесть их варьирование.

Пункт 4 доказывает *третье защищаемое положение:* снижение погрешности ретроспективной оценки объемной активности радона до 35% достигается инструментальным определением типовых параметров частотного распределения доли свободных продуктов распада радона и учетом характеристик помещения.

#### Заключение

По результатам работы можно сделать следующие основные выводы:

1. Разработан детектор для измерения поверхностной активности имплантированного в стекло <sup>210</sup>Ро, позволяющий оценивать содержание фоновых  $\alpha$ -излучающих природных радионуклидов в стекле, за счет чего погрешность измерения активности <sup>210</sup>Ро при типовых условиях экспонирования стекла снижена с 20% до 10%. Чувствительность детектора к поверхностной активности <sup>210</sup>Ро составляет 0,19 трек·см<sup>-2</sup>·с<sup>-1</sup>/Бк·см<sup>-2</sup>, минимальная детектируемая активность 0,04 мБк/см<sup>2</sup>; чувствительность к удельной активности фоновых радионуклидов 3,3·10<sup>-4</sup> трек·см<sup>-2</sup>·с<sup>-1</sup>/Бк·г<sup>-1</sup>, минимальная детектируемая активность 6,9 мБк/г.

2. Предложена модифицированная модель поведения дочерних продуктов распада радона (ДПР) в помещении, учитывающая различия в характерах оседания на поверхности и имплантации в стекло присоединенных к аэрозольным частицам и свободных дочерних продуктов распада радона. Проведено моделирования процессов имплантации ДПР радона в стекло и получены коэффициенты имплантации: для свободных изотопов <sup>218</sup>Ро и <sup>214</sup>Ро – 0,46; для присоединенных изотопов <sup>218</sup>Ро и <sup>214</sup>Ро – 0,46; для присоединенных изотопов <sup>218</sup>Ро и <sup>214</sup>Ро – 0,23; коэффициент обратного вылета имплантированных ДПР радона из стекла при повторном распаде – 0,27.

3. Проведено ранжирование параметров помещения и атмосферы по степени их влияния на коэффициент перехода от измеренной активности имплантированного в стекло <sup>210</sup>Ро к объемной активности радона в воздухе. Для удобства практического использования получено унифицированное уравнение перехода, позволяющее определить искомую величину и учесть варьирование данных параметров.

4. На базе серийно выпускаемого прибора RAMON-01 создано средство измерения доли свободных продуктов распада радона в атмосфере по типу фильтрационной батареи и определены основные метрологические характеристики: эффективность собирания свободных ДПР радона – 0,86; аэродинамический диаметр отсечки частиц – 1,92 нм; эффективность регистрации α-излучения – 0,19.

5. Проведен комплекс измерений доли свободных продуктов распада радона в помещениях Екатеринбурга и Свердловской области (200 измерений в 50 помещениях) и получено логнормальное распределение параметра с геометрическим средним 6,2%. Выявлена значимая корреляция доли свободных продуктов распада радона со сдвигом равновесия между радоном и его ДПР и курением в помещении.

6. Выполнена комплексная оценка неопределенности метода ретроспективного определения объемной активности радона в помещении. Показано, что инструментальное определение типовых параметров частотного распределения доли свободных продуктов распада радона и конкретизация характеристик помещения снижает погрешность ретроспективной оценки с 60% до 30%.

7. Предложена общая методика проведения ретроспективных исследований объемной активности радона в помещениях. Методика внедрена в измерительную практику лабораторий УГТУ–УПИ и ИПЭ УрО РАН, начато эпидемиологическое обследование в г. Лермонтов.

### Библиографический список использованной литературы

1. *Бастриков В.В., Жуковский М.В.* Восстановление истории облучения человека продуктами распада радона // Труды VII международного симпозиума "Проблемы геологии и освоения недр". Томск, Изд-во Томского политех. ун-та, 2003. – С. 587–589.

2. *Бастриков В.В., Жуковский М.В.* Измерение распределения активности дочерних продуктов распада радона по размеру и доли свободных атомов // Тезисы докладов четвертого Всероссийского научного молодежного симпозиума "Безопасность биосферы". Екатеринбург: УГТУ-УПИ, 2000. – С. 91–92.

3. *Бастриков В.В., Жуковский М.В.* Определение доли неприсоединенных атомов дочерних продуктов распада радона в воздухе // Тезисы докладов десятого Международного экологического симпозиума "Урал атомный, Урал промышленный". Сунгуль, ИПЭ УрО РАН, 2002. – С. 11–13.

4. *Бастриков В.В., Жуковский М.В.* Ретроспективная оценка облучения населения дочерними продуктами распада радона // Материалы первой Всероссийской научной конференции с международным участием "Влияние загрязнения окружающей среды на здоровье человека". Новосибирск, 2002. – С. 56–57.

5. Бастриков В.В., Жуковский М.В., Кружалов А.В. Методология оценки дозового воздействия природного излучения на население // Труды Международной научной конференции "Радиационная физика". Бишкек–Каракол, 2003. – С. 151–152.

6. Бастриков В.В., Жуковский М.В., Кружалов А.В. Многослойные трековые детекторы для ретроспективной дозиметрии облучения дочерними продуктами распада радона // Вестник УГТУ–УПИ, №5 (35), часть 2. "Современные технологии: проблемы и решения". Екатеринбург: ГОУ ВПО УГТУ-УПИ, 2004. – С. 79–87.

7. Бастриков В.В., Жуковский М.В., Кружалов А.В. Модифицированная модель поведения дочерних продуктов распада радона в воздухе помещений //

Успехи современного естествознания, №6, приложение 1, том 2. Москва: "Академия естествознания", 2004. – С. 144–146.

8. *Бастриков В.В., Кружалов А.В.* Вклад свободных атомов и аэрозолей в формирование ингаляционной дозы облучения населения от дочерних продуктов распада радона // Научные труды I отчетной конференции молодых ученых ГОУ УГТУ–УПИ. Сборник тезисов, часть 1. Екатеринбург: УГТУ–УПИ, 2001. – С. 290–292.

9. Бастриков В.В., Кружалов А.В. Расчет профиля внедрения дочерних продуктов распада радона в стекло // Научные труды II отчетной конференции молодых ученых ГОУ УГТУ–УПИ. Сборник тезисов, часть 1. Екатеринбург: УГТУ–УПИ, 2002. – С.263.

10. Бронштейн И.Н., Семендяев К.А. Справочник по математике. Для инженеров и учащихся ВТУЗов. – М.: Наука, 1964. – 608 с.

11. ГОСТ 8.207–76. Прямые измерения с многократными наблюдениями. Методы обработки результатов наблюдений. Основные положения. М.: Издательство стандартов, 1998. – 10 с.

Дюррани С., Балл Р. Твердотельные ядерные детекторы. Пер. с англ. –
 М.: Энергоатомиздат, 1990. – 264 с.

13. Жуковский М.В., Ярмошенко И.В. Радон: измерение, дозы, оценка риска. – Екатеринбург: УрО РАН, Институт промышленной экологии, 1997. – 219 с.

14. Защита от радона-222 в жилых зданиях и на рабочих местах. Публикация 65 МКРЗ. М.: Энергоатомиздат, 1995.

15. *Корн Г., Корн Т.* Справочник по математике (для научных работников и инженеров). – М.: Наука, 1973. – 831 с.

 Маренный А.М. Диэлектрические трековые детекторы в радиационнофизическом и радиобиологическом эксперименте. – М.: Энергоатомиздат, 1987. – 184 с. 17. Радон. Измерение объемной активности радона интегральным трековым методом в производственных, жилых и общественных помещениях. Методика выполнения измерений. МВИ 2.6.1.003-99. Москва, 1999.

18. *Abu-Jarad F*. Indoor cigarette smoking: uranium content and carrier of indoor radon products // Radiation Measurements. – 1997. – Vol. 28. – P. 579–584.

19. Alavanja M.C.R., Lubin J.H., Mahaffey J.A., Brownson R. Residential radon exposure and risk of lung cancer in Missouri // American Journal of Public Health. – 1999. – Vol. 89. – P. 1042–1048.

20. Andriamanatena R., Bacmeister G.U., Freyer K., Ghose R., Jonsson G., Kleis T., Treutler H.C., Enge W. Modelling of solid state nuclear track detector devices for radon measurements // Radiation Measurements. – 1997. – Vol. 28. – P. 657–662.

21. *Bagnoli F., Bochicchio F., Bucci S.* Sensitivity of LR-115 based radon dosemeter // Radiation Measurements. – 1999. – Vol. 31. – P. 347–350.

 Barillon R., Fromm M., Chambaudet A., Marah H., Sabir A. Track etch velocity study in a radon detector (LR115, cellulose nitrate) // Radiation Measurements. - 1997. – Vol. 28. – P. 619–628.

23. *Bastrikov V.V., Zhukovsky M.V.* Determination of the Radon Daughters Unattached Fraction in Ural Buildings // Seventh International Symposium "Natural Radiation Environment (NRE-VII)". Book of abstracts. Rhodes, Greece, 2002. – P. 311–312.

24. *Bastrikov V.V., Zhukovsky M.V.* Multilayer Nuclear Track Detectors for Retrospective Radon Dosimetry // Proceedings of 11th International Congress of the International Radiation Protection Association (IRPA-11). Session 3h, № 10. Madrid, Spain, 2004. P. 1–6.

25. Birovljev A., Falk R., Walsh C., Bissolo F., Trotti F., McLaughlin J.P., Paridaens J., Vanmarcke H. Retrospective assessment of historic radon concentrations in Norwegian dwellings by measuring glass implanted Po-210 – an international field intercomparison // The Science of the Total Environment. – 2001. – Vol. 272. – P. 181–188.

26. *Bochicchio F., McLaughlin J.P., Walsh C.* Comparison of radon exposure assessment results: 210-Po surface activity on glass objects vs. contemporary air radon concentration // Radiation Measurements. – 2003. – Vol. 36. – P. 211–215.

27. *Cartwright B.G., Shirk E.K., Price B.P.* A nuclear track recording polymer of unique sensitivity and resolution // Nuclear Instruments and Methods. – 1978. – Vol. 153. – P. 457–460.

28. *Cauwels P., Poffijn A.* An improved model for the reconstruction of past radon exposure // Health Physics. – 2000. – Vol. 78(5). – P. 528–532.

29. *Cauwels P., Poffijn A., Mondelaers W., Lahorte P., Masschaele B., Meesen G., Van Deynse A.* Theoretical study of the relation between radon and its long-lived progeny in a room // Health Physics. – 2000. – Vol. 79(4). – P. 389–395.

30. *Chamberlain A.C., Dyson E.D.* The dose to the trachea and bronchi from the decay products of radon and thoron // British Journal of Radiology. – 1956. – Vol. 29. – P. 317.

31. *Cheng Y.S., Yeh H.C.* Theory of screen type diffusion battery // Journal of Aerosol Science. – 1980. – Vol. 11. – P. 313–319.

32. *Cornelis J, Vanmarcke H, Landsheere C, Poffijn A*. Modeling radon progeny absorbed in glass // Health Physics. – 1993. – Vol. 65(4). – P. 414–417.

33. *Cornelis J., Landsheere C., Poffijn A., Vanmarcke H.* Experimental and theoretical study of the fraction of <sup>210</sup>Po absorbed in glass // Indoor radon and lung cancer: reality or myth? – Battelle Press. – 1992. – Part 1. – P. 101–111.

34. *Damkjaer A*. The efficiency of cellulose nitrate LR115 II for alpha particle detection // Nuclear Tracks. – 1986. – Vol. 12. – P. 295–298.

35. *Falk R., Almren K., Ostergren I.* Experience from retrospective radon exposure estimations for individuals in a radon epidemiological study using solid-state nuclear track detectors // The Science of the Total Environment. – 2001. – Vol. 272. – P. 61–66.

36. Falk R., Mellander H., Nyblom L., Ostergen I. Retrospective assessment of radon exposure by measurements of 210-Po implanted in surfaces using an alpha

track detector technique // Environmental International. – 1996. – Vol. 22, Suppl. 1. – P. S857–S861.

37. *Field R.W., Steck D.J., Parkhurst M.A., Mahaffey J.A., Alavanja M.C.R.* Intercomparison of retrospective radon detectors // Environmental Health Perspectives. – 1999. – Vol. 107. – P. 905–910.

38. *Field R.W., Steck D.J., Smith B.J., Brus C.P., Fisher E.F., Neuberger J.S., Lynch C.F.* The Iowa radon lung cancer study - phase I: residential radon gas exposure and lung cancer // The Science of the Total Environment. – 2001. – Vol. 272. – P. 67–72.

39. *Fitzgerald B., Hopke P.K.* A prospective assessment of the 210-Po surface collection for estimating 222-Rn exposure // Journal of Environmental Radioactivity. – 2000. – Vol. 51. – P. 79–98.

40. *Fleischer R.L., Doremus R.H.* Uncertainties in retrospective radon exposure of glass: possible effects of hydration and of leaching // Health Physics. – 2001. – Vol. 81(2). – P. 110–113.

41. *Hadley S.A., Meyer N.R., Fleischer R.L., Cavallo A.* Eyeglass lenses for personal radon dosimetry // Health Physics. – 2000. – Vol. 79(3). – P. 242–250.

42. Health effects of exposure to radon. BEIR VI. – Washington, D.C., 1998. –
432 p.

43. *Hinds W.C.* Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles – New York: John Wiley & Sons, 1982. – 409 p.

44. *Horvath H.* Aerosols – an introduction // Journal of Environmental Radioactivity. – 2000. – Vol. 51. – P. 5–25.

45. *Huet C., Tymen G., Boulaud D.* Size distribution, equilibrium ratio and unattached fraction of radon decay products under typical indoor domestic conditions // The Science of the Total Environment. – 2001. – Vol. 272. – P. 97–103.

46. International Commission on Radiological Protection (ICRP). Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP Publication 66. New York, 1994.

47. International Commission on Radiological Protection (ICRP). Report of committee II on permissible dose for internal radiation. ICRP Publication 2. New York, 1959.

48. *Jacobi W*. Activity and potential alpha energy of Rn-222 and Rn-220 daughters in different air atmospheres // Health Physics. – 1972. – Vol. 22(5). – P. 441–450.

49. *James A.C., Birchall A., Akabani G.* Comparative dosimetry of BEIR VI revisited // Radiation Protection Dosimetry. – 2004. – Vol. 108(1). – P. 3–26.

50. Johansson L., Roos B., Samuelsson C. Alpha-particle spectrometry of large-area samples using an open-flow pulse ionization chamber // Applied Radiation and Isotopes. – 1992. – Vol. 43. P. 119–125.

51. *Knutson E.O., Hubbard L.M., Bolker B.M.* Determination of the surface to volume ratio in homes from measurements of radon and its progeny // Radiation Protection Dosimetry. – 1992. – Vol. 42(2). – P. 121–126.

52. *Laurer G.R., Estrada J., Cohen N.* Lung exposure from inhalation of radon progeny: calculated from in vivo measurements of <sup>210</sup>Po in the skull // Health Physics. – 1999. – Vol. 76(4). – P. 380–387.

53. *Lee T.K.C., Yu K.N.* Effects of air conditioning, dehumidification and natural ventilation on indoor concentrations of 222-Rn and 220-Rn // Journal of Environmental Radioactivity. – 2000. – Vol. 47. – P. 189–199.

54. *Leonard B.E.* Progeny enhanced deposition rates primarily from increased particle diffusivity at high radon concentrations // Health Physics. – 2003. – Vol. 85(4). – P. 476–484.

55. *Leung J.K.C., Ho C.W., Tso W.Y.W.* Deposition behaviour of 222-Rn progeny on surfaces // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. – 2000. – Vol. 443A. – P. 546–556.

56. *Lively R.S., Ney E.P.* Surface radioactivity resulting from the deposition of 222-Rn daughter products // Health Physics. – 1987. – Vol. 52(4). – P. 411–415.

57. *Lively R.S., Steck D.J.* Long-term radon concentration estimated from 210-Po embedded in glass // Health Physics. – 1993. – Vol. 64(5). – P. 485–490.  Marocco D., Bochicchio F. Experimental determination of LR-115 detector efficiency for exposure to alpha particles // Radiation Measurements. – 2001. – Vol. 34. – P. 509–512.

59. *McLaughlin J.P.* Approaches to the assessment of long term exposure to radon and its progeny // The Science of the Total Environment. – 2001. – Vol. 272. – P. 53–60.

60. Meesen G., Poffijn A., Uyttenhove J., Buysse J. Study of a passive detector for retrospective radon measurements // Radiation Measurements. – 1995. – Vol. 25. – P. 591–594.

61. *Mohammed A., El-Hussein A., Ali A.E.* Measurements of thorium-B in the outdoor environment and evaluation of equivalent dose // Journal of Environmental Radioactivity. – 2000. – Vol. 49. – P. 181–193.

62. *Nikezic D., Janicijevic A.* Bulk etching rate of LR115 detectors // Applied Radiation and Isotopes. – 2002. – Vol. 57. – P. 275–278.

63. Nuclear Regulations 1507. Minimum detectable concentrations with typical radiation survey instruments for various contaminants and field conditions.

64. *Nyblom L., Samuelsson C.* The determination of the activity of serially transforming radionuclides by a recursive technique. // Radiation Protection Dosimetry. -1992. - Vol. 45. - P. 1-6.

65. *Oberstedt S., Vanmarcke H.* Volume traps – a new retrospective radon monitor // Health Physics. – 1996. – Vol. 70(2). – P. 222–226.

66. *Palfalvi J., Feher I., Lorinc M.* Studies on retrospective assessment of radon exposure // Radiation Measurements. – 1995. – Vol. 25. – P. 585–586.

67. *Paridaens J., Vanmarcke H., Zunic Z.S., McLaughlin J.P.* Field experience with volume traps for assessing retrospective radon exposures // The Science of the Total Environment. – 2001. – Vol. 272. – P. 295–302.

68. *Porstendorfer J, Butterweck G, Reineking A*. Daily variation of the radon concentration indoors and outdoors and the influence of meteorological parameters // Health Physics. – 1994. – Vol. 67(3). – P. 283–287.

69. *Porstendorfer J.* Radon: measurements related to dose // Environmental International. – 1996. – Vol. 22, Suppl. 1. – P. S563–S583.

70. *Porstendorfer J., Reineking A.* Radon characteristics related to dose for different living places of the human // Proceedings of IRPA 10th Congress. – Hiroshima, 2000.

71. *Porstendorfer J., Reineking A.* Radon: characteristics in air and dose conversion factors // Health Physics. – 1999. – Vol. 76(3). – P. 300–305.

72. *Pressyanov D., Buysse J., Poffijn A., Meesen G., Van Deynse A.* The compact disk as radon detector – a laboratory study of the method // Health Physics. – 2003. – Vol. 84(5). – P. 642–651.

73. Pressyanov D., Buysse J., Van Deynse A., Poffijn A., Meesen G. Indoor radon detected by compact discs // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. – 2001. – Vol. 457A. – P. 665–666.

74. Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation to the General Assembly – New York, 2000. – 566 p.

75. *Roos B., Samuelsson C.* Experimental methods of determining the activity depth distribution of implanted 210Pb in glass // Journal of Environmental Radioac-tivity. – 2002. – Vol. 63. – P. 135–151.

76. *Roos B., Whitlow H.J.* Computer simulation and experimental studies of implanted 210-Po in glass resulting from radon exposure // Health Physics. – 2003. – Vol. 84(1). – P. 72–81.

77. *Samuelsson C*. Plate-out and implantation of 222-Rn decay products in dwellings // Environmental International. – 1996. – Vol. 22, Suppl. 1. – P. S839–S843.

Samuelsson C. Retrospective determination of radon in houses // Nature. –
 1988. – Vol. 334. – P. 338–340.

79. *Schmidt V., Hamel P.* Measurements of deposition velocity of radon decay products for examination of the correlation between air activity concentration of radon and the accumulated Po-210 surface activity // The Science of the Total Environment. – 2001. – Vol. 272. – P. 189–194.

80. *Solomon S.B.* Field tests of a radon progeny sampler for the determination of effective dose // The Science of the Total Environment. – 2001. – Vol. 272. – P. 303–313.

81. *Steck D.J., Alavanja M.C.R., Field R.W., Parkhurst M.A., Bates D.J., Mahaffey J.A.* 210-Po implanted in glass surfaces by long term exposure to indoor radon // Health Physics. – 2002. – Vol. 83(2). – P. 267–271.

82. *Steck D.J., Field R.W.* The use of track registration detectors to reconstruct contemporary and historical airborne radon and radon progeny concentrations for a radon-lung cancer epidemiologic study // Radiation Measurements. – 1999. – Vol. 31. – P. 401–406.

83. *Tokonami S.* Experimental verification of the attachment theory of radon progeny onto ambient aerosols // Health Physics. – 2000. – Vol. 78(1). – P. 74–79.

84. *Tokonami S., Iimoto T., Kurosawa R.* Continuous measurement of the equilibrium factor F and unattached fraction fp of radon progeny in the environment // Environmental International. – 1996. – Vol. 22, Suppl. 1. – P. S611–S616.

85. *Trotti F., Lanciai M., Mozzo P., Panepinto V., Soli P., Predicatori F., Righetti F., Tacconi A., Tanferi A.* Improvements in radon retrospective assessments based on analysis of 210-Po embedded in glasses // Proceedings of IRPA Symposium – Prague, 1997. – Section 2. – P. 187–190.

86. Trotti F., Mozzo P., Temporin A., Lanciai M., Predicatori F., Righetti F., Tacconi A. CR-39 track detectors applied to measurements of 210Po embedded in household glass // Environmental International. – 1996. – Vol. 22, Suppl. 1. – P. S863–S869.

87. *Vargas A., Ortega X., Porta M.* Dose conversion factors for Rn concentration in indoor environments using a new equation for the F-fp correlation // Health Physics. – 2000. – Vol. 78(1). – P. 80–85.

88. *Walsh C., McLaughlin J.P.* Correlation of 210-Po implanted in glass with radon gas exposure: sensitivity analysis of critical parameters using Monte-Carlo approach // The Science of the Total Environment. – 2001. – Vol. 272. – P. 195–202.

89. *Wasiolek P.T., James A.C.* Unattached fraction measuring technique and radon lung dose // Journal of Environmental Radioactivity. – 2000. – Vol. 51. – P. 137–151.

90. *Yip C.W.Y., Ho J.P.Y., Koo V.S.Y., Nikezic D., Yu K.N.* Effects of stirring on the bulk etch rate of LR 115 detector // Radiation Measurements. – 2003. – Vol. 37. – P. 197–200.

91. *Yu K.N., Guan Z.J.* A portable bronchial dosimeter for radon progenies // Health Physics. – 1998. – Vol. 75(2). – P. 147–152.

92. *Ziegler J.F., Biersack J.P.* SRIM – The stopping and range of ions in matter. – 2003. – IBM, version 2003.10.

93. *Zunic Z.S., McLaughlin J.P., Walsh C., Benderac R.* The use of SSNTDs in the retrospective assessment of radon exposure in high radon rural communities in Yugoslavia // Radiation Measurements. – 1999. – Vol. 31. – P. 343–346.

94. Zunic Z.S., Trotti F., Birovljev A., Bissolo F., Falk R., McLaughlin J.P., Tanferi A., Walsh C. Assessments of glass implanted 210-Po in Yugoslavian houses: results of an international intercomparison and critical analysis of methods // Proceedings of Radon in the Living Environment Workshop. – Athens, 1999. – P. 1175–1192.

Регистрационная карта

Приложение

Исслелуемый объект				
Город Район Код				
Упина	№ лома Корпус	Квартира		
Фамилия				
Измерение мгновенных значений				
Приоор RAMON-01 №	Дата измерения	Зремя измерения		
	экран фильтр	(0,		
		і внутри		
F	МЭЛ	лавление		
	МЭД	давление		
Трековый детектор				
Номер дозиметра	Дата установк	И		
МЭД	Дата сняти	R		
Место измерения				
Жилая Спальная Кухн	ня Служебное Другое			
Характеристики строения				
Дом городского типа 🔲 Сельск	ий дом Коттедж	Этаж измерения		
Детское учреждение Другое		Этажность		
Год постройки	Количество Длительность	Тип отопления		
до 1900 г.	жильцов проживания	центральное		
1900-1949 г до	) 16 лет	печное		
1950-1969 г свыше	е 16 лет	другое		
1970-1989 г.				
после 1990 г. Подпол Подвал Пол в подвале есть нет				
Стены	Пол	Засыпка потолка		
материал отделка	материал покрытие			
дерево сух. штук.	бетон краска	шлак		
кирп. кр. штук.	дерево линолеум	керамзит		
кирп. сил. ДСП	дрплит.пл.	щебень		
камень др	плит. кер.	песок		
шлак покрытие	ДСП	др		
ДСП обои	др			
бетон бл. побелка		L		
бетон пан. краска	Измерения произвел			
дрпленка	Организация			
др	Фамилия			

## ХАРАКТЕРИСТИКА ЖИЛИЩА

- Кто-нибудь курит в этом жилище \_\_\_\_\_\_
   Если да, укажите сколько сигарет в день \_\_\_\_\_\_
   папирос в день \_\_\_\_\_\_
- 2. Есть ли в помещении существенные источники аэрозолей (газовая плита, нагреватель с органическим топливом и проч.) \_\_\_\_\_\_ Если да, что именно \_\_\_\_\_\_

## ХАРАКТЕРИСТИКА КОМНАТЫ

- 4. Тип комнаты (жилая, спальная и т.п.)
- Кто-нибудь курит в этой комнате \_\_\_\_\_
   Если да, укажите сколько сигарет в день \_\_\_\_\_
   сигар в день \_\_\_\_\_

папирос в день

6. Проводится ли регулярное проветривание комнаты с открытием окна

Если да, то делается это весь день или ночь, часть дня или ночи или изредка

- Производится ли проветривание с помощью каких-то устройств (вентилятор, кондиционер) \_\_\_\_\_\_
   Если да, то описать \_\_\_\_\_\_
- 8. Есть ли дополнительные источники аэрозолей \_\_\_\_\_ Если да, то описать
- 9. Качественная оценка критических параметров

Уровень	Высокий	Средний	Низкий
Концентрация аэрозольных частиц			
Отношение площади к объему			
Кратность воздухообмена			

## 135

# ХАРАКТЕРИСТИКА ОБЪЕКТА

10.Тип объекта и его описание
11.Возраст объекта
12. Длительность пребывания в данной комнате
13. Длительность пребывания в других помещениях
14. Длительность нахождения у данного хозяина
15. Любая дополнительная информация