

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение  
высшего образования «Уральский федеральный университет имени  
первого Президента России Б.Н. Ельцина»

На правах рукописи



**Мостафа Мостафа Юнесс Абдельфатах**

**Средства воспроизведения единиц объемной и  
эквивалентной равновесной объемной  
активности радона**

01.04.01 – Приборы и методы экспериментальной физики

**АВТОРЕФЕРАТ**  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Екатеринбург – 2019

Работа выполнена на кафедре экспериментальной физики Физико-технологического института ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б. Н. Ельцина».

Научный руководитель: доктор технических наук, профессор,  
**Жуковский Михаил Владимирович**

Официальные оппоненты: **Николаев Вадим Аркадьевич**, доктор технических наук, старший научный сотрудник, АО «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина», г. Санкт-Петербург, ведущий научный сотрудник лаборатории промышленной санитарии, охраны окружающей среды и радиационной безопасности;

**Соломонов Владимир Иванович**, доктор физико-математических наук, профессор, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт электрофизики Уральского отделения Российской академии наук, г. Екатеринбург, ведущий научный сотрудник лаборатории квантовой электроники;

**Юрков Анатолий Константинович**, кандидат геолого-минералогических наук, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт геофизики им. Ю.П. Булашевича Уральского отделения Российской академии наук, г. Екатеринбург, заведующий лабораторией геодинамики

Защита состоится «12» декабря 2019 г. в 15:00 часов на заседании диссертационного совета УрФУ 01.03.15 по адресу: 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира, 19, ауд. И-420 (зал Ученого совета)

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина»: <https://dissovet2.urfu.ru/mod/data/view.php?id=12&rid=348>

Автореферат разослан «\_\_\_» \_\_\_\_\_ 2019 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета

Ищенко Алексей Владимирович

## **ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ**

### **Актуальность темы исследования**

Радиоактивный благородный газ радон – постоянный природный спутник человечества. Всемирная организация здравоохранения (ВОЗ) признала, что радон является второй после курения причиной возникновения рака легкого [WHO, 2009]. Анализ, проведенный НКДАР ООН [UNSCEAR, 2009], показал, что от 10 до 14% случаев рака легкого обусловлены облучением населения дочерними продуктами распада радона в жилищах.

Не менее важной задачей, чем измерение объемной активности (ОА) радона является измерение эквивалентной равновесной объемной активности (ЭРОА) радона, служащей мерой интенсивности радиационного воздействия на человека.

Значимость проблемы обеспечения радиационной защиты персонала и населения привела к необходимости разработки различных методов и средств измерения ОА и ЭРОА радона в воздухе. Принципы работы средств измерения ОА радона весьма различны в зависимости от поставленных задач.

Для обеспечения единства измерений и контроля в любой технической области необходимо создать систему, обеспечивающую передачу размера единицы измерения от первичного эталона к образцовым, а далее к рабочим средствам [Брегадзе и др., 1990]. Для обеспечения качества контроля ОА радона в ряде стран были разработаны первичные эталоны активности или объемной активности радона, позволяющие воспроизвести с высокой точностью единицу измерения, не прибегая к эталону той же природы. Эталоны активности или ОА радона, а также ЭРОА радона отсутствуют во многих странах, не имеющих официальных соглашений о признании эталонов с Европейским союзом или США. В связи с этим разработка простых в эксплуатации, имеющих приемлемую стоимость и обеспечивающих достаточную точность средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона представляет собой актуальную задачу.

### **Степень разработанности темы исследования**

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

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

**Объектом исследования** является газо-воздушная смесь, содержащая газ  $^{222}\text{Rn}$  и короткоживущие продукты его распада  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  ( $^{214}\text{Po}$ ).

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

#### **Цель работы**

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

#### **Задачи исследования**

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

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

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

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

### **Научная новизна:**

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

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

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

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

### **Теоретическая и практическая значимость исследования:**

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

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

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

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

## **Методы исследований**

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

### **Положения, выносимые на защиту:**

1. Конструкция средства воспроизведения размера единиц ОА радона с непрерывным контролем коэффициента эманирования по отношению активностей  $^{214}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$  и  $^{214}\text{Bi}/^{226}\text{Ra}$ , в источнике позволяет получить контролируемую ОА радона в диапазоне 0,3–30 кБк/м<sup>3</sup> с суммарной неопределенностью, не превышающей 3 %.
2. Конструкция средства воспроизведения размера единиц ЭРОА радона, с определением измеряемой величины единичным измерением активности  $^{214}\text{Bi}$  при контроле сдвига равновесия в цепочке  $^{218}\text{Po} \rightarrow ^{214}\text{Pb} \rightarrow ^{214}\text{Bi}$ , позволяет получить контролируемую ЭРОА радона с суммарной неопределенностью, не превышающей 3 %.
3. Основными источниками неопределенности воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона, определяющими точность измерений, являются неопределенность измерения активности  $^{226}\text{Ra}$  в эманлирующем источнике (ОА) и пуассоновская неопределенность скорости счета в пике полного поглощения.
4. При передаче размера единицы измерения ОА радона основными источниками суммарной неопределенности являются неопределенности средства воспроизведения, пуассоновская неопределенность количества зарегистрированных импульсов и, для трековых детекторов, неопределенности связанные с процессом обработки материала детектора. При передаче размера единицы измерения ЭРОА радона доминирующие источники суммарной неопределенности обусловлены конструктивными особенностями поверяемого прибора.

### **Достоверность полученных результатов**

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

## **Рекомендации по использованию полученных результатов**

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

### **Апробация работы**

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

### **Публикации**

По теме диссертационной работы опубликовано 10 научных работ, 4 из них опубликованы в рецензируемых изданиях, рекомендованных ВАК. 3 статьи вошли в международную базу Web of Science и Scopus.

### **Структура и объем работы**

Диссертация состоит из введения, четырех глав, выводов, списка сокращений, списка использованных источников из 108 наименований. Работа изложена на 145 страницах, содержит 19 таблиц и 42 рисунка.

## **СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

Во **введении** обоснована актуальность темы исследования, сформулированы цель и задачи работы, представлены основные защищаемые положения, научная новизна и практическая значимость.

В **первой главе** проведен обзор литературных данных по выполненным на настоящее время работам по разработке средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона. Дана общая характеристика методов измерения ОА радона (рис. 1). Проанализированы преимущества и недостатки методов и средств измерения ОА радона, большинство из которых по принципу действия не имеют аналогов среди средств измерения ионизирующего излучения.

Рассмотрены методы измерения ЭРОА радона, основанные на отборе проб радиоактивных аэрозолей на аналитический фильтр с последующим измерением активности фильтра по  $\alpha$ -излучению. Показано, что во многих

практических ситуациях не требуется информация о значениях ОА отдельных ДПР радона. Достаточным является определение ЭРОА радона как основной контролируемой и нормируемой величины. Для этих целей хорошо зарекомендовал себя метод Кузнецова, требующий всего лишь одного измерения активности фильтра после определённой выдержки, необходимой для полного распада короткоживущих ДПР радона.

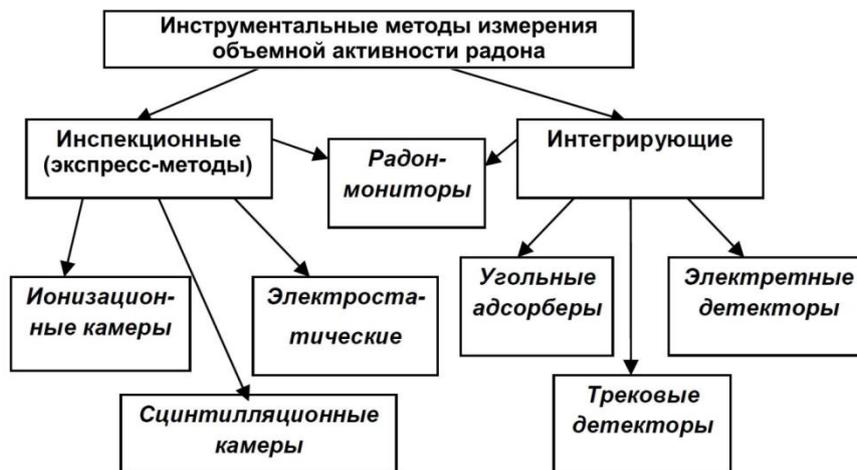


Рис. 1. Общая схема инструментальных методов измерений ОА радона

Проанализировано современное состояние метрологии ОА радона и его продуктов распада в Российской Федерации. На настоящий момент в Российской Федерации отсутствует Государственный специальный эталон объемной активности радона. В качестве эталонной установки, используемой как для утверждения типа средств измерений, так и для поверки средств измерений, используется рабочий эталон единицы объемной активности радона-222 РЭОАР-1 с основной относительной погрешностью измерений  $\pm 15\%$ , что нельзя признать удовлетворительной для эталона. В Российской Федерации функционирует Государственный первичный специальный эталон единицы объемной активности радиоактивных аэрозолей ГЭТ 39-2014. Неисключенная систематическая погрешность измерения активности пробы не превышает 5 %, среднее квадратичное отклонение результата измерений — не более 5 % в диапазоне объемных активностей  $2 \cdot 10^2 - 4 \cdot 10^5$  Бк/м<sup>3</sup>.

Дан анализ первичных эталонов объемной активности радона с использованием растворов <sup>226</sup>Ra. Принцип работы эталонов состоит в переводе <sup>222</sup>Rn, накопившегося в растворе радия, в калиброванный объем. Использование растворов <sup>226</sup>Ra в качестве первичного эталона активности радона представляет определенные технические и организационные сложности. Поэтому были разработаны методы, позволяющие определить активность <sup>222</sup>Rn не прибегая к радиевому стандарту.

Наиболее прецизионные системы, воспроизводящие активность радона с измерением абсолютным методом основаны на конденсации радона, напущенного в предварительно вакуумируемую измерительную камеру. В измерительной камере имеется площадка, охлаждаемая до температуры

жидкого азота и ниже. Весь поступивший в измерительную камеру радон конденсируется на охлаждаемой площадке. Измерение активности конденсированного  $^{222}\text{Rn}$  производится при помощи полупроводникового  $\alpha$ -детектора. Эффективность регистрации  $\alpha$ -частиц рассчитывается исходя из прецизионного определения геометрии измерений. После завершения измерений охлаждаемый участок отогревается, радон переходит в газообразное состояние и затем снова конденсируется в ампулу, охлаждаемую жидким азотом. Приводимые в различных работах значения суммарной стандартной неопределенности измерения активности  $^{222}\text{Rn}$  лежат в интервале от 0,14 до ~1%. Подобные первичные эталоны созданы и эксплуатируются во Франции, Германии, Швейцарии и в Южной Корее.

Столь высокая точность первичного эталона часто избыточна для решения практических задач. В связи с этим были разработаны первичные эталоны активности  $^{222}\text{Rn}$ , использующие более простые средства измерений, базирующиеся на косвенных измерениях активности радона. Так в Румынии была создана система, базирующаяся на косвенных измерениях активности радона с использованием  $\alpha$ -спектрометрии в жидком сцинтиляторе.

Оригинальная конструкция первичного эталона  $^{220}\text{Rn}$  и  $^{222}\text{Rn}$  была разработана в Германии. Принцип работы эталона основан на непрерывном контроле коэффициента эманирования путем одновременного измерения активности  $^{224}\text{Ra}$  и  $^{212}\text{Pb}$ , либо  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{212}\text{Pb}$  в твердом источнике. Суммарная неопределенность определения ОА радона в подобной системе оценивалась в 1,1 %, что уступает точности систем с конденсацией радона на охлаждаемом стержне, но вполне достаточно для поверки как образцовых, так и рабочих средств измерения.

Использование накопленного мирового опыта по разработке средств воспроизведения единиц измерения ОА и ЭРОА радона позволяют создать национальные системы поверки радоновых приборов, не зависящие от метрологических центров других стран. С учетом анализа мирового опыта сформулированы основные цели диссертационной работы.

Во **второй** главе описано планирование, методическое и техническое обеспечение экспериментальных исследований. Сформулированы требования к разработке средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона. Показано, что для реализации данных требований целесообразно разработать средства воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона с использованием единого средства измерений –  $\gamma$ -спектрометра на базе HPGe-детектора.

Даны технические описания основных элементов конструкции средства воспроизведения ОА и ЭРОА радона. Для измерения активности эманлирующих источников и аэрозольных фильтров в работе использован  $\gamma$ -спектрометр РКГ-01 с детектором из особо чистого германия.

В качестве источника радона были использованы специальные эманлирующие источники  $^{226}\text{Ra}$ , разработанные и изготовленные в Радиовом

институте им. В. Г. Хлопина (Санкт-Петербург). Активность источников составляла 3,96 и 35,3 кБк с суммарной неопределенностью 1,1 %, подтвержденной прямым сличением с двумя источниками  $^{226}\text{Ra}$ , изготовленными в национальном институте стандартов и технологий США и имеющих суммарную стандартную неопределенность активности 0,7 %. Эманиационная камера объемом  $2,1 \cdot 10^{-4} \text{ м}^3$  с источником  $^{226}\text{Ra}$ , устанавливалась непосредственно на HPGe-детектор. Градуировка чувствительности спектрометра проводилась по образцовым источникам ОСГИ-3. Для создания образцовой атмосферы с заданным значением ОА радона в относительно большом объеме, в качестве накопительной камеры был использован герметичный контейнер объемом  $5,04 \cdot 10^{-2} \pm 1 \cdot 10^{-4} \text{ м}^3$ .

Конструкция камеры, в которой генерировались аэрозоли дочерних продуктов распада радона, в целом аналогична конструкции, ранее используемой в Государственном первичном специальном эталоне единицы объемной активности радиоактивных аэрозолей ГЭТ 39-2014. Камера представляет собой два соединенных вместе пластиковых бокса, каждый объемом по  $1 \text{ м}^3$ . Отбор проб радиоактивных аэрозолей проводился через специальный переходный шлюз, позволяющий устанавливать и убирать пробоотборник с аэрозольным фильтром, не вскрывая бокс. Контроль концентрации аэрозольных частиц проводился при помощи диффузионного аэрозольного спектрометра (ДАС), модель 2702-М. В качестве вспомогательного оборудования при разработке и средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона были использованы радон-монитор AlphaGUARD PQ2000 и радиометры RAMON-01М и БДПА-01.

При разработке и создании средства воспроизведения единицы объемной активности ОА радона с непрерывным контролем коэффициента эманирования источника  $^{226}\text{Ra}$  могут использоваться две схемы построения конструкции: проточная и замкнутая. В проточной схеме воздух с минимальным содержанием радона продувается через эманиационную камеру, и ОА радона на выходе из камеры определяется такими факторами, как: активность источника  $^{226}\text{Ra}$ , коэффициент эманирования, скорость прокачки воздуха через эманиационную камеру. Преимуществом проточной схемы является то, что, изменяя скорость прокачки воздуха через камеру, можно получать различные значения ОА радона при неизменной активности источника  $^{226}\text{Ra}$ . К недостаткам проточной схемы можно отнести необходимость использования более активных источников  $^{226}\text{Ra}$  и наличие неопределенности, обусловленной возможными флуктуациями скорости прокачки воздуха через эманиационную камеру.

Преимуществом замкнутой схемы является возможность использования источника  $^{226}\text{Ra}$  с меньшей активностью. К недостаткам замкнутой схемы следует отнести то, что для достижения требуемого уровня ОА радона необходима выдержка, определяемая активностью источника, коэффициентом эманирования и объемом системы.

Конструкция средств воспроизведения ОА радона, работающих по проточной и замкнутой схемам, представлена на рис. 2 и 3.



Рис. 2. Схема средства воспроизведения единицы объемной активности радона, работающего в проточном режиме

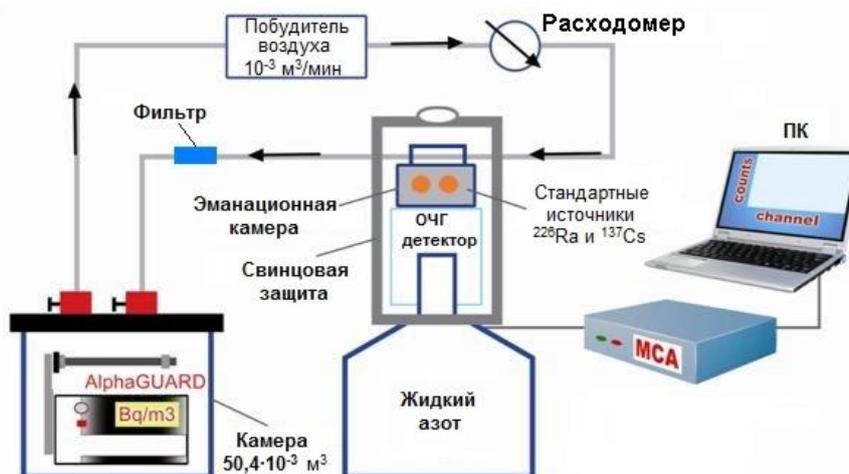


Рис. 3. Схема средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего в замкнутом режиме

В силу того, что активность  $^{226}\text{Ra}$  в источнике в ходе эксперимента не изменяется, при расчетах использовались паспортные значения, подтвержденные измерениями активности непосредственно перед началом экспериментов. Радон-монитор AlphaGUARD PQ2000, выполнял роль контрольного прибора. Контроль коэффициента эманации источника  $^{226}\text{Ra}$  производился как по линии излучения  $^{214}\text{Pb}$  ( $E_\gamma = 351,9$  кэВ), так и по линии излучения  $^{214}\text{Bi}$  ( $E_\gamma = 609,3$  кэВ). Для проверки качества градуировки гамма-спектрометра в области 600–700 кэВ, в которой находится излучение  $^{214}\text{Bi}$  ( $E_\gamma = 609,3$  кэВ) проводились измерения активности источника  $^{137}\text{Cs}$ , не используемого в процессе градуировки и имеющего близкую энергию излучения ( $E_\gamma = 661$  кэВ). Для определения численного значения чувствительности в области 351,9 кэВ была рассчитана чувствительность детектора по линии излучения  $^{133}\text{Ba}$  с  $E_\gamma = 356,0$  кэВ с поправочным коэф-

коэффициентом 1,008, полученным из подгоночного полинома. Коэффициент эманирования рассчитывался как

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

где  $A$  – активность радионуклида. Измерение значения коэффициента эманирования по двум различным продуктам распада радона обеспечивает дополнительную согласованность результатов. Для системы, работающей в проточном режиме, объемная активность  $^{222}\text{Rn}$  на выходе из эманационной камеры рассчитывалась как

$$C_{222_{Rn}} = \frac{A(226_{Ra}) \cdot \chi \cdot \lambda_{Rn}}{v}, \quad (2)$$

где  $\lambda_{Rn}$  – постоянная распада  $^{222}\text{Rn}$  ( $2,09 \cdot 10^{-6} \text{с}^{-1}$ );  $v$  – скорость прокачки воздуха,  $\text{м}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ . Для системы, работающей в замкнутом режиме, измерение спектра гамма-излучения эманлирующего источника  $^{226}\text{Ra}$  производилось непрерывно в течение всего эксперимента с записью показаний с интервалом 24 ч. Значения ОА радона в замкнутой системе были рассчитаны по формуле:

$$C_{Rn}(t) = \frac{A_{Ra} \cdot \chi}{V} (1 - \exp(-\lambda_{Rn} t)), \quad (3)$$

где  $t$  – время накопления радона в системе;  $V$  – объем системы. В ситуации, когда в силу различных факторов (прежде всего, в результате изменения окружающей температуры) может иметь место нестабильность коэффициента эманирования  $\chi$ , изменение ОА радона во времени может быть рассчитано как

$$\frac{dC_{Rn}}{dt} = -\lambda_{Rn} C_{Rn} + \frac{A_{Ra} \cdot \lambda_{Rn} \cdot \chi(t)}{V}. \quad (4)$$

При этом текущее значение ОА радона может быть рассчитано путем интегрирования выражения (7)

$$C_{Rn}(t) = \int_0^t \frac{dC_{Rn}(t')}{dt'} dt'. \quad (5)$$

При проведении измерений объемной активности продуктов распада радона в жилищах или на рабочих местах часто достаточно, чтобы прибор адекватно измерял нормированную величину, а именно – ЭРОА радона. Поэтому при разработке средства воспроизведения единицы ЭРОА радона было предложено использовать метод Кузнецца, заключающийся в единичном измерении активности фильтра. Особенностью метода Кузнецца является то, что после выдержки в течение 30–50 мин после окончания отбора пробы активность  $^{214}\text{Bi}$  на фильтре пропорциональна ЭРОА радона практически вне зависимости от сдвига равновесия в цепочке  $^{218}\text{Po} \rightarrow ^{214}\text{Pb} \rightarrow ^{214}\text{Bi}$ . Это позволяет определять ЭРОА радона путем единственного измерения активности  $^{214}\text{Bi}$  при помощи  $\gamma$ -спектрометра. Были рассчитаны значения коэффициента Кузнецца для произвольного времени отбора пробы и выдержки между окончанием отбора пробы и началом из-

мерений при различных значениях сдвига равновесия в цепочке  $^{218}\text{Po} \rightarrow ^{214}\text{Pb} \rightarrow ^{214}\text{Bi}$ .

В третьей главе описаны характеристики разработанных средств воспроизведения единиц ОА и ЭРОА радона. Для средства, работающего в проточном режиме, стандартная неопределенность, оцененная по типу А, измерения активности  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  по линиям излучения 352 и 609 кэВ (соответственно), определяемая количеством импульсов в пике полного поглощения и количеством импульсов в «пьедестале» под пиком, составила для  $^{214}\text{Pb}$   $\tilde{u}_A^{\gamma Pb} = 1,8 \%$  и для  $^{214}\text{Bi}$   $\tilde{u}_A^{\gamma Bi} = 1,6 \%$ . При измерениях активности  $^{214}\text{Pb}$  стандартная неопределенность, оцененная по типу В, была оценена как  $\tilde{u}_B^{\varepsilon}(Pb) = \frac{\theta_{\text{сис}}(Ba-133)}{\sqrt{3}} = 0,92 \%$ , где  $\theta_{\text{сис}}(Ba - 133) = 1,6 \%$  ( $P = 0,99$ ) – паспортная погрешность определения активности источника  $^{133}\text{Ba}$ , по которому оценивалась чувствительность  $\gamma$ -спектрометра при  $E_{\gamma} = 351,9$  кэВ. Стандартная неопределенность, оцененная по типу В, измерения активности  $^{214}\text{Bi}$  в диапазоне 600–700 кэВ была оценена по результатам измерения активности образцового источника  $^{137}\text{Cs}$ . Разница между измеренной активностью и паспортной активностью источника  $^{137}\text{Cs}$  с поправкой на радиоактивный распад составила  $\tilde{u}_B^{\text{изм}}(\text{Cs}) = 0,12 \%$ . Стандартная неопределенность активности  $^{214}\text{Bi}$ , оцененная по типу В, была рассчитана как  $\tilde{u}_B^{\varepsilon}(\text{Bi}) = \sqrt{[\tilde{u}_B^{\text{изм}}(\text{Cs})]^2 + [\tilde{u}_B^{\text{пасп}}(\text{Cs})]^2} = 1,1 \%$ . Стандартная неопределенность измерения активности  $^{226}\text{Ra}$  в источнике, была оценена на основании собственных измерений  $\tilde{u}_B(\text{Ra}) = 1,1 \%$ . Стандартная неопределенность, скорости прокачки воздуха через эманационную камеру, определяется погрешностью образцового барабанного счетчика РГ7000 и была оценена как  $\tilde{u}_B^{\text{прок}} = 1 \%$ . Среднее значение коэффициента эманирования составило  $\chi = 0,441$ .

Возможные источники снижения неопределенности средства воспроизведения единицы ОА радона: неопределенность измерения активности  $^{226}\text{Ra}$ ,  $\tilde{u}_B(\text{Ra})$ , неопределенность скорости счета в пике полного поглощения,  $\tilde{u}_A^{\gamma}$ . Уменьшение стандартной неопределенности измерения активности  $^{226}\text{Ra}$  с 1,1 до 0,8 % и увеличение времени набора спектра для измерения активности в 4 раза, позволяет получить значение суммарной неопределенности ОА радона для источника, работающего в проточном режиме, равное 2,6 %, что может быть признано приемлемым значением. Наблюдаемое различие между показаниями контрольного радон-монитора и значениями ОА радона, рассчитанными по результатам измерений на  $\gamma$ -спектрометре находилось в пределах суммарной неопределенности определения ОА радона и расширенной неопределенности градуировки прибора AlphaGUARD, составляющей по итогам поверки 5,4 %.

Расчет суммарной неопределенности средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего в замкнутом режиме, производился аналогично расчетам, выполненным ранее. Для заданной активности источника и длительности набора спектра стандартная неопределенность составила

для  $^{214}\text{Pb}$   $\tilde{u}_A^{\gamma Pb} = 0,75 \%$  и для  $^{214}\text{Bi}$   $\tilde{u}_A^{\gamma Bi} = 0,66 \%$ . Среднее значение коэффициента эманирования  $\chi$  в ходе эксперимента составило 0,370. Суммарная неопределенность ОА радона при измерении коэффициента эманирования как по  $^{214}\text{Pb}$ , так и по  $^{214}\text{Bi}$  составила  $\tilde{u}_c^{Rn}(Pb) = \tilde{u}_c^{Rn}(Bi) = 3,7 \%$ . Основной вклад в суммарную стандартную неопределенность вносит неопределенность активности эманлирующего источника  $^{226}\text{Ra}$ . Вклад отдельных стандартных неопределенностей в суммарную стандартную неопределенность (бюджет неопределенности) ОА радона представлен в табл. 1.

Таблица 1 – Бюджет неопределенностей для средств воспроизведения единицы ОА радона

Стандартная неопределенность	Вклад в суммарную неопределенность $\tilde{u}_c^{Rn}, \%$	
	Измерения по $^{214}\text{Pb}$	Измерения по $^{214}\text{Bi}$
Проточный режим		
скорости счета в пике поглощения, $\tilde{u}_A^{\gamma}$	37,9	31,2
эффективности регистрации, $\tilde{u}_B^{\varepsilon}$	9,9	14,9
измерения активности $^{226}\text{Ra}$ , $\tilde{u}_B(Ra)$	44,9	46,4
скорости прокачки, $\tilde{u}_B^{\text{прок}}$	7,3	7,5
Замкнутый режим		
скорости счета в пике поглощения, $\tilde{u}_A^{\gamma}$	12,3	9,1
эффективности регистрации, $\tilde{u}_B^{\varepsilon}$	18,6	25,4
активности $^{226}\text{Ra}$ , $\tilde{u}_B(Ra)$	66,4	62,8
объема накопительной камеры, $\tilde{u}_B^V$	2,7	2,7

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

В качестве основной идеи построения средства воспроизведения единицы ЭРОА радона было предложено использовать метод Кузнецца, заключающийся в единичном измерении активности фильтра через несколько десятков минут после окончания отбора пробы.

Для оценки сдвига равновесия между ДПР радона в боксе был поставлен специальный эксперимент. Было получено, что среднее значение сдвига равновесия в боксе составляет  $^{218}\text{Po}:^{214}\text{Pb}:^{214}\text{Bi}=1:0,27:0,10$ . Была рассчитана систематическая погрешность использования метода Кузнеця, обусловленная отклонением сдвига равновесия от данного соотношения  $\theta_{\text{сист}}^F = 2,5 \%$  и стандартная неопределенность данной величины  $\tilde{u}_B^K = \frac{\theta_{\text{сист}}^F}{\sqrt{3}} = 1,4 \%$ .

Данную неопределенность можно устранить, если проводить замеры сдвига равновесия в каждом эксперименте по отбору радиоактивных аэрозолей на фильтр. Стандартная неопределенность измерения активности  $^{214}\text{Bi}$  по  $\gamma$ -излучению в диапазоне 600–700 кэВ, оцененная по типу В, была оценена по результатам измерения активности образцового источника  $^{137}\text{Cs}$  и рассчитана как  $\tilde{u}_B^\varepsilon(Bi) = \sqrt{[\tilde{u}_B^{\text{изм}}(\text{Cs})]^2 + [\tilde{u}_B^{\text{насп}}(\text{Cs})]^2} = 1,1 \%$ . Систематическая погрешность, обусловленная погрешностью измерения скорости отбора аэрозолей составляет  $\tilde{u}_B^{\text{прок}}=1 \%$ . Для используемых в эксперименте интервалов между окончанием отбора пробы и началом измерений на  $\gamma$ -спектрометре  $\sim 4000$  с, стандартная неопределенность измерения активности  $^{214}\text{Bi}$  составила  $u_A^\gamma = 3,2 \%$ . Суммарная стандартная неопределенность измерения ЭРОА радона составила  $\tilde{u}_c^{\text{ЭРОА}} = 3,8 \%$ . Бюджет неопределенности средства воспроизведения ЭРОА радона представлены в табл. 2.

Таблица 2 – Бюджет неопределенностей для средств воспроизведения единицы ЭРОА радона

Стандартная неопределенность	Вклад в суммарную неопределенность, %
скорости счета в пике поглощения, $\tilde{u}_A^\gamma$	71,0
эффективности регистрации, $\tilde{u}_B^\varepsilon(Bi)$	8,5
коэффициента Кузнеця, $\tilde{u}_B^K$	13,6
скорости прокачки воздуха через фильтр, $\tilde{u}_B^{\text{прок}}$	6,9

Для проверки работы средства воспроизведения единицы ЭРОА радона была поставлена специальная серия экспериментов. Среднее значение отношения  $\text{ЭРОА}_\alpha/\text{ЭРОА}_\gamma$  составило  $0,89 \pm 0,05$  (указано стандартное отклонение среднего значения). Наблюдаемая разница между измерениями на  $\alpha$ -радиометре и  $\gamma$ -спектрометре может быть объяснена погрешностями определения чувствительности  $\alpha$ -радиометра и численного значения поправок на самопоглощение в аэрозольном фильтре. Доминирующий вклад в суммарную стандартную неопределенность  $\tilde{u}_c^{\text{ЭРОА}}$  вносит стандартная неопределенность скорости счета в пике полного поглощения  $\tilde{u}_A^\gamma$ . Она может быть снижена до  $\tilde{u}_A^\gamma = 1,6 \%$  за счет повышения скорости отбора пробы и уменьшении интервала между окончанием отбора пробы и началом изме-

рений. При точном определении сдвига равновесия между ДПР радона при каждом отборе пробы стандартная неопределенность оценки коэффициента Кузнецца  $\tilde{u}_B^K$  становится равной нулю. В результате может быть достигнута суммарная стандартная неопределенность измерений  $\tilde{u}_c^{\text{ЭРОА}} = 2,2 \%$ , что является величиной, достаточной для обеспечения работы средства воспроизведения ЭРОА радона.

В четвертой главе рассмотрены методы передачи размера единицы измерения ОА и ЭРОА радона от средств воспроизведения единиц к поверяемым средствам измерений. Для средства воспроизведения единиц ОА радона, работающего в проточном режиме, точность аттестации образцовых средств измерений рассмотрена на примерах приборов AlphaGUARD и RAD-7. Стандартная неопределенность поверки вторичного эталона на базе приборов AlphaGUARD и RAD-7 может быть оценена как

$$u_c^{\text{пов}} = \sqrt{\tilde{u}_c^{Rn^2} + \tilde{u}_A^{Rn^2}}. \quad (6)$$

При ОА радона, равной  $500 \text{ Бк/м}^3$  значения стандартной неопределенности для этих приборов составят  $\tilde{u}_A^{Rn} = 2,6$  и  $5,1 \%$  соответственно. При ОА радона  $1700 \text{ Бк/м}^3$ , случайная неопределенность часовых измерений  $\tilde{u}_A^{Rn}$  снижается до  $1,4$  и  $2,7 \%$ . Увеличение длительности поверки с  $1$  до  $4$  ч снизит величину  $\tilde{u}_A^{Rn}$  вдвое. Ранее было продемонстрировано, что возможно достижение суммарной стандартной неопределенности ОА радона на выходе средства воспроизведения  $\tilde{u}_c^{Rn} = 2,9 \%$ . Таким образом, суммарная неопределенность при поверке составит для прибора AlphaGUARD  $u_c^{\text{пов}} = 3,2 \%$ , а для прибора RAD-7 –  $3,9 \%$ , что может считаться приемлемым результатом для вторичного эталона, по которому будет осуществляться поверка рабочих средств измерений. Для прибора AlphaGUARD доминирующий вклад в суммарную стандартную неопределенность  $u_c^{\text{пов}}$  вносит суммарная стандартная неопределенность средства воспроизведения. Для прибора RAD-7 оба источника неопределенностей вносят сопоставимый вклад.

Рассмотрена неопределенность, с которой могут быть аттестованы трековые детекторы радона. Оценен бюджет неопределенностей при поверке трековых детекторов (табл. 3). Основными источниками неопределенности при поверке трековых детекторов являются неопределенности, обусловленные процессами обработки материала детектора и автоматического счета количества образовавшихся треков  $\tilde{u}_A^{\text{трек}} = 25 \%$  для материала LR-115 и  $\tilde{u}_A^{\text{трек}} = 6 \%$  для CR-39.

Поверка трековых детекторов на средстве воспроизведения единицы ОА радона, работающем в замкнутом режиме, не имеет принципиальных отличий от поверки на устройстве, работающем в проточном режиме.

Поверка электронных средств измерения ОА радона, например, приборов AlphaGUARD или RAD-7, может осуществляться двумя способами. В первом способе поверки поверяемый прибор размещается внутри накопительной камеры, и производятся измерения ОА радона в период накоп-

ления радона в камере. Основным источником неопределенностей при поверке образцовых средств измерений будет являться суммарная стандартная неопределенность средства воспроизведения единицы ОА радона  $\tilde{u}_c^{Rn}$ .

Таблица 3 – Бюджет неопределенностей при поверке трековых детекторов

Стандартная неопределенность	Вклад в суммарную неопределенность $\tilde{u}_c^{Rn}$ , %	
	Детекторы LR-115	Детекторы CR-39
средства воспроизведения ОА радона $\tilde{u}_c^{Rn}$	1,3	11,1
пуассоновская неопределенность, $\tilde{u}_A^{Rn}$ ,	2,4	21,2
по типу А, связанная с процессом обработки материала трекового детектора, $u_A^{\text{трек}}$ ,	94,0	47,6
по типу В, связанная с процессом обработки материала трекового детектора, $u_B^{\text{трек}}$	2,3	20,1

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

$$A_{Rn}(t) = A_{Ra} \cdot \chi(1 - \exp(-\lambda_{Rn}t)). \quad (7)$$

В дальнейшем накопительная камера может быть присоединена к другой камере с известным объемом, и радон может быть переведен туда путем многократной циркуляции воздуха через накопительную камеру и присоединенный объем. В данном случае накопительная камера с содержащимся в ней радоном является эталонным источником активности радона, полученным непосредственно на средстве воспроизведения ОА радона и имеющим такую же суммарную стандартную неопределенность  $\tilde{u}_c^{Rn} = 2,9\%$ .

Поверка приборов для измерения ЭРОА радона состоит в одновременном отборе пробы на поверяемый и образцовый приборы, в проведении измерений и сопоставлении результатов. Основным условием является идентичность и представительность отбора пробы на эталонный и поверяемый приборы. Предложенный в настоящей работе вариант средства воспроизведения единицы ЭРОА радона позволяет проводить измерения по данной схеме. Показано, что скорость отбора пробы на поверяемый прибор, определяемая паспортными данными поверяемого прибора, не всегда обеспечивает требование требуемой представительности пробы при поверке. Предложена схема поверки с использованием средства воспроизведения единицы ЭРОА радона методом Кузнецца и измерением сдвига равновесия в цепочке распада  $^{218}\text{Po} \rightarrow ^{214}\text{Pb} \rightarrow ^{214}\text{Bi}$  при синхронном отборе пробы на поверяемый прибор пробоотборник средства воспроизведения ЭРОА радона.

## Основные результаты работы

1. Дано обоснование принципа работы и конструкции средства воспроизведения единицы ОА радона, работающего как в проточном, так и в замкнутом режиме с непрерывным контролем коэффициента эманирования по отношению активностей  $^{214}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$  и  $^{214}\text{Bi}/^{226}\text{Ra}$  в источнике. Создан прототип специального эталона ОА радона, позволяющий осуществлять при контроле косвенным методом воспроизведение ОА радона в диапазоне 300–30 000 Бк/м<sup>3</sup> с суммарной стандартной неопределенностью, не превышающей 2,9 %.

2. Показано, что основными источниками суммарной стандартной неопределенности средства воспроизведения ОА радона, определяющими точность измерений, являются стандартная неопределенность активности  $^{226}\text{Ra}$  в эманлирующем источнике и неопределенность скорости счета в пике полного поглощения.

3. Дано обоснование принципа работы и конструкции средства воспроизведения единицы ЭРОА радона с использованием единичного измерения активности  $^{214}\text{Bi}$  на фильтре и расчетом значения ЭРОА радона по методу Кузнецова с учетом сдвига равновесия в цепочке распада ДПР радона  $^{218}\text{Po} \rightarrow ^{214}\text{Pb} \rightarrow ^{214}\text{Bi}$ . Доказана принципиальная возможность обеспечить суммарную стандартную неопределенность, не превышающую 2,2 %.

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

5. Показано, что при передаче размера единицы измерения ОА радона электронным средствам измерений основными источниками суммарной неопределенности являются неопределенность средства воспроизведения и неопределенность, обусловленная пуассоновским распределением количества зарегистрированных импульсов. Для трековых детекторов основными источниками неопределенности являются неопределенности, связанные с процессом обработки материала трекового детектора.

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

## Перспективы дальнейшей разработки темы

Точность средств воспроизведения единицы ОА радона может быть повышена за счет разработки эманлирующих источников  $^{226}\text{Ra}$  с активностью 1–500 кБк, суммарной неопределенностью измерения активности 0,1–0,3 % и коэффициентом эманирования 0,7–0,8. Точность средства воспроизведения единицы ЭРОА радона может быть повышена за счет повышения эффек-

тивности регистрации излучения  $^{214}\text{Bi}$ , осевшего на фильтре. Область использования данного средства может быть существенно расширена при включении в его состав генераторов аэрозольных частиц с заданной дисперсностью и непрерывным контролем концентрации генерируемых аэрозолей.

## СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

### Статьи, опубликованные в рецензируемых научных журналах, определенных ВАК:

1. Mostafa Y.A.M. Calibration system for radon EEC measurements/ Mostafa Y.A.M., M. Vasyanovich, M. Zhukovsky, N. Zaitceva // Radiation Protection Dosimetry. – 2015. – V. 164, No .4. – P. 587-590; 0,7 п.л. / 0,4 п.л. (*Web of Science, Scopus*)
2. Mostafa Y.A.M. Prototype of a primary calibration system for measurement of radon activity concentration / Mostafa Y.A.M., M. Vasyanovich, M. Zhukovsky // Applied Radiation and Isotopes. – 2016. – V. 107. – P. 109–112; 0,93 п.л. / 0,5 п.л. (*Web of Science, Scopus*)
3. Mostafa Y.A.M. A primary standard source of radon-222 based on the HPGe detector / Mostafa Y.A.M., M. Vasyanovich, M. Zhukovsky// Applied Radiation and Isotopes. – 2017. – V. 120. – P. 101–105; 0,9 п.л. / 0,5 п.л. (*Web of Science, Scopus*)
4. Мостафа М.Ю. Прототип первичного эталона объемной активности радона / М.Ю. Мостафа, М.В. Жуковский, М.Е. Васянович //АНРИ. – 2017. – №3 (90). – С. 2–15; 1,2 п.л. / 0,6 п.л.

### Публикации в других научных изданиях

5. Mostafa Y.A. Mostafa, Atef El-Taher. Radon Standard Source in Different Countries with Different Principals // Journal of Radiation and Nuclear Applications. – 2019. – V. 4, No 1. – P. 35–41. 1,0 п.л. / 0,7 п.л.
6. Mostafa Y.A.M. Problems of metrological support radon measurements / Mostafa Y.A.M, M.E. Vasyanovich, N.S. Zaitseva// I International Youth Scientific Conference. Innovations. Physics. Technologies. IPT-2014. Book of Abstracts. – 2014. – Ekaterinburg, Russia. – P. 149. 0,1 п.л. / 0,05 п.л.
7. Mostafa Y.A.M. Prototype of primary standard source of radon activity concentration / Mostafa Y.A.M., M.Vasyanovich, M. Zhukovsky// The 2nd International Conference “Radon in the Environment 2015”. – Book of Abstracts. –2015. – Kraków, Poland. – P. 106. 0,1 п.л. / 0,05 п.л.
8. Mostafa M. Prototype of radon concentration standard with closed system/M. Mostafa, M. Vasyanovich, M. Zhukovsky// Fourth International Conference on Radiation and Applications in Various Fields of Research (RAD 2016). – Book of Abstracts. – 2016. – Nis, Serbia. – P. 488. 0,1 п.л. / 0,05 п.л.

9. Mostafa M. Radon and radon progeny concentration primary standard prototype on the base of high purity germanium detector /M. Mostafa, M. Vasyanovich, M. Zhukovsky// 8-th International Conference on Protection against Radon at Home and at Work. Book of abstracts. Prague. – 2016. – P. 23. 0,1 п.л. / 0,05 п.л.

10. Mostafa Y.A.M HPGe-Detector as the base of radon concentration standard source / Mostafa Y.A.M, M.E. Vasyanovich// III International Youth Scientific Conference: Innovations, Physics, and Technologies. IPT-2016. Book of abstracts. 2016. – Ekaterinburg, Russia. – P. 31. 0,1 п.л. / 0,05 п.л.