

Виктория Сергеевна Васильева – научный сотрудник лаборатории физико-химии полимерных материалов и природных органических соединений НИИПФП им. А.Н. Севченко БГУ.

Александр Сергеевич Хатенко – старший научный сотрудник лаборатории физико-химии полимерных материалов и природных органических соединений НИИПФП им. А.Н. Севченко БГУ.

УДК 539.12.074

О.М. АНШАКОВ, Д.И. ЛОБАЧ, С.В. МАТВЕЙЧУК, И.И. УГОЛЕВ, В.А. ЧУДАКОВ

ИССЛЕДОВАНИЕ ГАММА-РАДИОМЕТРИЧЕСКОЙ МЕТОДИКИ ИЗМЕРЕНИЯ РАДОНА В ВОЗДУХЕ С ПРОБОПОДГОТОВКОЙ НА УГЛЕРОДНЫХ СОРБЕНТАХ

There are presented the description of experimental installation and results of model investigations of procedure for measuring of radon volume activity in soil air by scintillation gamma-radiometers as RKG-02A with using of sorption on fibre carbon sorbents as AUT-M.

В радоновом мониторинге широкое распространение получил метод, основанный на регистрации гамма-излучения дочерних продуктов распада (ДПР) радона, накопленного в углеродном сорбенте [1]. Метод реализуется с помощью стандартной гамма-радиометрической аппаратуры, дополненной специальным инструментально-методическим обеспечением. В него входят пробоотборные устройства, градуировочные меры активности и методики выполнения измерений (МВИ), ориентированные на определенные радоновые исследования и тип применяемых гамма-радиометров/спектрометров. Дополнительные инструментальные параметры определяют при испытаниях конкретной МВИ.

В рамках проекта по созданию методического обеспечения мониторинга радоноопасных районов Беларуси разработана МВИ радона-222 в почвенном воздухе на сцинтилляционных гамма-радиометрах отечественного производства типа РКГ-02А (НП УП «Атомтех») [2] с предварительным отбором и подготовкой проб на волокнистых углеродных сорбентах [3].

В качестве сорбента выбрано регенерируемое углеродное волокно марки АУТ-М, имеющее по сравнению с традиционным гранулированным активированным углем повышенную сорбционную емкость. Накопление радона осуществляется путем аспирации исследуемого воздуха через специальный коллектор с сорбентом (адсорбер). Для аспирации используется насос постоянного действия с равномерным расходом воздуха, контролируемым ротаметром. Объемную активность (ОА) радона A_v определяли по формуле

$$A_v = \frac{Q_c \exp(\lambda T)}{\nu \tau K_c},$$

где Q_c – активность радона в сорбенте, Бк; λ – постоянная распада радона-222, равная $0,00755 \text{ ч}^{-1}$; ν – производительность насоса, $\text{м}^3/\text{мин}$; T – интервал времени между окончанием пробоотбора воздуха и началом измерения активности радона в сорбенте, ч; τ – продолжительность пробоотбора, мин; K_c – коэффициент сорбции радона, отн. ед.

Значение Q_c находили по показаниям радиометра \tilde{A}_p : $Q_c = R \tilde{A}_p$, где R – поправочный коэффициент, определяемый при градуировке прибора по образцовым мерам активности.

Для реализации МВИ необходимо нормировать инструментальные параметры R и K_c , точность определения которых учитывается наряду с пас-

портными (номинальными) метрологическими данными используемых средств измерения.

Поскольку для приборов типа РКГ-02А основной измеряемой величиной является активность A_p радионуклида Cs-137 (Бк/дм³), а по рассматриваемой МВИ результат радиометрических измерений выражается в единицах активности Q_c (Бк) равновесного радона-222 в сорбенте, то характеристику преобразования радиометра можно представить в виде

$$Q_c = R\bar{A}_p = \frac{S_c}{S_r} V\bar{A}_p, \quad (1)$$

где V – объем сорбента в коллекторе, дм³; S_c и S_r – чувствительность радиометра к Cs-137 и равновесным ДПР радона Pb-214+Bi-214 (с⁻¹·Бк⁻¹·дм³) соответственно.

Для градуировки радиометра используют комплект объемных мер активности специального назначения (ОМАСН) с известным содержанием Q_{co} радионуклида Ra-226 и его равновесных ДПР: Rn-222, Pb-214 и Bi-214. ОМАСН изготовлены на основе образцов углеродного волокна АУТ-М, пропитанных растворами Ra-226 различной активности и герметично упакованных в штатные измерительные контейнеры радиометра – сосуды Маринелли. Погрешность активности Q_{co} ОМАСН – не более 10 % с доверительной вероятностью 0,95.

Таблица 1

Результаты градуировки радиометра РКГ-02А

Q_{co} , Бк	$\bar{A}_{po} \pm \hat{\sigma}_{po}$, Бк/дм ³	$\bar{K}_r \pm \sigma_k$, дм ⁻³	$\bar{R} \pm \sigma_r$, 10 ⁻² ·дм ³	$\bar{\Delta}_p \pm \sigma_{\Delta}$, Бк·дм ⁻³	$\bar{\Delta}_q$, Бк
100	298 ± 20	2,88 ± 0,03	34,7 ± 0,4	23,0 ± 11,5	± 4
500	1489 ± 12				
1000	2896 ± 26				

Результаты градуировочных измерений с учетом их временной стабильности представлены в табл. 1, где даны средние арифметические значения показаний радиометра \bar{A}_p и их средние квадратические отклонения (СКО) σ_{po} , рассчитанные по данным ежедневных наблюдений ОМАСН в течение двух недель. Здесь же приведены коэффициенты линейной градуировочной характеристики (ГХ) радиометра по ОМАСН: $\bar{A}_p = K_r Q_{co} + \Delta_p$, где K_r – наклон и Δ_p – сдвиг нуля ГХ. Погрешность коэффициентов ГХ выражена эмпирическими оценками их СКО. С учетом среднего значения наблюдаемой систематической погрешности ОМАСН $\bar{\Delta}_q = \bar{\Delta}_p / K_r$ можно записать скорректированную ГХ: $\bar{A}_{po} = K_r (Q_{co} + \bar{\Delta}_q)$, откуда параметр $R=1/K_r$.

Активность Q_c равновесных ДПР и, следовательно, радона в сорбенте определяется в соответствии с (1) по прямым показаниям радиометра $A_p^* = \bar{A}_p \pm 2\sigma_p$, включающим среднее значение результата отсчета \bar{A}_p и его статистическую погрешность с доверительной вероятностью $P=0,95$ и σ_p – СКО единичного измерения (наблюдения), обусловленное вероятностной природой накопления счетных импульсов при регистрации ионизирующего излучения: $Q_c = R\bar{A}_p \pm \Delta Q_c$, где ΔQ_c – результирующая погрешность радиометрии сорбента. Погрешность ΔQ_c является композицией случайной $\epsilon(P)$ и

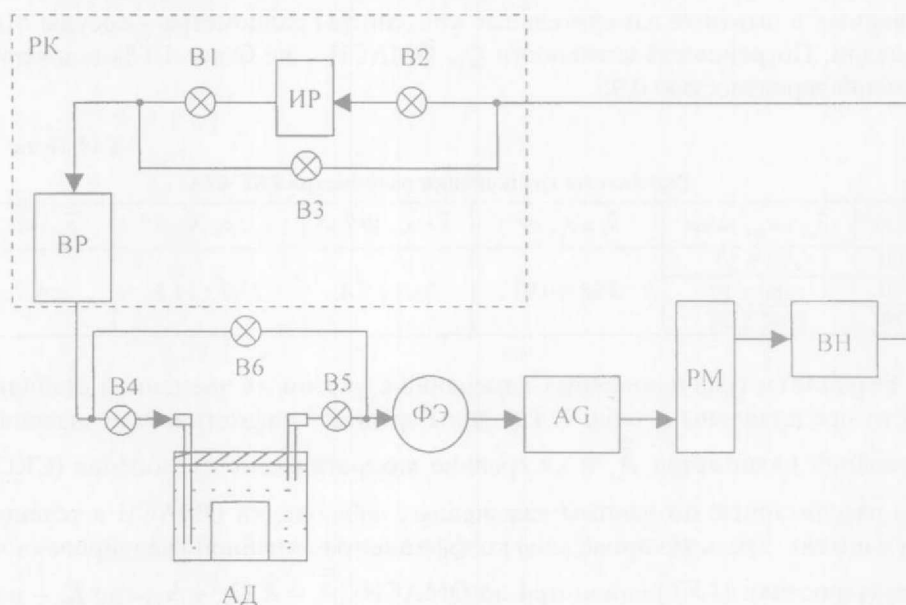
неисключенной систематической $\theta(P)$ погрешностей при заданной доверительной вероятности P :

$$\Delta Q_c = \eta[\varepsilon(P) + \theta(P)], \quad (2)$$

где η – коэффициент, зависящий от соотношения $\theta(P)/\varepsilon(P)$ [4].

Доверительные границы случайной и систематической составляющих вычисляются по формулам $\varepsilon(P) = Z\tilde{A}_p R \sqrt{\delta^2 A_p + \delta^2 R}$, $\theta(P) = ZR\sigma_\Delta$, где Z – нормированный квантиль нормального распределения для заданной вероятности P ; $\delta\tilde{A}_p = \sigma_p/\tilde{A}_p$ – относительное СКО единичного отсчета; $\delta R = \sigma_r/R$ – относительная погрешность градуировки; δ_r и δ_Δ – эмпирические оценки СКО параметров R и Δ_p .

Из (2) можно определить погрешность однократных измерений в области низких активностей ($Q_c \leq 50$ Бк) при сравнимых составляющих $\varepsilon(P)$ и $\theta(P)$ ($\eta_p \leq 0,81$) и $\delta\tilde{A}_p \approx \delta R$, $\delta\tilde{A}_p \leq 0,05$: $\Delta\tilde{Q}_c = (0,12Q_c + 6,5)$ Бк. При указанных условиях и допустимой погрешности $\Delta Q_c/Q_c = 0,5$ нижний предел диапазона радиометрии радона в сорбенте составляет 17 Бк.



Структурная схема экспериментальной установки для моделирования пробоотбора воздуха на сорбент и определения коэффициента сорбции:

ПК – радоновая камера; ВР – воздушный резервуар; АД – адсорбент; ФЭ – фильтрующий элемент; АГ – радонметр; РМ – ротаметр; ВН – воздушный насос; ИР – источник радона; В1, ..., В6 – вентили

Моделирование пробоподготовки и определение коэффициента сорбции осуществляются с помощью экспериментальной установки (рисунок). Для газовых коммуникаций использованы резиновые шланги. Радоновая камера состоит из воздушного резервуара объемом 10,3 дм³, его системы очистки (на рисунке не показана) и накопления. Для очистки газовой системы используется безрадоновый (состаренный) воздух из отдельного баллона. Заполнение системы радоном осуществляется с помощью источника радона ИР – барботера с образцовым радиоактивным раствором (ОРР) Ra-226 или сухого источника на основе пропитанного ОРР Ra-226 волокна ФИБАН в герметичном контейнере. Для компараторных измерений ОА радона в воз-

духе системы используется радонмонитор AlphaGUARD Mod. PQ2000PRO с пределом основной погрешности $\pm 30\%$. Прокачка воздуха со скоростью $1 \text{ дм}^3/\text{мин}$ контролируется с помощью ротаметра поплавкового типа РМ-А-0,063 с погрешностью не более 4% .

Перед началом измерений в воздухе газовой системы экспериментальной установки (исключая адсорбер) устанавливается равномерная по структурным элементам системы АО радона A_0 . При этом выполняется последовательность операций.

В начальном положении вентили В3, В4, В5 закрыты, а В1, В2 – открыты. Включаются цикл измерений радонмонитора и воздушный насос. Подача радона из источника в газовую систему продолжается 30–40 мин, после чего открывается вентиль В3, а В1 и В2 закрываются. В последующие 30–40 мин прокачкой воздуха по замкнутому контуру в рабочем объеме системы устанавливается равномерная активность A_0 , постоянно контролируемая с помощью радонмонитора, показания которого составляют серию из 5–10 непрерывных 10-минутных наблюдений. После установления равномерной ОА и одновременно с получением очередного (и последнего) отсчета радонмонитора ОА \bar{A}_0 , закрывается вентиль В6 и открываются В4, В5. В этом режиме воздух в системе проходит через адсорбер объемом $0,5 \text{ дм}^3$, изготовленный аналогично ОМАСН в геометрии штатных сосудов Мариелли. Внутри герметичной оболочки сосуда находится равномерно распределенный по объему сорбент массой $120 \pm 3 \text{ г}$. Съёмная крышка адсорбера с противоположных сторон снабжена входным и выходным патрубками.

Таблица 2

Результаты измерений и расчетные данные по сорбентам

$\bar{A}_{r,0} \pm \sigma_r$, кБк/м ³	$\bar{Q}_n \pm \sigma_n$, Бк	$K_{сн} \pm \sigma_{к}$, отн. ед.	$\bar{K}_{сн} \pm \sigma_{кс}$, отн. ед.	$\bar{A}_{ро} \pm \sigma_{ро}$, кБк/дм ³	$Q_{ро} \pm \Delta Q_{ро}$, Бк	$\delta_{ср}$, %	$\delta_{ср}^*$, %
50±2	540±22	0,99±0,01	0,980 ± ± 0,015	1623 ± 16	563 ± 74	+4,3	-3,0
38±2	417±22	0,99±0,01		1063 ± 20	369 ± 51	-12	-13
32±1	352±12	0,99±0,01		1129 ± 28	392 ± 54	+11	+9,4
23±1	250±11	0,99±0,01		704 ± 6	244 ± 36	-2,4	-5,2
3,0±0,2	33±3	0,99±0,01		120 ± 7	42 ± 12	+27	+6,1
3,0±0,3	32±3	0,96±0,01		126 ± 12	44 ± 12	+38	+16
1,1±0,1	12±2	0,99±0,01		69 ± 8	24 ± 9	+100	+42
3,4±0,2	37±3	0,97±0,02		127 ± 17	44 ± 12	+19	0
0,5±0,05	5±0,6	0,95±0,03		45 ± 8	16 ± 8	>+100	
3,4±0,3	36±3	0,99±0,01		116 ± 7	40 ± 11	+12	-8,3
14±1	152±11	0,99±0,01		397 ± 18	138 ± 23	-9,2	-14
46±1	493±12	0,99±0,01		1382 ± 48	480 ± 64	-2,6	-4,1
5,4±0,2	57±3	0,96±0,01		184 ± 8	64 ± 14	+12	0
34±1	374±11	0,98±0,01		1114 ± 12	387 ± 53	+3,5	-1,6
46±2	491±23	0,97±0,01		1428 ± 35	496 ± 66	+1,0	-0,4

Модельные радиометрические исследования включают измерение ОА радона на выходе адсорбера с помощью радонметра и определение активности радона в подготовленных адсорберах на радиометре РКГ-02А, прошедшем градуировку на ОМАСН. Были определены коэффициент сорбции K_c и сходимость результатов измерения активности сорбированного радона с аналогичными расчетными данными, полученными на основе измерений ОА радона радонмонитором в пропущенном через адсорбер воздухе. K_c оп-

ределяется на основе результатов измерения с многократными наблюдениями начальной A_0 активности радона в системе и на выходе адсорбера A_k радонмонитором: $K_c = Q_n/Q_v = (A_0 - A_k)/A_0$, где Q_n , Q_v – активности поглощенного и на выходе сорбента радона. Активность на момент окончания сорбции радона Q_{po} определяют по текущим показаниям радиометра \bar{A}_p с учетом прошедшего до начала измерений времени T : $Q_{po} = \bar{A}_p R \exp \lambda T$. Для оценки погрешности МВИ находят относительные отклонения между радонометрическими Q_{co} и радиометрическими Q_{pc} данными для каждой пробы: $\delta_{cp} = (Q_{po} - Q_{co})/Q_{co}$. Результаты измерений и расчетные данные по сорбентам представлены в табл. 2.

Радонометрические $\bar{A}_{ro} \pm \sigma_r$, $Q_n \pm \sigma_n$ и радиометрические $\bar{A}_{po} \pm \sigma_{po}$, $Q_{po} \pm \Delta Q_{po}$ данные рассчитаны путем обработки результатов серии из 5–10 последовательных наблюдений, полученных соответственно с помощью приборов AlphaGUARD и РКГ-02А. Погрешность ΔQ_{po} радиометрии сорбента оценена в соответствии с (2).

Представленные результаты показывают удовлетворительную в пределах погрешности обоих методов сходимость δ_{cp} вплоть до минимальных (~ 40 Бк) активностей радона в сорбенте. Эмпирическая прямая регрессии радиометрических данных Q_{po} на радонометрические показания Q_n с коэффициентом корреляции 0,995 имеет вид $Q_{po} = 0,99Q_n + 7$. При исключении наблюдаемой систематической аддитивной погрешности 7 Бк скорректированные значения для сходимости приведены в графе δ_{cp}^* . Для гамма-радио-метрической методики оценка нижнего предела измерений сорбированного радона с учетом вариаций ($\sim 2\%$) коэффициента сорбции при многократном (до 5 раз) воздухообмене составляет не более 20 Бк. В случае подготовки пробоотборных скважин объемом до 10 дм^3 нижний предел радонометрических измерений с применением приборов класса РКГ-02А может достигать 2 кБк/м^3 , что вполне приемлемо для мониторинга радона в почвенном воздухе с реальными значениями ОА от 10 до 100 кБк/м^3 . Время отбора воздуха на сорбент с кратностью 5 при производительности насоса $2 \text{ дм}^3/\text{мин}$ не будет превышать 25 мин.

1. George A. C. // IEEE Trans. Nucl. Sci. 1990. Vol. 37. № 1/2. P. 892.
2. Приборы для радиозоологического мониторинга: Каталог. Мн., 1996. С. 11.
3. Аншаков О.М., Лобач Д.И., Матвейчук С.В. и др. // Актуальные проблемы дозиметрии: Материалы IV Междунар. симпоз. Мн., 2003. С. 16.
4. Артемьев Б.Г., Голубев С.М. Справочное пособие для работников метрологических служб: В 2 кн. М., 1990. Кн. 1.

Поступила в редакцию 13.04.2004.

Олег Матвеевич Аншаков – кандидат технических наук, ведущий научный сотрудник кафедры ядерной физики.

Дмитрий Иосифович Лобач – кандидат технических наук, главный государственный инспектор Управления по надзору и регулированию ядерной и радиационной безопасности Проматомнадзора.

Сергей Васильевич Матвейчук – кандидат химических наук, старший научный сотрудник Института физико-органической химии НАН Беларуси.

Игорь Иванович Уголев – кандидат технических наук, заведующий НИЛ радио- и масс-спектрометрии Института физико-органической химии НАН Беларуси.

Владимир Андреанович Чудаков – кандидат технических наук, проректор по научной работе Международного государственного экологического университета им. А.Д. Сахарова.