DOI: 10.21514/1998-426X-2020-13-4-82-92
УДК: 539.16.08:546.296

Оценка качества измерений объемной активности радона в воздухе помещений. Результаты международных сличительных испытаний

С.М. Киселев[1], А.М. Маренный[2], В.Г. Старинский[1], Ю.С. Бельских[1], В.В. Шлыгин[1], И.П. Коренков[1], Н.А. Нефёдов[2], М.А. Маренный[3]

[1] Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна Федерального медико-биологического агентства России, Москва, Россия
[2] Научно-технический центр радиационно-химической безопасности и гигиены Федерального медико-биологического агентства России, Москва, Россия
[3] Общество с ограниченной ответственностью «Группа компаний РЭИ», Москва, Россия

В статье представлены результаты международных сличительных испытаний пассивных средств измерения радона в воздухе помещений. Исследования были организованы агентством по защите окружающей среды административной области Пьемонт (г. Ивреа, Италия). Охват участников составил 49 лабораторий из 15 стран мира (Италии, Венгрии, Франции, Великобритании, Литвы, России, Швеции, Испании, Болгарии, Аргентины, Австралии, Финляндии, Ирландии, Греции, Словении). Тестируемые средства измерения включали твердотельные трековые и электретные детекторы. Трековые детекторы представлены преимущественно материалами на основе аллилдигликолькарбоната (CR-39) и нитроцеллюлозы (LR-115-2). Пассивные средства измерения радона тестировали в режимах длительного экспонирования с различной объемной активностью радона в воздухе помещений, а также краткосрочного экспонирования в смешанной атмосфере радона и торона. Испытания проводились в реальных условиях эксплуатируемых помещений, с различными климатическими характеристиками. Их основной целью являлась оценка качества результатов определения объемной активности радона испытуемыми средствами измерений в условиях, максимально приближенных к реальным. Показано, что трековые детекторы характеризуются в целом лучшими показателями качества измерений по сравнению с электретными. Наиболее «комфортным» в плане качества получаемых результатов для электретных детекторов оказался режим длительного экспонирования в атмосфере с высоким содержанием радона в воздушной среде помещений. В условиях длительного экспонирования трековые детекторы позволяют получать надежные результаты измерения объемной активности радона в воздухе помещений без существенной потери чувствительности. В работе представлены результаты оценки качества измерений содержания радона в воздухе трековыми экспозиметрами РЭИ-4, которые выпускаются и используются в России для мониторинговых исследований содержания радона в воздухе помещений.

Ключевые слова: *радон, РЭИ-4, международные сличения, твердотельные трековые детекторы, электреты, LR-115-2, CR-39.*

Введение

Защита населения от облучения радоном является одной из приоритетных задач радиационной защиты населения от источников природного излучения [1, 2]. Поступая из различных источников, преимущественно из земли, радон накапливается в помещениях, являясь источником облучения легких дочерними продуктами распада. Облучение населения радоном можно контролировать воздействием на пути его поступления из земли в воздух помещений, поэтому содержание радона в воздухе помещений является предметом санитарного-гигиенического контроля. Содержание радона в воздухе помещений подвержено значительным суточным, недельным и сезонным колебаниям и может варьировать в пределах порядка и более [3, 4]. Высокая вариабельность определяется комплексом климатических и метеорологических факторов (атмосферное давление, соотношение температур воздуха внутри и снаружи здания, ветровой напор, и т.д.), а также режимом эксплуатации помещений. Для достоверного определения среднегодовой объемной активности (ОА) радона в воздухе помещений применяются интегральные методы исследований. В качестве средств измерений в практике радонового мониторинга широко используются электретные, а также твердотельные трековые детекторы на основе различных материалов: поликарбонатов, нитроцеллюлозы, этиленфталата и др. [5–8]. Трековый метод основан на характерном для большинства диэлектриков эффекте, заключающемся

Старинский Виталий Григорьевич
Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна
Адрес для переписки: 123098, Москва, ул. Живописная, 46; E-mail: vitalstar90@mail.ru

в том, что заряженная частица, двигаясь в диэлектрике, теряет вдоль своего пути энергию и образует дефекты в веществе в виде зоны стабильных структурных нарушений вдоль трека ионизации длиной в несколько микрон [8]. Трековый детектор пассивно экспонируется внутри небольшой пробоотборной камеры, в которую радон проникает путем диффузии, что обеспечивает стабильную геометрию облучения детектора за счет альфа-излучения радона и его ДПР внутри этой камеры. После экспонирования трековый детектор подвергается специальному химическому или электрохимическому травлению при фиксированных значениях температуры и pH, в процессе которого латентные треки становятся видимыми. Затем количество треков на поверхности пленки определяется либо оптическим методом, либо подсчетом электрических пробоев в дефектах, связанных с треками. Количество треков пропорционально времени экспонирования и средней ОА радона за это время.

Принцип электретной камеры основан на определении снижения за время экспонирования поверхностного электростатического заряда специальной тефлоновой пластины, экспонируемой в пассивной пробоотборной камере. Перед экспонированием определяется начальный заряд пластины, которая затем помещается в камеру, куда радон попадает в результате диффузии. Радон и образовавшиеся ДПР в результате альфа-распада ионизируют воздух внутри камеры. Возникающие электрические заряды рекомбинируют с зарядами на поверхности пластины, уменьшая ее электростатический потенциал. После экспонирования определяется конечный заряд пластины. Таким образом, величина снижения заряда пластины пропорциональна ОА радона в камере [6].

Основные преимущества интегральных средств измерений заключаются в том, что они позволяют проводить оценку содержания радона в широком временном диапазоне (до 1 года), при этом одновременно может быть охвачено большое количество пунктов контроля (массовые измерения). Для пробоотбора используются компактные, простые и недорогие устройства, не потребляющие электроэнергию.

Применение разных типов детекторов и конструкций пробоотборных камер пассивных средств измерений в практике радонового мониторинга определяет необходимость оценки достоверности получаемых результатов. Эта задача решается в рамках сличительных испытаний. В большинстве случаев подобные испытания проводятся в искусственных условиях в радоновых камерах, где концентрация радона постоянна и не подвержена суточным и сезонным колебаниям, а климатические характеристики (температура, давление и влажность) не выходят за рамки средних значений, характерных для эксплуатируемых жилых помещений [9–11]. Основным алгоритмом проведения сличительных испытаний служит экспонирование испытуемых средств измерений в атмосфере с различной ОА радона. В настоящей работе представлены результаты международных сличительных испытаний (МСИ) пассивных средств измерения радона, отличительной особенностью которых являлось испытание средств измерения в реальных условиях эксплуатируемых помещений, характеризующихся разными климатическими условиями, а также наличием в воздушной среде радона (^{222}Rn) и торона (^{220}Rn).

Организация и схема проведения МСИ

МСИ были организованы агентством по защите окружающей среды административной области Пьемонт (г. Ивреа, Италия) для оценки качества определения ОА радона пассивными средствами измерения радона (ПСИР) – твердотельными трековыми экспозиметрами и электретными детекторами, применение которых широко распространено в европейских странах. Материалы трековых детекторов представлены полимерами на основе аллилдигликолькарбоната (CR-39), бисфенола А (Makrofol) и нитроцеллюлозы LR-115-2 (рис. 1).

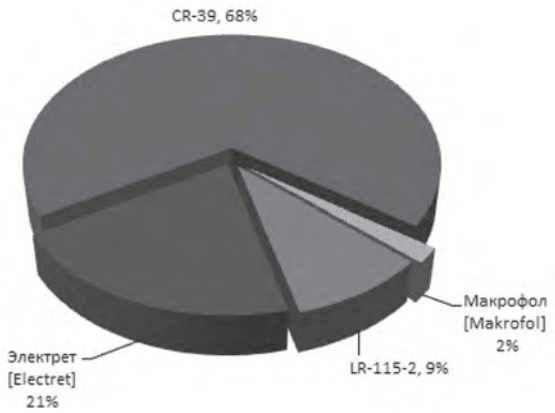

Рис. 1. Типы детекторов, принимавших участие в МСИ
[**Fig. 1.** Types of detectors participating in the intercomparison]

Особенностью настоящих МСИ являлось проведение испытаний в реальных эксплуатируемых помещениях (каменные дома провинции Пьемонте, Италия), а не в радоновых камерах со стандартизованными климатическими характеристиками. В испытаниях приняли участие 49 лабораторий из 15 стран мира (Италии, Венгрии, Франции, Великобритании, Литвы, России, Швеции, Испании, Болгарии, Аргентины, Австралии, Финляндии, Ирландии, Греции, Словении). Российские средства измерения были представлены трековыми экспозиметрами из комплекта измерительной аппаратуры «ТРЕК-РЭИ-1М» (Свидетельство об утверждении типа средств измерения ОС.С.38.002.А № 57240 от 21.10.2019), которым был присвоен идентификационный номер 39А (рис. 2).

Рис. 2. Пробоотборная камера РЭИ-4
[**Fig. 2.** Passive device REI-4]

В таблице 1 представлены производители ПСИР, которые испытывались в настоящих МСИ.

Таблица 1

Распределение типов детекторов и пробоотборных камер, представленных в МСИ

[Table 1

Types of detectors and passive devices participated in the intercomparison]

Тип детектора [Type of detector]	Тип пробоотборной камеры [Passive device]	Производитель [Manufacturer]
Твердотельные трековые [SSNTD]		
CR-39	RSKS	Radosys Ltd.
	Radosure	TASL
	NRPB/SSI	National Radiation Protection Board (NRPB)
Makrofol DE	Radout	Intercast
	Radopurkk	Bayer
LR-115-2	DPR2	ALGADE
	РЭИ-4	Группа компаний РЭИ [Group REI LLC]
Электретные [Electret]		
Электреты [Electrets]	E-PERM	Rad Elec Inc.

Схема МСИ заключалась в размещении испытуемых средств измерений в трех эксплуатируемых помещениях (по 3 шт. в каждом) с различными уровнями ОА радона в воздухе (табл. 2, рис. 3).

Рис. 3. Экспонирование ПСИР в эксплуатируемых помещениях (г. Ивреа, Италия) [12]
[**Fig. 3.** Passive device exposure in premises (Ivrea, Italy)]

Для учета влияния условий транспортирования детекторов на показания испытуемых средств измерений использовали «транспортировочные» детекторы (9 шт.), которые хранились в течение всего периода проведения МСИ в радонозащитных пластиковых упаковках в помещениях с низкой ОА ^{222}Rn. После экспонирования детекторы выдерживались в течение 3 суток на открытом воздухе вне помещений, упаковывались и отправлялись обратно участнику МСИ для анализа.

Для определения референсных значений ОА радона в исследуемых помещениях применяли радоновые мониторы мировых производителей, основанные на разных принципах детектирования изотопов радона и их дочерних продуктов: AlphaGUARD и AlphaGUARD новой серии DF2000 (Германия), Radim 5B (Чехия), SARAD Thoron Scout (Германия), SARAD EQF 3220 (Германия), Corentium Pro (Норвегия), мониторы на основе сцинтилляционной камеры (ячейки Лукаса).

Таблица 2

Характеристика помещений

[Table 2

Features of the sites]

Контролируемый параметр [Monitored parameter]	Помещение № 1 [Site 1]	Помещение № 2 [Site 2]	Помещение № 3 [Site 3]
Объемная активность радона/торона, Бк/м^3 (референсные значения) [Radon/Thoron concentration, Bq/m^3 (reference values)]	61 ± 13	469 ± 41	2399 ± 394 1685 ± 389*
Коэффициент равновесия [Equilibrium factor]	0,53	0,56	0,15
Мощность дозы гамма-излучения (нГр/ч) [Gamma dose rate nGy/h]	73 ± 7	106 ± 13	953 ± 1196
Высота над уровнем моря (м) [Altitude above sea level (m)]	253	253	846
Температура (°С) [Temperature (°C)]	20,0 ± 0,4	21,0 ± 0,4	13,2 ± 0,3
Давление (гПа) [Pressure (hPa)]	989 ± 1	997 ±1	916 ± 1
Относительная влажность (%) [Relative humidity (%)]	45 ± 1	52 ± 2	75 ± 2

* – ОА торона.

Указанные средства измерений калибровали в радоновых и тороновых камерах, а также в смешанной атмосфере изотопов радона, согласно стандартизованным процедурам Национального института метрологии ионизирующего излучения (ENEA-INMRI) [12]. Оценку мощности дозы гамма излучения проводили с помощью термолюминесцентных дозиметров (TLD-100, LiF:Mg,Ti).

Определение ОА радона с применением отечественного комплекта аппаратуры «ТРЕК-РЭИ-1М» проводили в соответствии с методикой измерений «Радон. Измерение объемной активности в воздухе помещений интегральным трековым методом»[1].

Объемную активность радона рассчитывали по формуле:

$$ОА = \frac{ОА_о \cdot (T_{exp} + T_{тр}) - ОА_{тр} \cdot T_{тр}}{T_{exp}}$$

ОА – объемная активность радона в воздухе исследуемого помещения за период экспонирования, Бк/м^3;

$ОА_о$ – объемная активность радона за весь период времени, включая время на транспортировку и хранение экспозиметров, Бк/м^3;

$ОА_{тр}$ – объемная активность радона, рассчитанная для условий хранения и транспортировки экспозиметров, Бк/м^3;

T_{exp} – время экспонирования в воздухе исследуемого помещения, суток;

$T_{тр}$ – время, затраченное на хранение и транспортировку экспозиметров, суток.

В соответствии с требованиями Рекомендации МИ 2083-90[2] неопределенность ОА радона в воздухе исследуемых помещений в период экспонирования рассчитана по формуле:

$$\Delta ОА = \frac{\sqrt{\left(\Delta ОА_о \cdot (T_{exp} + T_{тр})\right)^2 + \left(\Delta ОА_{тр} \cdot T_{тр}\right)^2}}{T_{exp}},$$

где Δ – символ расширенной неопределенности ОА радона, полученной в тех или иных условиях.

Для оценки воспроизводимости результатов измерений ОА радона для каждого испытуемого набора ПСИР организаторами МСИ вычислялся коэффициент вариации по формуле:

$$КВ = \frac{\sigma}{ОА_{ср}},$$

где σ – среднее квадратическое отклонение результатов оценки ОА радона, полученных с применением каждого набора испытуемых средств измерений в тестируемых условиях;

$ОА_{ср}$ – среднее арифметическое значение результатов оценки ОА радона, полученных с применением каждого набора испытуемых средств измерений в тестируемых условиях.

Полученный ряд значений коэффициентов вариации группировался в соответствии с типом испытуемых детекторов (трековые и электретные) и тестируемым режимом. В настоящей статье представлены распределения коэффициента вариации, построенные на основе данных организаторов МСИ [13].

Для оценки качества измерений организаторы МСИ использовали параметр экспозиции (E_i), который определяли в соответствии с формулой:

$$E_i = ОА \cdot T_{exp},$$

где T_{exp} – время экспонирования в воздухе исследуемого помещения, ч.

Оценку качества результатов измерений проводили в соответствии с требованиями международного стандарта ISO/IEC17043 по следующим показателям, характеризующим степень смещения экспериментальных значений относительно референсных:

Процентная разница (PD)

Для оценки лабораторного смещения применяли показатель относительной процентной разницы (PD)[3], который рассчитывается по формуле:

$$PD[\%] = \frac{E_i - E_{Ri}}{E_{Ri}}.$$

где E_{Ri} – референсное значение экспозиции;

E_i – среднее арифметическое значение экспозиции каждого отдельного режима экспонирования:

$$E_i = \sum_{j=1}^{n} \frac{(E_{net})_j}{n},$$

где E_{net} – значение экспозиции экспериментальных детекторов за вычетом фона, накопленного во время транспортировки детекторов.

REF–показатель

$$REF = \frac{E_i}{E_{Ri}}$$

Результаты считались удовлетворительными по показателю REF, если укладывались в 15% диапазон значений относительно центрального показателя (от 0,85 до 1,15).

---

[1] Методика измерений «Радон. Измерение объемной активности в воздухе помещений интегральным трековым методом». Разработана ФГУП НТЦ РХБГ ФМБА России, ООО «ГК РЭИ». Аттестована ФГУП ВНИИФТРИ, свидетельство № 40090.2И385 от 16.07.2012 г. [Measurement procedure «Radon. Measurement of radon concentration in indoor air by track method». Methods of certification of VNIIFTRI, certificate № 40090.2I385 from 16.07.2012. (In Russ.)]

[2] Рекомендация МИ 2083-90. ГСИ. Измерения косвенные. Определение результатов измерений и оценивание их погрешностей. М.: Комитет стандартизации и метрологии СССР, 1991. С. 1–10. [MI 2083-90 GSI. The measurements are indirect. Determination of measurement results and evaluation of their errors. 1991. P. 1-10. (In Russ.)]

[3] ГОСТ ISO/IEC 17043-2013 Оценка соответствия. Основные требования к проведению проверки квалификации. М.: Стандартинформ, 2014. С. 48. [ISO / IEC 17043-2013 Conformity assessment. General requirements for proficiency testing. Moscow: Standartinform. 2014. P. 48 (In Russ.)]

Z–индекс

Оценка приемлемости получаемых результатов описывалась z-индексом[4]. Он определяется как нормированная мера лабораторного смещения и рассчитывается по следующей формуле:

$$Z_i = \frac{E_i - E_{Ri}}{\sigma_r},$$

где σ_r – стандартное отклонение для оценки квалификации. В настоящих МСИ был установлен как 20% от исходного значения.

При Z<2 результаты, полученные лабораторией, считались приемлемыми, при 2<Z<3 значения характеризовались как сомнительные и требовали проверки, при Z>3 результаты интерпретировались как неприемлемые.

Результаты МСИ

ПСИР тестировали в трех режимах экспонирования. Первый режим заключался в длительном экспонировании (154 суток) при низкой ОА ^{222}Rn в воздухе помещения (61 Бк/м^3), расположенного на первом этаже каменного дома в г. Ивреа. Второй режим предполагал такую же длительность экспонирования детекторов (154 суток) при высокой ОА радона (469 Бк/м^3) в подвальном помещении каменного дома г. Ивреа (см. табл. 2). Третий режим заключался в краткосрочном экспонировании детекторов (9 суток) в помещении с совместным присутствием радона и торона. Особенностью последнего режима являлась высокая влажность, неравномерное распределение мощности дозы гамма-излучения и повышенное содержание природных радионуклидов в материалах стен (^{224}Ra – 369 Бк/кг, ^{226}Ra – 336 Бк/кг, ^{40}K – 1670 Бк/кг) (см. табл. 2).

На рисунке 4 представлен разброс измеренных значений ОА радона всеми ПСИР в совокупности относительно референсных значений по показателю REF. Высокий процент выпадающих значений из установленного в данном МСИ интервала приемлемости (0,85–1,15) относится к двум режимам экспонирования: режим 1 (28%) и режим 3 (31%). Наиболее «комфортным» для испытуемых ПСИР оказался режим 2 с увеличенным временем экспонирования в помещении с высоким содержанием радона. В данных условиях результаты, полученные лабораториями, находятся близко к референсным значениям, и доля выпадений составляет всего 12%.

Оценка воспроизводимости результатов измерений ОА радона трековыми и электретными экспозиметрами

Испытуемые ПСИР были представлены двумя типами средств измерений: твердотельными трековыми детекторами (78%) и электретными детекторами (22%). Оба типа приборов активно применяются в мониторинговых радоновых обследованиях, причем последние наиболее популярны за рубежом.

Оценка качества измерений ОА радона трековыми и электретными экспозиметрами в целом представлена на рисунке 5 и в таблице 3.

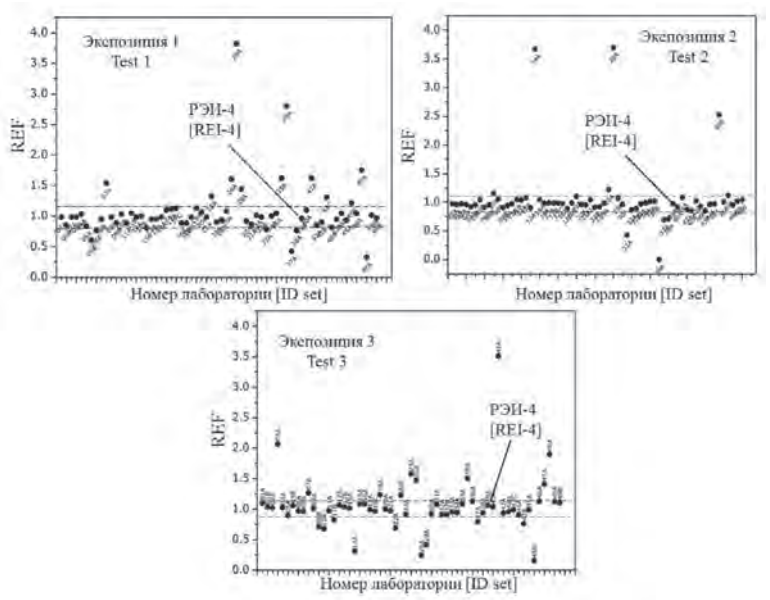

Рис. 4. Распределение значений REF-показателя для испытуемых ПСИР в различных режимах экспонирования [12]
[**Fig. 4.** The distribution REF-values for passive devices in different tests]

[4] ГОСТ Р 50779.60-2017 (ИСО 13528:2015). Статистические методы. Применение при проверке квалификации посредством межлабораторных испытаний. М.: Стандартинформ, 2017. С .43 [GOST P 50779.60-2017 (ISO 13528:2015). Statistical methods. Use in proficiency testing by interlaboratory comparison. Moscow: Standartinform. 2017. P.43 (In Russ.)]

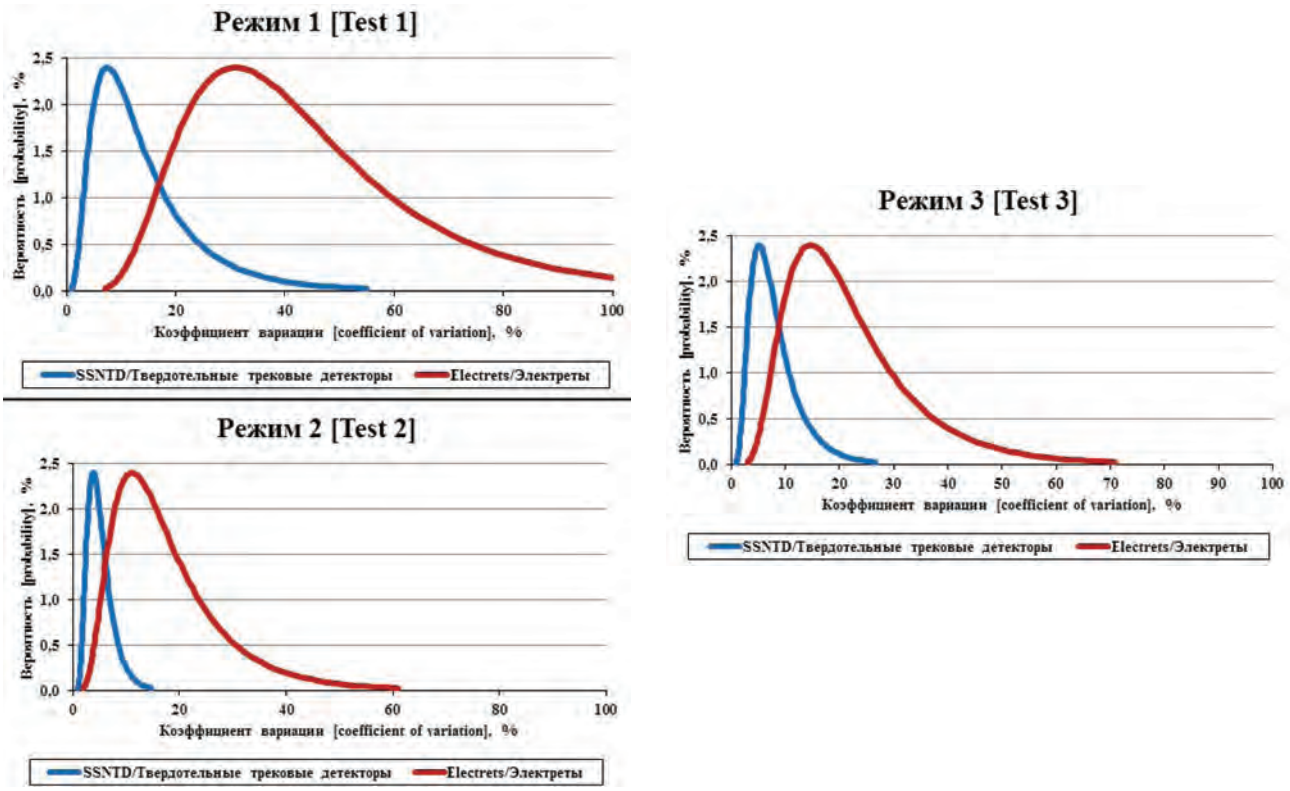

Рис. 5. Распределение коэффициента вариации для электретных и твердотельных трековых детекторов в исследуемых режимах экспозиции
[**Fig. 5.** Distribution of coefficient variation for Electret and SSNTD in different tests]

Таблица 3

Оценка качества измерений радона трековыми и электретными детекторами [13]

[Table 3

The evaluation of the quality of the radon measurements by SSNTD and Electret detectors]

Критерий качества (приемлемый интервал значений) [Quality criterion (acceptable range of values)]	Режим 1		Режим 2		Режим 3	
	Трековые [SSNTD]	Электреты [Electrets]	Трековые [SSNTD]	Электреты [Electrets]	Трековые [SSNTD]	Электреты [Electrets]
0,85<REF<1,15	0,95	1,12	0,95	0,99	0,99	0,93
Z<2	98	83	98	100	98	67

Анализ распределения коэффициента вариации (КВ) результатов, получаемых трековыми и электретными детекторами, показывает, что электретные детекторы характеризуются более низкой воспроизводимостью результатов [13], причем наибольшая выраженность этих различий наблюдается в режимах 1 (медиана КВ равняется 7 и 28% для трековых и электретных детекторов соответственно) и режиме 3 (медиана КВ равняется 5 и 24% для трековых и электретных детекторов соответственно).

Данные по воспроизводимости испытуемых средств измерений согласуются с оценками приемлемости качества измерений, определяемыми по Z-индексу и показателю REF.

Таким образом, анализ результатов определения экспозиции радона пассивными средствами измерения в реальной воздушной среде эксплуатируемых помещений показывает, что твердотельные трековые детекторы характеризуются в целом лучшими показателями качества измерений по сравнению с электретными (см. рис. 5, табл. 3). Низкое значение Z-индекса (режим 3 согласно таблице 3) свидетельствует, что на воспроизводимость результатов измерений ОА радона с помощью электретных детекторов даже при относительно кратковременном экспонировании существенно влияют повышенные уровни влажности атмосферы и присутствие в ней торона. Результаты проведенных исследований показывают, что наиболее «комфортным» в плане качества получаемых результатов для электретных детекторов оказался режим длительного экспонирования в атмосфере с высокой ОА радона.

Оценка эффекта фединга пассивных средств измерения радона

Регистрация ионизирующих излучений с помощью твердотельных детекторов (типичные представите-

ли термолюминесцентные дозиметры и трековые детекторы) основана на том, что ионизирующая частица или квант при попадании в объем детектора производят определенные нарушения его структуры, которые обнаруживаются известными способами. Нарушения могут сохраняться достаточно длительные сроки, однако со временем нарушения начинают постепенно исчезать. Это явление называется фединг. Очевидно, что эффект может приводить к дополнительной погрешности измерения.

В трековой радиометрии эффект фединга заключается в том, что в процессе длительного экспонирования отдельные латентные треки постепенно элиминируются, так что в последующем при считывании треков они не учитываются [8, 14, 15]. Для электретных детекторов данный эффект не характерен, хотя за счет снижения поверхностного заряда пластины в условиях длительного экспонирования может снижаться их чувствительность.

Чувствительность детекторов оценивали в условиях длительного экспонирования в помещениях с разными ОА радона в воздушной среде (режимы 1 и 2). Результаты испытаний, представленные в таблице 4, указывают на отсутствие выраженного эффекта фединга, средние значения экспозиций, определенные твердотельными трековыми детекторами, находятся в пределах погрешности измерения референсного показателя. Наряду с этим, медианные значения, характеризующиеся более низкими значениями по сравнению с референсными, а также отрицательные значения показателя PD указывают на наличие данного эффекта в твердотельных трековых детекторах, в отличие от электретных детекторов.

В целом, результаты испытаний средств измерений свидетельствуют в пользу того, что в условиях длительного экспонирования (5 месяцев) трековые детекторы позволяют получать надежные результаты измерений ОА радона в воздухе помещений без существенной потери чувствительности.

Оценка эффективности детектирования радона в смешанной среде изотопов радона

Испытания ПСИР в режиме 3 (9 суток в подвальном помещении со смешанной атмосферой радона (2399 ±394 Бк/м^3) и торона (1685±389 Бк/м^3) были ориентированы на наиболее жесткие условия и предполагали экспонирование детекторов в помещении с неравномерным распределением мощности дозы гамма-излучения, смешанной атмосфере с присутствием обоих изотопов радона и переменными параметрами температуры и влажности. Оценка результатов измерений не выявила влияния торона в воздушной атмосфере на показания трековых экспозиметров (табл. 5).

Таблица 4

Результаты измерений экспозиции радона трековыми и электретными детекторами в 1 и 2 режимах [13]

[Table 4

Radon exposure measurements by SSNTD and Electret detectors in tests 1 and 2]

Типы детекторов [Types detectors]	Референсное значение экспозиции, кБк·ч/м^3 [Reference value, kBq·h/m^3]	Среднее значение экспозиции, кБк·ч/м^3 [Mean value, kBq·h/m^3]	Медианное значение экспозиции, кБк·ч/м^3 [Median value, kBq·h/m^3]	Процентная разность PD,% [Percent difference,%]
Режим 1				
Трековые детекторы (все типы) [SSNTD (overall)]	225±50	213±34	213	-6
CR-39		208±31	213	-8
LR-115-2 (РЭИ-4)		218±26	–	-3
Электреты [Electrets]		252±58	261	12
Режим 2				
Трековые детекторы (все типы) [SSNTD (overall)]	1731± 152	1653±215	1680	-5
CR-39		1637±213	1678	-5
LR-115-2 (РЭИ-4)		1685±111	–	-3
Электреты [Electrets]		1725±124	1740	-0,4

Таблица 5

Результаты измерений экспозиции радона трековыми и электретными детекторами в режиме 3

[Table 5

Radon exposure measurements by SSNTD and Electret detectors in test 3]

Типы детекторов [Types detectors]	Референсное значение экспозиции, кБк·ч/м^3 [Reference value, kBq·h/m^3]	Среднее значение экспозиции, кБк·ч/м^3 [Mean value, kBq·h/m^3]	Медианное значение экспозиции, кБк·ч/м^3 [Median value, kBq·h/m^3]
Трековые детекторы (все типы) [SSNTD (overall)]	516 ±85	591±318	510
CR-39		509±74	501
LR-115-2 (РЭИ-4)		513±79	503
Электреты [Electrets]		482±166	503

Наряду с этим, четко выявляется упомянутый выше факт существенной неоднородности результатов определения радона электретными детекторами (коэффициент вариации – 24%). Доля испытуемых электретных детекторов, результаты которых удовлетворяют установленным критериям качества (Z-индекс), составляет всего 67% против 98% для трековых экспозиметров.

Полученные результаты указывают на отсутствие выраженной чувствительности к торону в большинстве тестируемых ПСИР, тогда как особенности климатической среды помещений (высокая влажность, высокая мощность дозы внешнего гамма-излучения) оказывают существенное влияние на воспроизводимость и качество измерений электретными детекторами.

Оценка качества измерений радона отечественными трековыми экспозиметрами

В России для проведения интегральных радоновых измерений применяется трековый метод радиометрии. Отечественные электретные камеры не приобрели достаточной популярности из-за низкого качества применяемых в электретах материалов и, соответственно, низкой надежности получаемых результатов.

В отличие от зарубежных стран, где наибольшее распространение получили детекторы на основе полиаллилдигликолькарбоната (CR-39), в отечественных трековых экспозиметрах РЭИ-4 в качестве детектора используется пленка на основе нитроцеллюлозы типа Kodak LR-115-2 толщиной около 12 мкм. Диапазон измерений средней ОА радона РЭИ-4 при экспозиции в течение 90 суток составляет от 20 до 2000 Бк/м^3, чувствительность пленки – $(3{,}5\pm1{,}0)\cdot10^2$ трек·см$^{-2}$·Бк$^{-1}$·сутки$^{-1}$.

Трековые детекторы РЭИ-4 широко применяются в России для проведения радоновых обследований. Анализ трековых экспозиметров осуществляют с применением комплекта аппаратуры «ТРЕК-РЭИ-1М» на основе электроискрового счета [16, 17]. На рисунке 4 и в таблице 6 представлены результаты качества измерений ОА ^{222}Rn с использованием отечественных трековых экспозиметров РЭИ-4.

Результаты измерений удовлетворяют установленным критериям качества (см. табл. 6). В условиях длительного экспонирования в атмосфере с низкой ОА радона твердотельные трековые детекторы характеризуются хорошей чувствительностью, эффект фединга незначителен. Конструкция пробоотборной камеры не позволяет проводить детектирование торона. Благодаря этому в условиях экспонирования детекторов в смешанной атмосфере с сопоставимыми высокими концентрациями изотопов радона не выявлен эффект влияния торона на определение содержания радона в воздухе помещений.

Таблица 6

Результаты определения объемной активности радона трековыми экспозиметрами РЭИ-4 (Россия)

[Table 6

Results determination of concentration radon by passive device REI-4 (Russia)]

Режим экспозиции [Test]	REF (0,85–1,15)	Z-индекс (σ=20%) [z-score]	ОА радона, Бк/м^3 [Radon concentration, Bq/m^3]	Референсное значение, Бк/м^3 [Reference value, Bq/m^3]
1	0,96	<2	59±22	61±13
2	1,02	<2	456±190	469±41
3	1,06	<2	2552±1054	2399±394

Заключение

Проведение сличительных испытаний пассивных средств измерения ОА радона в естественных условиях эксплуатируемых помещений показало, что наиболее «комфортным» режимом для определения ОА радона в воздухе помещений, характеризующимся максимальной воспроизводимостью результатов, является длительное экспонирование испытуемых средств измерений в помещениях с высокими ОА радона.

Сравнительное исследование трековых и электретных экспозиметров позволило выявить различия в качестве измерений ОА радона, особенно при длительном экспонировании в атмосфере с низкой ОА радона, а также в помещениях, характеризующихся условиями повышенной влажности, высокой мощности дозы гамма-излучения и смешанной атмосферы изотопов радона.

Результаты проведенных исследований показали отсутствие выраженного эффекта фединга у исследуемых типов детекторов в условиях длительного экспонирования при разной ОА радона в воздушной среде помещений.

Отметим, что по результатам международных сличительных испытаний, на которых были представлены практически все типы трековых экспозиметров радона, используемые в большинстве европейских и американских лабораторий, показано, что экспозиметр типа РЭИ-4

(Россия) относится к группе экспозиметров с наилучшими метрологическими характеристиками. В пользу этого свидетельствует то, что по всем показателям, использованным в МСИ для оценки качества измерений, отличие измеренных экспозиметрами РЭИ-4 значений ОА радона от референсных значений составляет не более 2–6%.

Литература

1. Protection of the public against exposure indoors due to radon and other natural sources of radiation. IAEA Safety Standards Series No. SSG-32. Vienna: International Atomic Energy Agency; 2015. 90 p. ISBN 978-92-0-102514-2.
2. Lecomte J.F., Solomon S., Takala J., et al. Radiological protection against radon exposure // Annals of the ICRP. 2014. Vol. 43, No 3. P. 5-6.
3. Steck D. Annual average radon variation over two decades // Health Physics. 2009. Vol. 96, No 1. P. 37–47.
4. Miles J.C.H., Howarth C.B., Hunter N. Seasonal variation of radon concentrations in UK homes // J. Radiol. Prot. 2012. Vol. 32. P. 275–287.
5. Kotrappa P., Dempsey J.C., Hickey J.R., Stieff L.R.. An electrets passive environmental Rn-222 monitor based on ionization measurement // Health Physics. 1988. Vol. 54, No 1. P. 47 – 56.
6. Kotrappa P., Dempsey J.C., Ramsey R.W. Stieff L.R. A practical E-PEPM System for Indoor 222Rn Measurement // Health Physics. 1990. V. 58, No 4. P. 461 – 467.
7. Николаев В.А. Трековый метод в радоновых измерениях // АНРИ. 1998. № 2 (12). С. 16–27.
8. Маренный А.М. Диэлектрические трековые детекторы в радиационно-физическом и радиобиологическом эксперименте. М.: Энергоатомиздат, 1987. 184 с.
9. GW-893. Results of the 2017 PHE Intercomparison of Passive Radon Detectors // PHE publications. 2019.
10. Jilek K., Hýža M., Kotík L., et al. International intercomparison of measuring instruments for radon/thoron gas and radon short-lived daughter products in the NRPI Prague // Radiation Protection Dosimetry. 2014. Vol. 160, Issue 1-3. P. 154-159.
11. Cardellini F., Chiaberto E., Garlati L., et al. Metrological aspects of international intercomparison of passive radon detectors under field conditions in Marie Curie's tunnel in Lurisia // Nukleonika. 2016. 61: issue 3. P. 251-256.
12. The second radon-in-field international intercomparison for passive measurement devices: dwellings and workplaces // Materials of WORKSHOP. 21-22.07.2017.
13. Berliera F., Cardellinib F., Chiaberto E., et al. Main results of the second AIRP international radon-in-field intercomparison for passive measurement devices // Radiation measurements. 2019. No 128. P. 1-11.
14. Caresana M., Ferrarini M., Garlati L., Parravicini A. About ageing and fading of Cr-39 PADC track detectors used as air radon concentration measurement devices // Radiation Measurements. 2010. No 45. P. 183–189.
15. Caresana M., Ferrarini M., Garlati L., Parravicini A. Further studies on ageing and fading of CR39 PADC track detectors used as air radon concentration measurement devices // Radiation Measurements. 2011. Vol. 46, No 10. P. 1160–1167.
16. Маренный А.М. Измерение объемной активности радона трековым методом // АНРИ. 1995. № 3/4. С. 79–84.
17. Маренный А.М. Методические аспекты измерений средней объемной активности радона в помещениях интегральным трековым методом // АНРИ. 2012. № 4 (71). С. 13–19.

Поступила: 22.05.2020 г.

Киселев Сергей Михайлович – кандидат биологических наук, заведующий лабораторией регулирующего надзора за объектами ядерного наследия, Государственный научный центр Российской Федерации – Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна Федерального медико-биологического агентства России, Москва, Россия

Маренный Альберт Михайлович – доктор физико-математических наук, заведующий лабораторией природных источников ионизирующих излучений, Научно-технический центр радиационно-химической безопасности и гигиены Федерального медико-биологического агентства России, Москва, Россия

Старинский Виталий Григорьевич – научный сотрудник, Государственный научный центр Российской Федерации – Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна Федерального медико-биологического агентства России. **Адрес для переписки:** 123098, Москва, ул. Живописная, 46; E-mail: vitalstar90@mail.ru

Бельских Юрий Сергеевич – научный сотрудник, Государственный научный центр Российской Федерации – Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна Федерального медико-биологического агентства России, Москва, Россия

Шлыгин Владимир Васильевич – инженер, Государственный научный центр Российской Федерации – Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна Федерального медико-биологического агентства России, Москва, Россия

Коренков Игорь Петрович – доктор биологических наук, кандидат технических наук, главный научный сотрудник, Государственный научный центр Российской Федерации – Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна Федерального медико-биологического агентства России, Москва, Россия

Нефёдов Николай Александрович – кандидат физико-математических наук, ведущий научный сотрудник, Научно-технический центр радиационно-химической безопасности и гигиены Федерального медико-биологического агентства России, Москва, Россия

Маренный Михаил Альбертович – кандидат экономических наук, главный инженер, Общество с ограниченной ответственностью «Группа компаний РЭИ», Москва, Россия

Для цитирования: Киселев С.М., Маренный А.М., Старинский В.Г., Бельских Ю.С., Шлыгин В.В., Коренков И.П., Нефёдов Н.А., Маренный М.А. Оценка качества измерений объемной активности радона в воздухе помещений. Результаты международных сличительных испытаний // Радиационная гигиена. 2020. Т. 13, № 4. С. 82-92. DOI: 10.21514/1998-426X-2020-13-4-82-92

Quality assessment of indoor radon measurements. Results of the international radon in-field intercomparison study

Sergey M. Kiselev[1], Albert M. Marennyy[2], Vitaliy G. Starinskiy [1], Yuriy S. Belskikh[1], Vladimir V. Shlygin [1], Igor P. Korenkov [1], Nikolay A. Nefedov [2], Mikhail A. Marennyy [3]

[1] Federal medical biophysical center after A.I. Burnazyan of Federal medico-biological Agency of Russia, Moscow, Russia

[2] Scientific-technical center of the radiation-chemical safety and hygiene of Federal Medical-Biological Agency of Russia, Moscow, Russia

[3] Limited liability company "Group REI", Moscow, Russia

The article presents the results of the international radon in-field intercomparison study for passive radon measurement devices. The tests were organized by the environmental agency of the administrative region of Piemonte (Ivrea, Italy). Coverage of participants was 49 laboratories from 15 countries (Italy, Hungary, France, Great Britain, Lithuania, Russia, Sweden, Spain, Bulgaria, Argentina, Australia, Finland, Ireland, Greece and Slovenia). The certified radon passive devices included SSNTDs and electret detectors. SSNTDs are mostly represented by PADC plastic (CR-39) and nitrocellulose film (LR-115-2) detectors. Radon measuring devices were tested in long-term exposure modes at low and high radon levels (tests 1 and 2) and short-term exposure mode at the simultaneous presence of radon and thoron in the atmosphere (test 3). The intercomparison study was carried out in real conditions of operated buildings with different climatic conditions. The main purpose of this study was to evaluate the quality (accuracy and reliability) of the radon measurements under situations similar to the ones in which devices are normally exposed. In comparison with electrets, solid-state track detectors showed to have generally better reproducibility. For the electrets, the most «comfortable» radon measurement conditions were prolonged exposure at high radon levels. There was no significant fading effect of SSNTD at long-term exposure observed. The paper presents the results of the quality assessment of REI-4 passive device based on LR-115-2 widely used for radon monitoring studies in the Russian Federation.

Key words: *radon, REI-4, in-field intercomparison study, SSNTD, electrets, LR-115-2, CR-39.*

References

1. Protection of the public against exposure indoors due to radon and other natural sources of radiation. IAEA Safety Standards Series No. SSG-32. Vienna: International Atomic Energy Agency. 2015, 90 p. ISBN 978-92-0-102514-2.
2. Lecomte JF, Solomon S, Takala J, Jung T, Strand P, Murith C, et al. Radiological protection against radon exposure. *Annals of the ICRP*. 2014;43(3): 5-6.
3. Steck D. Annual average radon variation over two decades. *Health Physics.* 2009;96(1): 37–47.
4. Miles JCH, Howarth CB, Hunter N. Seasonal variation of radon concentrations in UK homes. *Journal of Radiological Protection.* 2012;32: 275–287.
5. Kotrappa P, Dempsey JC, Hickey JR, Stieff LR. An electrets passive environmental Rn-222 monitor based on ionization measurement. *Health Physics*. 1988;54(1): 47 – 56.
6. Kotrappa P, Dempsey JC, Ramsey RW, Stieff LR. A practical E-PEPM System for Indoor 222Rn Measurement. *Health Physics*. 1990;58(4): 461 – 467.
7. Nikolaev AV. Track method in radon measurements. *ANRI= ANRI*. 1998;2: 16-27. (In Russian)
8. Marennyy MA. Dielectric track detectors in a radiation-physical and radio-biological experiment. Moscow: Energoatomizdat. 1987. 184 p. *(In Russian)*
9. GW-893. Results of the 2017 PHE Intercomparison of Passive Radon Detectors. *PHE publications*. 2019.
10. Jilek K, Hýža M, Kotík L, Thomas J, Tomášek L. International intercomparison of measuring instruments for radon/thoron gas and radon short-lived daughter products in the NRPI Prague. *Radiation Protection Dosimetry*. 2014;160(1-3): 154-159.
11. Cardellini F, Chiaberto E, Garlati L, Giuffrida D, Leonardi F, Magnoni M, et al. Metrological aspects of international intercomparison of passive radon detectors under field conditions in Marie Curie's tunnel in Lurisia. *Nukleonika*. 2016;61(3): 251-256.
12. The second radon-in-field international intercomparison for passive measurement devices: dwellings and workplaces. *Materials of WORKSHOP*. 21-22.07.2017.
13. Berliera F, Cardellinib F, Chiaberto E, Garlati L, Giuffrida D, Ragani MF, et al. Main results of the second AIRP international radon-in-field intercomparison for passive measurement devices. *Radiation measurements*. 2019;128: 1-11.
14. Caresana M, Ferrarini M, Garlati L, Parravicini A. About ageing and fading of Cr-39 PADC track detectors used as air radon concentration measurement devices. *Radiation Measurements.* 2010;45: 183–189.
15. Caresana M, Ferrarini M, Garlati L, Parravicini A. Further studies on ageing and fading of CR39 PADC track detectors used as air radon concentration measurement devices. *Radiation Measurements.* 2011;46(10): 1160–1167.
16. Marennyy AM. Radon concentration measurement by track method. *ANRI= ANRI*. 1995; 3/4:79-84. (In Russian)
17. Marennyy AM. Methodological aspects of measuring the average concentration of radon in rooms by the track method. *ANRI= ANRI*. 2012;4: 13-19. (In Russian)

Received: May 22, 2020

Vitaliy G. Starinskiy
Federal medical biophysical center after A.I. Burnazyan
Address for correspondence: Zhivopisnaya ul., 46, Moscow, 123098, Russia; E-mail: vitalstar90@mail.ru

Sergey M. Kiselev – Ph.D.in biol., Head of laboratory on regulatory supervisor of nuclear legacy sites, State Research Center – Burnasyan Federal Medical Biophysical Center of Federal Medical Biological Agency, Moscow, Russia

Albert M. Marennyy – Ph.D. in phys. and math., Chief of laboratory on natural radiation sources, Scientific-technical center of the radiation-chemical safety and hygiene of Federal Medico-Biological Agency of Russia, Moscow, Russia

For correspondence: Vitaliy G. Starinskiy – researcher, State Research Center – Burnasyan Federal Medical Biophysical Center of Federal Medical Biological Agency of Russia (Zhivopisnaya ul., 46, Moscow, 123098, Russia; E-mail: vitalstar90@mail.ru)

Yuriy S. Belskikh – researcher, State Research Center – Burnasyan, Federal Medical Biophysical Center of Federal Medical Biological Agency of Russia, Moscow, Russia

Vladimir V. Shlygin – junior researcher State Research Center – Burnasyan, Federal Medical Biophysical Center of Federal Medical Biological Agency of Russia, Moscow, Russia

Igor P. Korenkov – Doctor of biol., Ph.D. in technical sciences, major researcher State Research Center – Burnasyan, Federal Medical Biophysical Center of Federal Medical Biological Agency of Russia, Moscow, Russia

Nikolay A. Nefedov – Ph.D. in math, leading researcher, Federal State Unitary Enterprise Research and Technical Center of Radiation-Chemical and Hygiene of the Federal Medical Biological Agency of Russia, Moscow, Russia

Mikhail A. Marennyy – Ph.D., chief engineer, Limited liability company “Group REI”, Moscow, Russia

For citation: Kiselev S.M., Marennyy A.M., Starinskiy V.G., Belskikh Y.S., Shlygin V.V., Korenkov I.P., Nefedov N.A., Marennyy M.A. Quality assessment of indoor radon measurements. Results of the International radon in-field intercomparison study. *Radiatsionnaya Gygiena* = *Radiation Hygiene*. 2020. Vol. 13, No 4. P. 82-92. (In Russian). DOI: 10.21514/1998-426X-2020-13-4-82-92