

Метод неразрушающего контроля удельной активности природных радионуклидов в строительных материалах

Разработан метод неразрушающего контроля содержания естественных радионуклидов в строительных материалах эксплуатируемых зданий. Измерения спектра гамма-излучения проводятся предварительно откалиброванным полевым гамма-спектрометром. Метод заключается в расчете УА (удельной активности) Ra-226, Th-232 и K-40 на основе экспериментально измеренной скорости счета в соответствующих фотопиках и нормированной на УА плотности потока нерассеянных гамма-квантов заданной энергии, рассчитанной для геометрии исследуемого помещения и расположения детектора. Применение разработанного метода позволяет оценить среднюю УА трех нормируемых природных радионуклидов в строительных материалах ограждающих конструкций без нарушения их целостности.

Ключевые слова:

природные радионуклиды, строительные материалы, радоновое обследование, радий.

А.В.Васильев¹, А.А.Екидин^{1,2},
М.Д.Пышкина^{1,2}, Г.П.Малиновский¹,
А.Д.Онищенко¹, И.В.Ярмошенко¹,
М.В.Жуковский¹

¹ Институт промышленной экологии УрО РАН,
г. Екатеринбург

² Агентство экологической безопасности
«Альфа-Х91», г. Екатеринбург

Общий вклад естественного облучения в дозовую нагрузку населения составляет около 72% [1]. При этом большую часть времени люди проводят в помещениях, поэтому основное облучение от естественных радионуклидов происходит либо в жилых помещениях, либо на рабочих местах. В таких условиях вклад радона в общую дозу облучения населения составляет более 50% [1]. В течение многих лет грунт под зданием считался основным источником поступления радона [1-7]. Диффузия радона из строительных материалов не считалась основным механизмом поступления радона внутри помещений. Строительные конструкции считались основным источником поступления

радона лишь для зданий, построенных из материалов с аномально высокими концентрациями ^{226}Ra (Швеция, Чешская Республика) [8-11].

Однако за последнее десятилетие появился ряд публикаций, посвященных высоким уровням радона в современных энергоэффективных многоэтажных домах с низкой кратностью воздухообмена. Поскольку в многоэтажном (более 9 этажей) здании невозможно создать средние объемные активности (ОА) радона в диапазоне 100–200 Бк/м³ только за счет поступления радона из грунтового основания, было высказано предположение, что доминирующий источник поступления радона в таких зданиях – это строительные материалы [12].

Радоновые исследования в различных городах России показали, что средняя ОА радона внутри помещений новых энергоэффективных зданий выше, чем в старых домах [13]. Однако было отмечено, что средняя ОА радона в помещениях значительно различается по городам, учитывая здания более высоких классов энергоэффективности. Было высказано предположение, что такая разница связана с содержанием ^{226}Ra в строительных материалах.

Имеются косвенные свидетельства того, что высокие концентрации радона в воздухе энергоэффективных зданий могут наблюдаться при концентрации ^{226}Ra в строительных материалах порядка 50 Бк/кг [14-16]. Такие строительные материалы соответствуют санитарно-гигиеническим нормам и не считаются материалами с повышенной концентрацией естественных радионуклидов.

Для дальнейшей разработки стратегии защиты населения от облучения радоном в новых энергоэффективных зданиях необходимо получить научно обоснованную и экспериментально подтвержденную зависимость между активностью радона внутри помещений и содержанием ^{226}Ra . Хотя концентрацию радона внутри помещений можно измерить напрямую, до сих пор не существует точного неразрушающего метода измерения удельной активности (УА) ^{226}Ra в строительных материалах существующего здания.

Самый простой и традиционный способ измерения УА естественных радионуклидов в строительных материалах – это отбор образцов материалов, их измельчение и измерение активности с помощью гамма-спектрометра. Очевидно, что такой подход возможен лишь в редких случаях, когда в квартире проводятся масштабные ремонтные работы, в результате которых появляются многочисленные фрагменты стеновых материалов и, реже, перекрытия зданий. В большинстве случаев для эксплуатируемых квартир и офисных помещений такой подход не применим.

Основными задачами данной работы являются:

1. Разработка неразрушающего метода определения средней УА природных радионуклидов в строительных материалах.
2. Проведение измерений УА естественных радионуклидов в помещениях, в которых проводились длительные измерения ОА радона с помощью трековых детекторов или радон-монитора.
3. Сравнение измерений ОА радона с расчетными значениями, основанными на измерениях УА радионуклидов в строительных материалах с помощью полевого гамма-спектрометра.

Материалы и методы

Для проведения неразрушающего контроля содержания природных радионуклидов в строительных материалах эксплуатируемых зданий предложено использовать возможности полевой гамма-спектрометрии. Современные приборы этого класса имеют широкий диапазон энергий регистрируемых гамма-квантов (до 3 МэВ), большое число каналов (до 1024), достаточно высокую чувствительность. Также они имеют небольшой размер и массу, оснащены современным

интерфейсом и обладают рядом других достоинств. В настоящем исследовании в качестве средства измерения был использован полевой гамма-спектрометр МКС АТ6101ДР, имеющий также функцию измерения мощности амбиентного эквивалента дозы [17]. Серийные гамма-спектрометры МКС АТ6101ДР предназначены для радиометрии без отбора проб, в частности, для измерения поверхностной и УА отдельных радионуклидов в почвах и грунтах в геометрии измерения *in situ*. Учитывая специфику своего основного применения, спектрометр откалиброван для измерений в геометрии 2п для полубесконечного пространства. В некоторых случаях для измерений в приповерхностных скважинах для определения УА почвы может использоваться калибровка в геометрии 4п. Очевидно, что стандартные калибровки гамма-спектрометра нельзя использовать для измерений в квартирах и офисах, где шесть объемных источников гамма-излучения расположены на разном расстоянии от детектора (плиты перекрытия и четыре стены). Следовательно, необходимо использовать другую схему измерения и выполнить соответствующую калибровку. Наиболее точное измерение УА естественных радионуклидов в каждой из стен (возможно, сделанных из различных материалов) и плиты перекрытия может быть выполнено, когда детектор, окруженный свинцовым экраном, установлен близко к стене или плите перекрытия. Для многоэтажных зданий можно предположить, что УА радионуклидов в плите перекрытия потолка равна таковой в плите перекрытия пола. В таком случае толщина свинцового экрана должна быть достаточной для защиты от излучения от всех источников в помещении, кроме исследуемого объекта (стены или плит перекрытия). Расчеты показали, что для выполнения этого требования вес свинцового экрана должен составлять 120 ± 20 кг. Поэтому использование данной схемы измерения, особенно для крупномасштабных исследований, было отклонено как нереализуемое.

В данной работе был предложен другой подход:

1. Калибровка эффективности регистрации в фотопике (пике полного поглощения) соответствующего радионуклида по плотности потока нерассеянных гамма-квантов по стандартным радионуклидным источникам.
2. Расчет плотности потока нерассеянных гамма-квантов в помещении, нормированной на единицу УА соответствующего радионуклида в строительных материалах. Расчет следует производить на реальную геометрию помещения (длину, ширину, высоту, толщину стен и плит перекрытия) с учетом наличия дверных и оконных проемов.
3. Расчет средней УА строительных материалов исследуемого помещения путем сравнения измеренной скорости счета в фотопике с расчетной плотностью потока нерассеянных гамма-квантов в помещении, нормированной на единицу УА.
4. Расчет потока радона в помещении за счет его диффузии из строительных материалов и оценка ожидаемой ОА радона в воздухе для различных значений кратности воздухообмена в помещении. Такие параметры, как коэффициент диффузии, коэффициент эманирования и пористость материала, точные значения которых обычно неизвестны исследователю, могут быть заданы случайным образом по методу Монте-Карло. Таким образом можно оценить неопределенность значения ОА радона.

Такой подход предполагает, что УА естественных радионуклидов в материалах стен и плит перекрытия различаются незначительно. В большинстве практических случаев это предположение справедливо для общей оценки.

Калибровка эффективности регистрации в фотопике

Учитывая возможный круг радиометрических задач, которые могут решаться при помощи полевого гамма-спектрометра внутри зданий, было решено откалибровать его чувствительность в фотопике для трех основных естественных радионуклидов: ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K . Для каждого из радионуклидов были выбраны наиболее характерные линии излучения в их цепочке распада: ^{226}Ra – 609 кэВ (^{214}Bi), ^{232}Th – 2614 кэВ (^{208}Tl), ^{40}K – 1460 кэВ. Для калибровки использовался эталонный источник ^{226}Ra с активностью 508 кБк (соотношение $^{214}\text{Bi}/^{226}\text{Ra} = 0,59$) и источник ^{228}Th с активностью 23,1 кБк. Неопределенность активности ^{226}Ra составляет 5%, неопределенность отношения $^{214}\text{Bi}/^{226}\text{Ra}$ составляет 3% ($k = 2$) (k – коэффициент охвата). Неопределенность активности ^{228}Th составляет 3% ($k = 2$). Как известно, стандартный точечный источник ^{40}K создать невозможно. Поэтому калибровка спектрометра на чувствительность к гамма-квантам с энергией 1460 кэВ проводилась по линии излучения ^{152}Eu 1408 кэВ, которая наиболее близка к требуемой энергии. Впоследствии было учтено влияние различия коэффициентов поглощения для разных энергий на эффективность регистрации в фотопике. По нашим оценкам, разница в энергии линий излучения ^{40}K и ^{152}Eu приводит к снижению эффективности регистрации в фотопике для ^{40}K по сравнению с ^{152}Eu не более чем на 1,5%. При калибровке использовался стандартный источник ^{152}Eu с активностью 98,6 кБк. Неопределенность активности этого источника составляет 3% ($k = 2$). По активности все источники были аттестованы в ВНИИМ им. Д.И. Менделеева (Санкт-Петербург). Коэффициент эманирования радиевого источника (соотношение активностей $^{214}\text{Bi}/^{226}\text{Ra}$) был определен путем сопоставления мощностей дозы используемого источника с мощностью дозы от аналогичного источника, для которого активность ^{226}Ra и коэффициент эманирования были измерены с высокой точностью [18].

При калибровке гамма-спектрометра источник радия располагался на расстоянии 100 см от центра детектора. Для остальных источников, учитывая их меньшую активность, было выбрано расстояние 50 см. Тем не менее, во всех случаях поток гамма-квантов можно рассматривать как однонаправленный. Измерения проводились под разными углами к оси детектора. В данном случае угол, равный 0 градусов, означал падение излучения на переднюю часть кристалла $\text{NaI}(\text{Tl})$, а угол 180 градусов понимался как излучение, прошедшее через весь корпус спектрометра.

Расчет плотности потока нерассеянных гамма-квантов в помещении

Был предложен метод расчета плотности потока нерассеянных гамма-квантов в точке расположения детектора в зависимости от размера помещения и материала ограждающих конструкций. Для расчета плотности потока гамма-квантов каждый из источников (стена, плита пола или потолка) моделировался прямоугольным параллелепипедом соответствующего размера. Данные о размерах комнаты и толщине стен и плит пола и потолка были взяты из документации на квартиру. Точное местоположение детектора определялось с помощью лазерного дальномера. Для учета наличия в стенах окон и дверей были рассчитаны потоки фотонов от источников соответствующих размеров. Далее рассчитанные значения вычитались из плотности потока гамма-квантов от соответствующей сплошной стены. Плотность потока гамма-квантов рассчитывалась с помощью программы *MicroShield 11.2* [19].

Измерение средней удельной активности естественных радионуклидов в строительных материалах помещения

Испытания разработанного неразрушающего метода оценки УА естественных радионуклидов в строительных материалах проводилась в одном лабораторном и двух жилых помещениях. Продолжительность измерения – от 30 до 60 мин. По возможности проводились повторные измерения. При обработке спектров, полученных в ходе измерений, была определена скорость счета I_{meas} в фотопиках 609, 1460 и 2614. Путем умножения расчетной плотности потока гамма-квантов на экспериментально определенную чувствительность детектора была получена расчетная скорость счета I_{calc} в соответствующем фотопике, нормированная на 100 Бк/кг ^{226}Ra , ^{232}Th или ^{40}K . Далее расчет средней УА соответствующего радионуклида проводился как:

$$\overline{A}_m = \frac{I_{meas}}{I_{calc}} \cdot 100, \text{ Бк/кг}, \quad (1)$$

Расчет диффузионного потока радона в помещение из строительных материалов

Скорость эксхалляции радона Бк/м² с из материала с УА радия C_{Ra} описывается уравнением:

$$q = C_{\text{Ra}} \rho E \sqrt{\frac{\lambda_0 D_e}{p}} \tanh \left(d \sqrt{\frac{\lambda_0 p}{D_e}} \right), \quad (2)$$

где ρ – плотность материала, кг/м³; E – коэффициент эманирования; λ_0 – постоянная распада радона, с⁻¹; D_e – эффективный коэффициент диффузии по объему материала, м²·с⁻¹; p – пористость материала; d – половина толщины слоя материала, м.

Если предположить, что радон равномерно распределен в помещении при условии мгновенного перемешивания воздуха, то процесс, описывающий изменение ОА радона в помещении, можно описать следующим дифференциальным уравнением:

$$\frac{dC_{\text{Rn}}}{dt} = \frac{\sum_{i=1}^6 q_i S_i}{V} + C_{\text{Rn}}^{\text{outdoor}} \lambda_v - C_{\text{Rn}} (\lambda_v + \lambda_0), \quad (3)$$

где S_i – площадь соответствующей стены, пола или потолка; $C_{\text{Rn}}^{\text{outdoor}}$ – ОА радона в наружном воздухе; λ_v – кратность воздухообмена с атмосферой вне помещения. В результате решения этого дифференциального уравнения получаем:

$$C_{\text{Rn}} = \left(\frac{\lambda_v}{\lambda_0 + \lambda_v} \right) \left(C_{\text{Rn}}^{\text{outdoor}} + \frac{\sum_{i=1}^6 q_i S_i}{\lambda_v V} \right) \{ 1 - \exp [-(\lambda_0 + \lambda_v) t] \} + C_{\text{Rn}}^{\text{indoor}} (t=0) \exp [-(\lambda_0 + \lambda_v) t], \quad (4)$$

где $C_{\text{Rn}}^{\text{indoor}} (t=0)$ – концентрация радона в помещении в момент изменения скорости воздухообмена. Как правило, в жилых помещениях кратность воздухообмена находится в пределах $0,1 < \lambda_v < 2,0 \text{ ч}^{-1}$, т. е. $\lambda_v \gg \lambda_0$. Следовательно, для установившегося режима уравнение (3) может быть записано в виде:

$$C_{\text{Rn}} = C_{\text{Rn}}^{\text{outdoor}} + \frac{\sum_{i=1}^6 q_i S_i}{\lambda_v V}. \quad (5)$$

При фиксированных значениях всех рассматриваемых параметров расчеты по уравнениям (1)–(4) не представляют сложности. Для оценки неопределенности в оценке ОА радона, вызванной неизвестными значениями коэффициента диффузии радона, коэффициента эманирования, пористости и неопределенности в оценке толщины ограждающих конструкций, использовался программный пакет *RESRAD-Build 3.5* [20]. Конечным результатом расчетов в про-

грамме *RESRAD-Build 3.5* являются значения эффективной дозы и неопределенности ее оценок для человека в здании, содержащем различные источники ионизирующего излучения. Однако в процессе расчетов программа создает промежуточные выходные файлы, в которых приводятся значения ОА радона и продуктов его распада ^{218}Po , ^{214}Pb и ^{214}Bi . Поэтому для оценки ОА радона в помещении мы использовали не обратный расчет от конечного значения (эффективной дозы), а результаты прямых расчетов ОА радона, приведенные в выходных файлах.

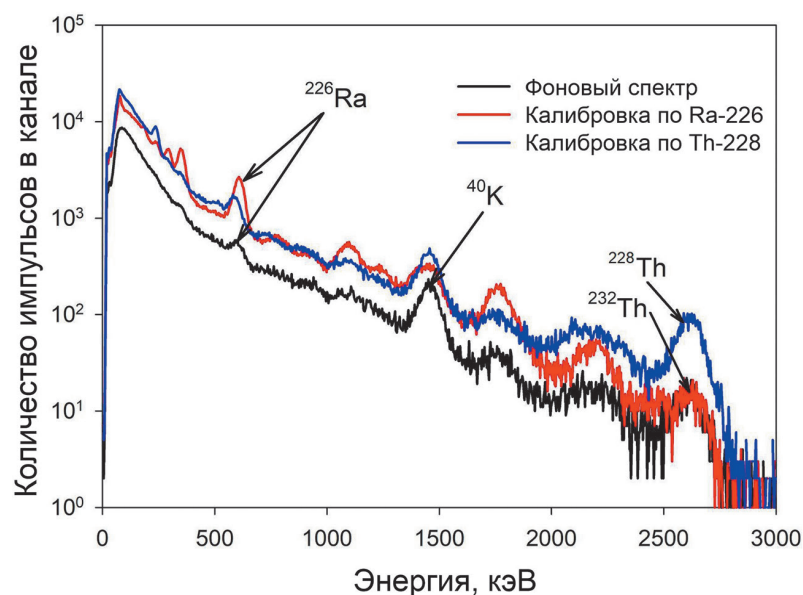


Рис.1. Типичный фоновый спектр и калибровочные спектры для ^{226}Ra и ^{228}Th .

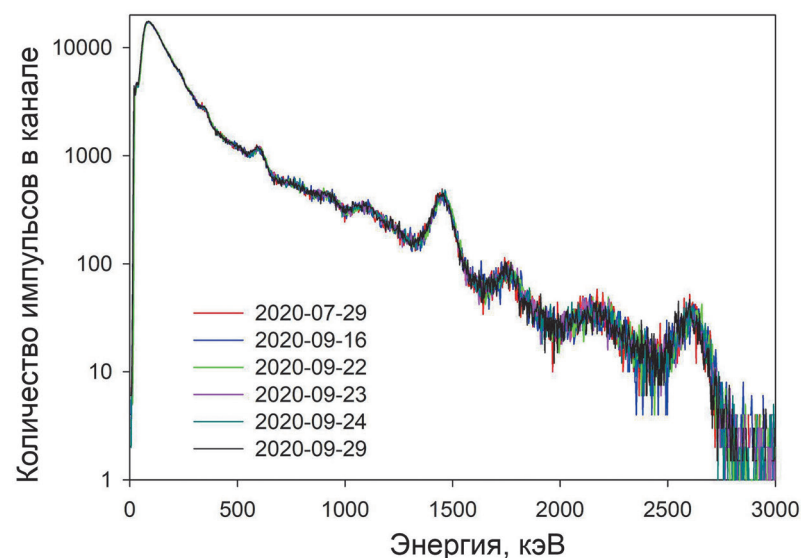


Рис.2. Фоновые спектры, нормированные на время измерения 1 час.

эффективности регистрации в фотопике от угла падения демонстрируется на примере калибровки для линии 2614 кэВ с использованием источника ^{228}Th (рис.4).

Результаты

Калибровка эффективности регистрации в фотопике

Типичные калибровочные спектры для ^{226}Ra и ^{228}Th показаны на рис.1. На этом рисунке также показан спектр фона, типичный для помещения, в котором проводилась калибровка.

Во время калибровки радиационная обстановка в помещении оставалась неизменной. Мощность дозы фонового гамма-излучения, измеренная калиброванным гамма-спектрометром, составила 100 ± 14 нЗв/ч. Фоновые спектры, нормированные на продолжительность измерения 1 ч, полностью совпадали (рис.2). Угловая зависимость чувствительности детектора показана на рис.3. В целом угловая зависимость чувствительности детектора в фотопике слабая. Эффект экранирования корпусом спектрометра в наибольшей степени наблюдается для линии излучения 609 кэВ.

Слабая зависимость эффек-

Во время измерений в помещении гамма-излучение взаимодействует с детектором под разными углами, близкими к геометрии 4π. Поскольку точное угловое распределение гамма-излучения определить практически невозможно, в наших исследованиях использовали усредненные значения чувствительности в фотопике, нормированные на единицу плотности потока нерассеянных гамма-квантов соответствующих энергий. Направление, соответствующее углу более 135 градусов (прохождение квантов через корпус спектрометра), было исключено из рассмотрения, поскольку оно составляет менее 15% полного телесного угла 4π. Средние значения чувствительности спектрометра в фотопике составили: для ^{226}Ra $\varepsilon = 11,7 \pm 1,0 \text{ см}^{-2}$, для ^{40}K $\varepsilon = 4,33 \pm 0,79 \text{ см}^{-2}$, для ^{232}Th $\varepsilon = 2,13 \pm 0,09 \text{ см}^{-2}$.

Расчет плотности потока нерассеянных гамма-квантов в помещении

Оценка УА естественных радионуклидов в строительных материалах проводилась в лаборатории и двух жилых помещениях, в которых средняя ОА радона измерялась с помощью трековых детекторов или радонового монитора *AlphaGUARD*.

Лабораторное Помещение 1 было расположено на втором этаже двухэтажного здания (г. Екатеринбург), построенного в конце 70-х – начале 80-х гг. Размеры помещения – 6,50×5,84×2,75 м (Д×Ш×В). Две стены представляют собой стеклянные панели по всей ширине стены от пола до потолка. Две другие стены толщиной 15 см – из кирпича. В каждой из стен – стандартный дверной проем размером 200×100 см. Плиты перекрытия представляют собой бетонные панели толщиной 22 см и содержат внутренние цилиндрические пустоты. Точное положение детектора (в центре комнаты на расстоянии 75 см от пола), а также положение дверных проемов опре-

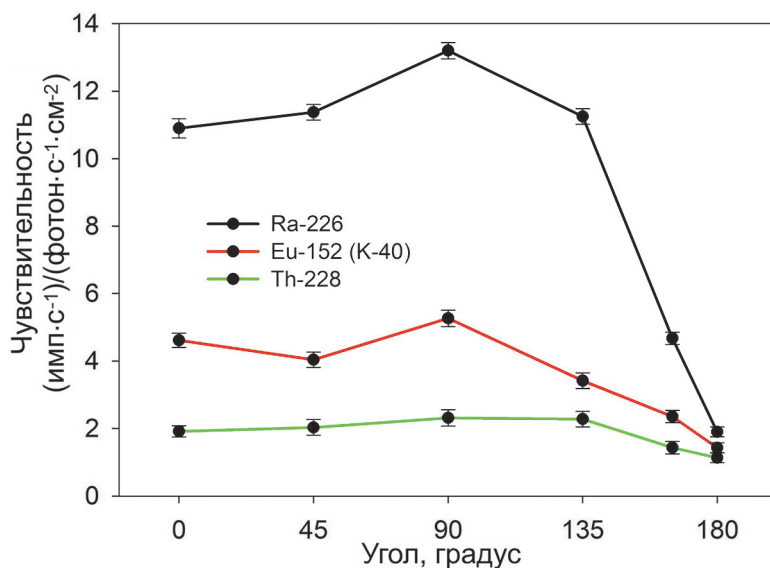


Рис. 3. Угловая зависимость чувствительности детектора.

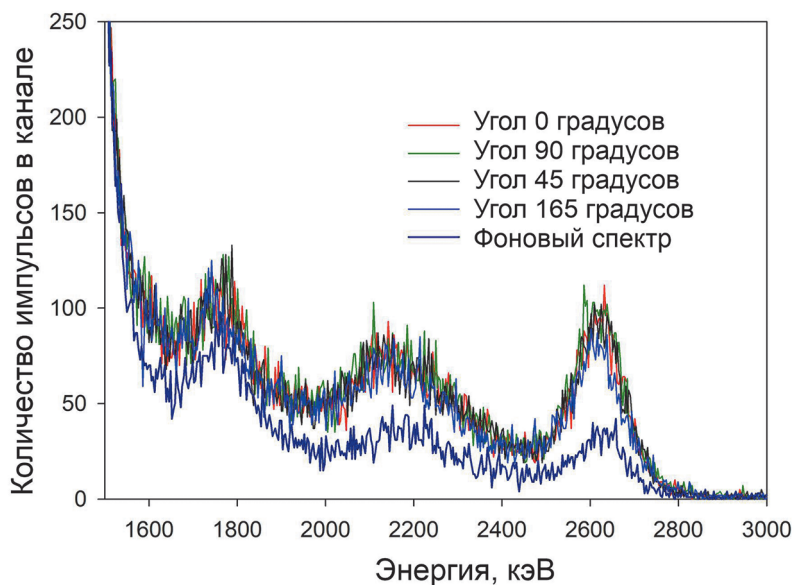


Рис. 4. Пример калибровки для линии 2614 кэВ (^{228}Th) для разных углов падения.

делялось с помощью профессионального строительного лазерного дальномера. Мощность дозы гамма-излучения, измеренная гамма-спектрометром, составила 100 ± 14 нЗв/ч.

С учетом наличия пустот как в плитах перекрытия, так и в кирпиче, в расчетах использовались эффективные значения плотности строительных материалов: 1390 кг/м^3 для перекрытий, 1600 кг/м^3 для кирпича. Были рассчитаны плотности потока гамма-квантов с энергиями 609, 1460 и 2614 кэВ от естественных радионуклидов в строительных материалах. Расчетные значения плотности потока гамма-квантов, нормированные на УА 100 Бк/кг каждого из радионуклидов, составили: для 609 кэВ – 0,433; для 1460 кэВ – 0,136; для 2614 кэВ – $0,542 \text{ см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ соответственно.

Помещение 2 расположено в трехкомнатной квартире на 13 этаже 16-этажного жилого дома (г. Екатеринбург). Здание построено в 2012 году по технологии монолитного бетона. Размеры помещения – $4,59 \times 3,62 \times 2,54$ м (Д \times Ш \times В). Толщина плит перекрытия составляет 22 см. Две несущие стены толщиной 15 см также выполнены из монолитного бетона, одна стена толщиной 15 см из кирпича, а противоположная стена толщиной 19 см, выходящая на балкон, из газобетонных блоков. Для монолитного бетона при расчетах была взята плотность 2400 кг/м^3 и 500 кг/м^3 для газобетона. Мощность дозы гамма-излучения, измеренная гамма-спектрометром, составила 147 ± 22 нЗв/ч.

Измерения проводились у пола в центре комнаты на равном расстоянии от стен. Плотности потока гамма-квантов с энергиями 609, 1460 и 2614 кэВ были рассчитаны для данного размера комнаты и местоположения детектора. Как и в предыдущем случае, плотности потока гамма-квантов нормировались на УА рассматриваемых природных радионуклидов 100 Бк/кг. Расчетные значения плотности потока гамма-квантов составили: для 609 кэВ – 0,535; для 1460 кэВ – 0,174; для 2614 кэВ – $0,732 \text{ см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ соответственно.

Помещение 3 расположено в квартире на 7 этаже 16-этажного дома (г. Тюмень). Здание построено в 2016 году по технологии монолитного бетона. Размеры помещения – $7,44 \times 3,80 \times 2,60$ м (Д \times Ш \times В). Помещение 3 – гостиная, совмещенная с кухней. Наружная длинная стена сделана из газобетона толщиной 30 см. Одна из коротких стен (3,8 м), расположенная на большем расстоянии от детектора, выполнена из монолитного бетона толщиной 22 см. Другая короткая стена сделана из кирпича 15 см. Длинная внутренняя стена также сделана из кирпича, за исключением участка 1,75 м из монолитного бетона толщиной 22 см. Дверь в комнату находится в кирпичной части стены напротив расположения детектора гамма-спектрометра. Мощность дозы гамма-излучения, измеренная гамма-спектрометром, составила 38 ± 14 нЗв/ч.

Детектор был смещен относительно центра комнаты. Как и в предыдущем случае, детектор спектрометра располагался у пола, и расчеты плотности потока проводились для этой геометрии. Расчетные значения плотности потока гамма-квантов, нормированные на УА рассмотренных природных радионуклидов 100 Бк/кг, составили: для 609 кэВ – 0,528; для 1460 кэВ – 0,174; для 2614 кэВ – $0,731 \text{ см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ соответственно.

Измерение средней удельной активности естественных радионуклидов в строительных материалах помещения

Для Помещения 1 во время калибровки гамма-спектрометра было проведено шесть измерений фоновых спектров, которые хорошо согласовывались друг с другом (рис.2). Благодаря наличию хорошей статистики измерений, анализ проводился с использованием спектра, усред-

ненного по всем измерениям и нормированного на время измерения 3600 с. Экспериментально измеренные скорости счета в фотопиках для энергий 609, 1460 и 2614 кэВ составили 1,67, 2,59 и 0,22 с⁻¹ соответственно. На основании представленных данных с учетом ранее проведенной калибровки чувствительности гамма-спектрометра рассчитаны средние удельные активности природных радионуклидов в строительных материалах: ²²⁶Ra – 32,9 Бк/кг; ²³²Th – 19,0 Бк/кг; ⁴⁰K – 440 Бк/кг соответственно. Эти значения соответствуют типичным УА естественных радионуклидов в строительных материалах, которые использовались в Екатеринбурге при строительстве этого здания (70–80-е гг. 20 века) [21].

Для Помещения 2 экспериментально измеренные скорости счета в фотопиках для энергий 609, 1460 и 2614 кэВ составляли 2,77, 3,78 и 0,29 с⁻¹ соответственно. Средние УА природных радионуклидов в строительных материалах составили: ²²⁶Ra – 44,3 Бк/кг; ²³²Th – 18,6 Бк/кг; ⁴⁰K – 502 Бк/кг соответственно. Эти УА хорошо согласуются с типичными значениями для материалов, используемых в Екатеринбурге для строительства многоэтажных домов в начале 21 века [14].

Для Помещения 3 экспериментально измеренные скорости счета в фотопиках для энергий 609, 1460 и 2614 кэВ составили 0,89, 1,76 и 0,142 с⁻¹ соответственно. Средние УА природных радионуклидов в строительных материалах составили: ²²⁶Ra – 14,4 Бк/кг; ²³²Th – 9,1 Бк/кг; ⁴⁰K – 234 Бк/кг соответственно. Следует отметить большую разницу в средних значениях УА природных радионуклидов в строительных материалах, используемых при строительстве современных многоэтажных домов в Екатеринбурге и Тюмени. Эти различия хорошо видны при сравнении спектров, измеренных в Помещении 2 г. Екатеринбурга и Помещении 3 г. Тюмени (рис.5).

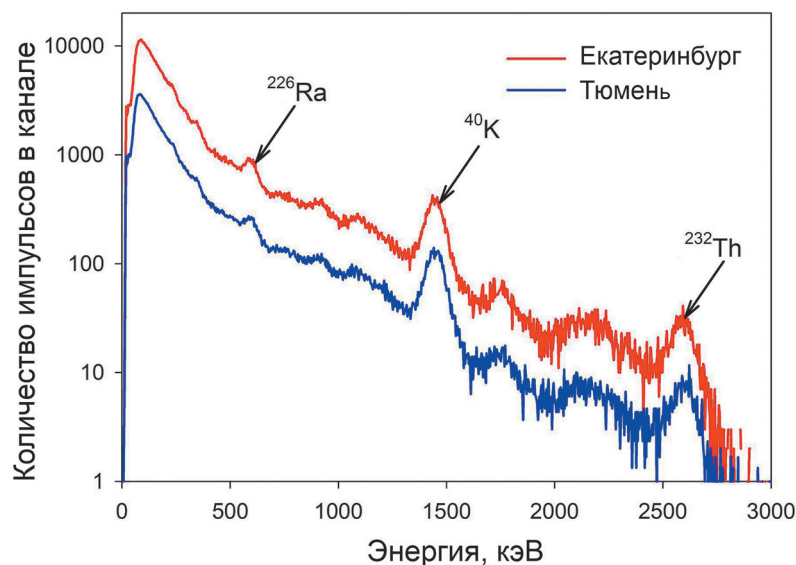


Рис.5. Спектры гамма-излучения, измеренные в Помещении 2 (г. Екатеринбург) и Помещении 3 (г. Тюмень), время измерения спектра – 1800 с.

установленными в программе *RESRAD-Build 3.5* по умолчанию. Все эти значения находятся в пределах типичного диапазона для этих параметров [2,3,22-25]. Результаты расчетов представлены на рис.6. На рисунке также показаны средние значения ОА радона, измеренные с помощью

Расчет диффузионного потока радона в помещение из строительных материалов

Расчеты потока радона из строительных материалов проводились для диапазона кратностей воздухообмена от 0,05 до 1 ч⁻¹. При расчетах были взяты фиксированные значения эффективного коэффициента диффузии $D_e = 2 \cdot 10^{-8}$ м²/с, коэффициента эманирования $E = 0,2$ и пористости материала $p = 0,1$. Значения коэффициента эманирования и пористости являются значениями, уста-

радонового монитора или трековых детекторов. Для Помещений 1 и 2 измерения ОА радона проводились непосредственно в помещениях, в которых измерялись потоки гамма-квантов. Для Помещения 3 измерения ОА радона проводились в идентичной квартире, расположенной в том же жилом комплексе.

Данные, представленные на рис.6, показывают, что для многоэтажных домов расчетные значения ОА радона, полученные исключительно для диффузионного пути поступления радона из

строительных материалов, соответствуют экспериментально измеренным значениям ОА радона для кратности воздухообмена $0,25 \text{ ч}^{-1}$. Согласно результатам наших исследований, это значение характерно для современных многоэтажных домов, построенных с применением энергосберегающих технологий [15,16]. Для Помещения 1 наблюдаемое среднее значение ОА радона нельзя объяснить исключительно диффузией из строительных материалов. Экспериментально измеренное значение соответствует расчетному значению при кратности воздухообмена $0,10 \text{ ч}^{-1}$, что является экстремально низкой средней кратностью воздухообмена. Однако необходимо учитывать, что Помещение 1 находится на втором этаже, а под ним находится служебно-техническое помещение с земляным полом, без окон и механической вентиляции.

В нашей работе было показано, что для лабораторного помещения на первом этаже этого же здания скорость поступления радона на единицу объема составляет $30\text{--}35 \text{ Бк}\cdot\text{ч}^{-1}\cdot\text{м}^{-3}$ [12]. При отсутствии принудительной вентиляции значения ОА радона в техническом помещении могут достигать $150\text{--}250 \text{ Бк}/\text{м}^3$. В этом случае возможно поступление радона из технического помещения в Помещение 1, расположенное выше.

Таким образом, можно сделать вывод, что для многоэтажных домов, где основным источником радона является его диффузия из строительных материалов, предлагаемый метод неразрушающего контроля, основанный на измерении средней УА радия в строительных материалах, применим для расчета ОА радона в помещениях зданий. Использование диффузионной модели позволяет получить результаты, хорошо согласующиеся с экспериментальными измерениями.

Выводы

Текущая тенденция к строительству многоэтажных жилых энергоэффективных зданий приводит к тому, что основным источником поступления радона является диффузия из строительных материалов. Это делает контроль УА ^{226}Ra в строительных материалах актуальным даже в тех случаях, когда эффективная удельная активность материала заметно ниже предель-

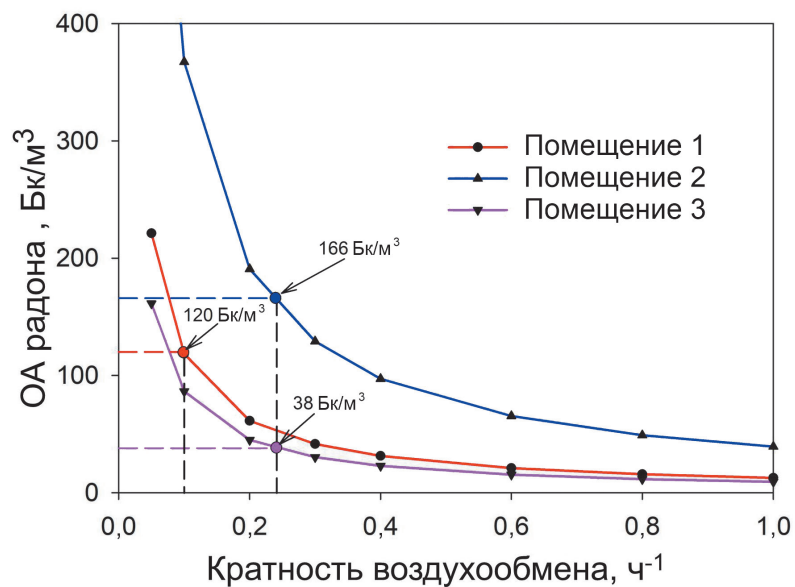


Рис.6. Сравнение расчетных значений ОА радона, основанных на измерениях потока гамма-квантов, с результатами измерений средних значений ОА радона.

ных значений. Для уже построенных и эксплуатируемых зданий измерение УА естественных радионуклидов в конкретном помещении представляет определенные организационные и технические трудности, связанные с необходимостью отбора образцов строительных материалов для лабораторного анализа. Для решения этой проблемы предлагается неразрушающий метод, заключающийся в анализе спектров гамма-излучения естественных радионуклидов, измеренных в выбранном помещении полевым гамма-спектрометром с фиксированной геометрией положения детектора.

Расчет средней УА естественных радионуклидов в строительных материалах осуществляется путем сравнения плотности потока нерассеянных гамма-квантов заданной энергии, рассчитанной для геометрии исследуемого помещения и расположения детектора, и экспериментально измеренной скорости счета в соответствующих фотопиках. При расчетах предполагается, что УА естественных радионуклидов в строительных материалах одинакова для всех строительных конструкций, независимо от их плотности. Соответственно учитывается наличие дверных и оконных проемов в стенах: рассчитывается плотность потока от участка стены, на котором находится дверь или окно, и полученное значение вычитается из потока, рассчитанного для всей стены.

Для полевого гамма-спектрометра с кристаллом NaI(Tl) 63×63 мм рассчитаны коэффициенты преобразования от плотности потока нерассеянных гамма-квантов к скорости счета в фотопике соответствующей энергии. Средние значения чувствительности спектрометра в фотопике составили для ^{226}Ra (609 кэВ) $\varepsilon = 11,7 \pm 1,0 \text{ см}^{-2}$, для ^{40}K (1460 кэВ) $\varepsilon = 4,33 \pm 0,79 \text{ см}^{-2}$, для ^{232}Th (2614 кэВ) $\varepsilon = 2,13 \pm 0,09 \text{ см}^{-2}$. Калибровка проводилась при удалении источника от кристалла детектора на расстояние не менее 50 см, так что поток квантов можно было считать параллельным. Это позволяет использовать результаты данной калибровки для анализа предварительных измерений, выполненных на гамма-спектрометрах другого типа с тем же размером кристалла.

Для трех разных помещений были рассчитаны плотности потока нерассеянных гамма-квантов в точке расположения детектора. Расчет производился с учетом геометрии помещения, толщины и плотности строительных конструкций (стены и плиты перекрытия). Каждый объемный источник (плита или стена) моделировался суперпозицией ячеек, рассматриваемых как точечные источники, расположенные в среде, поглощающей гамма-излучение.

Для выбранных комнат измерялась плотность потока нерассеянных гамма-квантов в фотопиках 609, 1460 и 2614 кэВ. Путем сравнения измеренных значений с расчетными данными были рассчитаны средние значения удельной активности ^{226}Ra , ^{40}K и ^{232}Th в строительных материалах. Полученные значения хорошо согласуются с данными об УА естественных радионуклидов в строительных материалах, используемых при строительстве рассматриваемых зданий.

Для рассчитанных значений средней УА ^{226}Ra в строительных материалах ожидаемые значения ОА радона в помещениях были рассчитаны для кратности воздухообмена от 0,1 до 1,0 ч⁻¹. Показано, что для помещений, расположенных в современных многоэтажных энергоэффективных зданиях, расчетные значения ОА радона соответствуют средним экспериментально измеренным значениям при кратности воздухообмена 0,25 ч⁻¹, что согласуется с оценками для зданий этого типа. Это подтверждает предположение о том, что основным источником радона для помещений верхних этажей многоэтажных домов является диффузия радона из строительных материалов.

Разработанный метод неразрушающего контроля содержания ^{226}Ra в строительных материалах может быть применен для изучения ^{226}Ra как источника радона как в новых, так и в уже

эксплуатируемых зданиях. Полученная зависимость между средней активностью ^{226}Ra и ОА радона в помещениях может быть использована для улучшения системы радиологической защиты в ситуации облучения радоном с учетом современных тенденций в строительстве.

Финансирование

Работа поддержана Российским научным фондом (грант № 19-19-00191).

Благодарности

Авторы выражают благодарность Агентству экологической безопасности Альфа-Х91 за предоставленный полевой гамма-спектрометр МКС-АТ6101ДР.

Литература

1. UNSCEAR 2006. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. New York: United Nations, 2006.
2. A.V. Nero, W.W. Nazaroff. Characterizing the Source of Radon Indoors // *Radiat. Prot. Dosim.*, vol. 7, pp. 23-39, 1984. URL: <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.rpd.a082958> (дата обращения: 18.12.2020).
3. W.W. Nazaroff, "Entry by pressure-driven flow or molecular diffusion? A reassessment of ^{222}Rn concentrations measured in an energy efficient house", *Health Phys.* vol. 55, pp. 1005-1009, 1988.
4. H. Arvela, "Seasonal Variation in radon concentration of 3000 dwellings with model comparisons", *Radiat. Protect. Dosim.*, vol. 59, no. 1, pp. 33-42, 1995. URL: <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.rpd.a082634> (дата обращения: 18.12.2020).
5. European Collaborative Action "Indoor Air Quality and its Impact on Man", "Radon in indoor air". Report no. 15, EUR 161 23 EN, 1995. URL: http://www.inive.org/medias/ECA/ECA_Report15.pdf (дата обращения 03.01.2021).
6. B. Levesque, D. Gauvin, R.G. McGregor et al., "Radon in residences: influences of geological and housing characteristics", *Health Phys.*, vol. 72, pp. 907-914, 1997. URL: <https://doi.org/10.1097/00004032-199706000-00009> (дата обращения: 18.12.2020).
7. ICRP. Protection Against Radon-222 at Home and at Work. ICRP Publication 65. Ann. ICRP, vol. 23, no. 2, 1993.
8. G.A. Swedjemark, "Radioactivity in houses built of aerated concrete based on alum shale". Specialist meeting on the assessment of radon and daughter exposure and related biological effects. Rome, 3-8 March, 1980. URL: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/11/555/11555044.pdf?r=1 (дата обращения: 03.01.2021).
9. G.A. Swedjemark, "The history of radon from a Swedish perspective", *Radiat. Protect. Dosim.*, vol. 109, no. 4, pp. 421-426, 2004. URL: <https://doi.org/10.1093/rpd/nch318> (дата обращения: 03.01.2021).
10. J. Hulka, J. Vlcek and J. Thomas, "Natural radioactivity in building materials – Czech experience and European legislation". Proceedings of the American Association of Radon Scientists and Technologists 2008 International Symposium Las Vegas NV, September 14-17, pp. 1-8, 2008. URL: <http://citeseerx.ist.psu.edu/viewdoc/download?doi=10.1.1.371.4443&rep=rep1&type=pdf> (дата обращения: 03.01.2021).
11. J. Thomas, "Prehistory of the Czech radon program", *Radiat. Protect. Dosim.*, vol. 191, no. 2, pp. 121-124, 2020. URL: <https://doi.org/doi:10.1093/rpd/ncaa164> (дата обращения: 03.01.2021).

12. A.V. Vasilyev and M.V. Zhukovsky, “Determination of mechanisms and parameters which affect radon entry into a room”, *J. Environ. Radioact.*, vol. 124, pp. 185-190, 2013. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.04.014> (дата обращения: 03.01.2021).
13. I.V. Yarmoshenko, A.D. Onishchenko, G.P. Malinovsky, A.V. Vasilyev, E.I. Nazarov and M.V. Zhukovsky, “Radon concentration in conventional and new energy efficient multi-storey apartment houses: results of survey in four Russian cities”, *Sci. Rep.* vol. 10, article 18136, 2020. URL: <https://doi.org/10.1038/s41598-020-75274-4> (дата обращения: 03.01.2021).
14. M.V. Zhukovsky and A.V. Vasilyev, “Mechanisms and sources of radon entry in buildings constructed with modern technologies”, *Radiat. Protect. Dosim.*, vol. 160, no. 1–3, pp. 48-52, 2014. URL: <https://doi.org/10.1093/rpd/ncu111> (дата обращения: 03.01.2021).
15. I.V. Yarmoshenko, A.V. Vasilyev, A.D. Onishchenko, S.M. Kiselev, and M.V. Zhukovsky, “Indoor radon problem in energy efficient multi-storey buildings”, *Radiat. Protect. Dosim.*, vol. 160, no. 1–3, pp. 53-56, 2014. URL: <https://doi.org/10.1093/rpd/ncu110> (дата обращения: 03.01.2021).
16. A.V. Vasilyev, I.V. Yarmoshenko and M.V. Zhukovsky, “Low air exchange rate causes high indoor radon concentration in energy-efficient buildings”, *Radiat. Protect. Dosim.*, vol. 164, no. 4, pp. 601-605, 2015. URL: <https://doi.org/doi:10.1093/rpd/ncv319> (дата обращения: 03.01.2021).
17. АТОМТЕХ, Instruments and technologies for nuclear measurements and radiation monitoring. Product Catalogue, 2020. URL: ftp://ftp.atomtex.com/catalogues/catalogue_en.pdf (дата обращения: 03.01.2021).
18. Мостафа М.Ю., Жуковский М.В., Васянович М.Е. Прототип первичного эталона объемной активности радона // АНРИ. 2017. N 3(90). С. 2-15.
19. Grove Software, MicroShield® User’s Manual. Grove Software, Division of Grove Engineering, Inc., 2017.
20. C. Yu, D.J. LePoire, J.-J. Cheng et al. User’s Manual for RESRAD-BUILD Ver. 3. ANL/EAD/03-1. Argonne, Illinois: Argonne National Laboratory, 2003.
21. Трейгер С.И., Пискунов Л.И., Смирнов Б.П. Естественная радиоактивность строительных материалов на Среднем Урале. Свердловск: ПГО Уралгеология, 1987. 52 с.
22. M. Culot, H. Olson and K. Schiager, “Effective diffusion coefficient of radon in concrete, theory and method for field measurements”, *Health Phys.*, vol. 30, pp. 263-270, 1976.
23. C. Nuccetelli, F. Leonardi and R. Trevisi, “Building material radon emanation and exhalation rate: Need of a shared measurement protocol from the European database analysis”, *J. Environ. Radioact.*, vol. 225, article 106438, 2020. URL: <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106438> (дата обращения: 03.01.2021).
24. R. Chauhan and A. Kumar, “A Comparative study of indoor radon contributed by diffusive and advective transport through intact concrete”, *Physics Procedia*, vol. 80, pp. 109-112, 2015. URL: <https://doi.org/10.1016/j.phpro.2015.11.066> (дата обращения: 03.01.2021).
25. V.C. Rogers, K.K. Nielson and R.B. Holt, “Radon diffusion coefficients for aged residential concretes”, *Health Phys.*, vol. 68, pp. 832-834, 1995. URL: <https://doi.org/10.1016/10.1097/00004032-199506000-00011> (дата обращения: 03.01.2021).

Method of Non-Destructive Measurement of Natural Radionuclides Concentration in Building Materials

Vasilyev Aleksey¹, Ekidin Aleksey^{1,2}, Pyshkina Maria^{1,2}, Malinovsky Georgy¹, Onishchenko Alexandra¹, Yarmoshenko Iliia¹, Zhukovsky Mikhail¹

¹ Institute of Industrial Ecology, Ural Branch of the Russian Academy of Sciences, Yekaterinburg, Russia

² Agency for Environmental Safety «Alpha-X91», Yekaterinburg, Russia

Abstract. A method for non-destructive monitoring of the content of natural radionuclides in building materials has been developed. Spectrum measurements of gamma radiation are carried out with a pre-calibrated field gamma spectrometer. The calculation of the average specific activity of natural radionuclides in building materials is carried out by comparing the calculated flux density of unscattered gamma quanta normalized to the specific activity, and the experimentally measured count rates in the photopeak. calculated for the geometry of the room under study and the location of the detector. Application of the developed method makes it possible to estimate the average activity of natural radionuclides in building materials without destruction.

Key words: natural radionuclides, building materials, radon study, radium.

А.В.Васильев¹ (к.т.н., зав.лаб.), А.А.Екидин^{1,2} (к.ф.-м.н., в.н.с.), М.Д.Пышкина^{1,2} (м.н.с.), Г.П.Малиновский¹ (к.б.н., с.н.с.), А.Д.Онищенко¹ (к.б.н., с.н.с.), И.В.Ярмошенко¹ (к.ф.-м.н., зам.дирек.), М.В.Жуковский¹ (профессор, д.т.н., дирек.).

¹ Институт промышленной экологии УрО РАН, г. Екатеринбург.

² Агентство экологической безопасности «Альфа-Х91», г. Екатеринбург.

Контакты: тел. +7 (343) 362-34-21; e-mail: vav@ecko.uran.ru.