

В.С. Яковлева¹, V. Schmidt², P. Hamel², H. Buchröder², М.А. Гынгазова¹

Осаждение короткоживущих продуктов распада радона-222 на твердые поверхности

¹Томский политехнический университет, Россия

²Federal Office for Radiation Protection (BfS), Berlin, Germany

Поступила в редакцию 20.03.2005 г.

Проведен анализ данных по скорости осаждения неприсоединенных (свободных) дочерних продуктов распада радона (²²²Rn), представленных в литературе за последние два десятилетия. Описан долгосрочный эксперимент по исследованию диапазона изменения скорости осаждения короткоживущих продуктов распада ²²²Rn на поверхности (стены комнаты) для реальных жилых условий Германии. Проведен статистический анализ влияния различных параметров (атмосферное давление, температура воздуха внутри и вне помещения, влажность, турбулентность в приповерхностном воздухе, объемная активность радона в воздухе помещений, отопление, режим вентиляции и сезон года) на величину скорости осаждения. Среднее значение и диапазон изменения скорости осаждения составили $0,05 \text{ см} \cdot \text{с}^{-1}$ ($0,02\text{--}0,09 \text{ см} \cdot \text{с}^{-1}$) для свободных ²¹⁸Po и ²¹⁴Pb. Обнаружена значительная корреляция между скоростью осаждения свободного ²¹⁸Po и температурой, влажностью воздуха внутри помещения, сезоном года.

Введение

При решении прикладных задач в различных областях науки необходимо знать основные механизмы переноса дочерних продуктов распада (ДПР) радона в воздухе. Процессы переноса влияют на формирование объемной активности (ОА) радиоактивных аэрозолей и газов внутри помещений и определяют закономерности их поведения.

Продукты распада радона могут находиться в воздухе помещений в свободном и связанном, т.е. присоединенном к аэрозольным частицам, состоянии. Под свободным состоянием подразумевается молекулярное состояние химических соединений продуктов распада радона с парами NO, NO₂, H₂O, кислородом и различными газовыми примесями, находящимися в атмосфере помещений. Диаметр свободных ДПР радона лежит в пределах от 0,5 до 3 нм [1]. Частицы таких размеров переносятся в воздухе и оседают на различных поверхностях, в основном, посредством броуновской диффузии или, при наличии турбулентных процессов в воздухе помещений, турбулентной диффузии.

Осаждение на поверхности является наиболее важным процессом в снижении объемной активности радиоактивных аэрозольных частиц в воздухе помещений, ведущим к нарушению радиоактивного равновесия между радоном и продуктами его распада [2–4]. Количественные оценки осаждения ДПР радона на поверхности необходимы в метрологии [5–9], радиационной экологии и дозиметрии [10, 11].

Процессы осаждения ДПР радона характеризуются скоростью осаждения свободной (v^a) и свя-

занной (v^a) фракций, которые могут зависеть от множества факторов. На сегодняшний день хорошо изучено влияние на скорость осаждения свободных ДПР радона таких факторов, как электрическое поле [9, 12, 13], материал поверхности [12, 14], геометрия поверхности [12, 13], расположение поверхности по отношению к потоку частиц [15], турбулентность в воздухе помещения [12, 16–18].

Модельные расчеты и экспериментальные данные, полученные в работе [12], показали, что влияние турбулентности, наблюдаемой в домах с естественной вентиляцией, на скорость осаждения намного меньше, чем предполагалось ранее. Существенное различие в скорости осаждения было выявлено только при условии низкой турбулентности, наблюдаемой в термически изолированной камере или в жилых помещениях.

Скорость осаждения пропорциональна коэффициенту диффузии, который зависит от линейных размеров частиц. Диаметр ДПР радона при присоединении к аэрозольным частицам увеличивается, в среднем, на два порядка [3], и коэффициент диффузии снижается соответственно. Поэтому присоединенная фракция продуктов распада радона не вносит значительного вклада в процессы осаждения. Свободная фракция ДПР радона в воздухе представлена в основном (90% и более) короткоживущими изотопами ²¹⁸Po и ²¹⁴Pb, поэтому в процессах осаждения остальные изотопы (²¹⁴Bi) обычно не рассматривают.

Средние значения и диапазон изменения скорости осаждения свободных ДПР радона, полученные различными учеными теоретическим или экспериментальным способами, сведены в табл. 1.

Таблица 1

Источник	Скорость осаждения свободного ^{218}Po (^{214}Pb), см/с	Примечание
Hengde et al., 1982 [19]	0,4	Измерения пропорциональным счетчиком
Scott, 1983 [20]	0,14–0,5	Измерения трековыми детекторами
Toohy et al., 1984 [21] – отношение скоростей осаждения ^{218}Po и ^{214}Pb	0,4(0,4) 1	Измерения пропорциональным счетчиком
Rudnick et al., 1986 [22]	0,23 1,3	Без вентиляции С вентиляцией
Leonard, 1995 [23]	0,1–0,6	Экстраполяция результатов измерения в камере 0,28 м ³ на жилые помещения
McLaughlin et al., 1984 [5]	0,04	Измерения в небольшой радоновой камере с помощью поверхностно-барьерного детектора
Knutson et al., 1983 [24]	0,033–0,066	Численные расчеты
Brager et al., 1991 [25]	0,014–0,079	» »
Nazaroff et al., 1992 [26]	0,02–0,08	» »
Gadgil et al., 1992 [15]	0,02–0,04	» »
Vanmarcke et al., 1991 [27] – отношение скоростей осаждения ^{218}Po и ^{214}Pb	3	Вычислено теоретически
Schmid et al., 1999 [18] – отношение скоростей осаждения ^{218}Po и ^{214}Pb	0,02–0,10 (0,004–0,021) 4	Измерения в жилых домах, в различные сезоны года с использованием полупроводникового (Si) α -детектора

В 1998 г. в Германии были проведены измерения скорости осаждения в реальных жилых условиях в различные сезоны года [18]. Результаты этих измерений хорошо согласуются с численными расчетами, произведенными в работах [15, 24–26], и измерениями в радоновой камере [5], хотя они приблизительно на порядок ниже значений, полученных в работах [19–23].

К сожалению, измерения скорости осаждения в работе [18] проводили однократно в разных жилых домах, что не позволяет проследить временную динамику исследуемых величин и определить влияние на них метеорологических условий.

В табл. 1 также обращает на себя внимание различие скоростей осаждения для свободных ^{218}Po и ^{214}Pb , обнаруженное в работах [18, 27], хотя ранее они считались равными, что было экспериментально подтверждено в работе [21].

Таким образом, вопросы о влиянии метеорологических условий на величину скорости осаждения свободных ДПР радона на твердые поверхности, так же как и о соотношении скоростей осаждения свободных ^{218}Po и ^{214}Pb , все еще остаются нерешенными на сегодняшний день.

В настоящей работе были предприняты попытки решения этих вопросов в долгосрочном эксперименте.

Методика эксперимента

Для проведения эксперимента выбрано помещение, расположенное в одном из корпусов (BfS) (Федеральной службы по радиологической защите, Берлин, Германия) со следующими параметрами:

объем – 118 м³; суммарная площадь поверхностей – 162 м². Измерения проводили в период с марта по июль 2001 г.

Измерение скорости осаждения

Скорость осаждения на поверхность, в общем случае, определяется отношением потока радиоактивных аэрозольных частиц на эту поверхность к объемной активности этих частиц в воздухе помещения. В данной статье поток определяли по поверхностной активности осевших свободных ДПР радона. Пренебрегая вкладом в процессы осаждения свободного ^{214}Bi , скорость осаждения короткоживущих свободных ДПР радона (v^f) на поверхности рассчитывали по формулам [12]:

$$v_1^f = A_1 \frac{\lambda_1}{a_1^f} \text{ для } ^{218}\text{Po} (i = 1), \quad (1)$$

$$v_2^f = (A_4 - A_1) \frac{\lambda_2}{a_2^f} \text{ для } ^{214}\text{Po} (i = 2), \quad (2)$$

где v_i^f – скорость осаждения свободного i -го радионуклида, м/с; a_i^f – объемная активность (или концентрация активности) в воздухе свободного i -го радионуклида, Бк/м³; λ_i – постоянная распада, с⁻¹; A_i – поверхностная (осажденная) активность ^{218}Po ($i = 1$) и ^{214}Po ($i = 2$), Бк/м².

Поверхностную активность измеряли с помощью полупроводникового (Si) α -детектора, внедренного в поверхность стены так, чтобы чувствительная поверхность детектора находилась на

одном уровне с поверхностью стены. Такая установка обоснована тем, что геометрия измерения может влиять на скорость осаждения различных частиц. С той же целью детектор располагали более чем в 30 см от углов помещения. При помощи анализатора импульсов получали суммарное количество импульсов отдельно для ^{218}Po и ^{214}Pb с вычетом фоновых значений и затем рассчитывали поверхностную активность ($\text{Бк}/\text{м}^2$) по формуле

$$A_i = N_i / (t \varepsilon F), \quad (3)$$

где N_i – суммарное количество импульсов для i -го радионуклида; t – время измерения, с; $\varepsilon = 0,5$ – эффективность регистрации кремниевого α -детектора; $F = 4,5 \cdot 10^{-4} \text{ м}^2$ – площадь чувствительной поверхности детектора.

Объемную активность свободной фракции ДПР радона в воздухе помещения измеряли с использованием широко известного метода «wire screen method» и алгоритма Маркова [12].

Рассчитанные по формулам (1), (2) значения скорости осаждения представляют собой среднесуточные оценки.

Исследование влияния различных факторов

Нами было проведено исследование влияния различных факторов на скорость осаждения свободных ^{218}Po и ^{214}Pb на твердые поверхности (стены помещения). В качестве влияющих факторов выбраны: атмосферное давление; температура воздуха внутри и вне помещения; влажность воздуха, объемная активность радона внутри помещения; скорость теплообмена и воздухообмена в помещении; сезон года. Объемную активность радона, температуру, влажность внутри помещения и атмосферное давление непрерывно измеряли в течение всего эксперимента многофункциональным радиометром Alpha-GUARD. Полученные значения усредняли за сутки с целью проведения корреляционного анализа результатов.

Скорость воздухообмена (вентиляции) в экспериментальном помещении измеряли с помощью метода, основанного на однократном введении большой концентрации газа-трассера (CO_2 или SF_6) с последующим измерением уменьшения его концентрации во времени согласно экспоненциальной зависимости

$$N(t) = N_0 e^{-\tau t}, \quad (4)$$

где N_0 – начальная концентрация газа; τ – скорость воздухообмена помещения, ч^{-1} . Измерение концентрации газа проводили с помощью газоанализатора (Multi-gas monitor BRÜEL&KJAEER; Type 1302).

Результаты и их обсуждение

Результаты исследования показали, что диапазон изменения скорости осаждения одинаков для свободных ^{218}Po и ^{214}Pb и составляет 0,02–0,09 $\text{см}/\text{с}$, при этом среднее значение равно 0,05 $\text{см}/\text{с}$. Полученные для ^{218}Po значения хорошо согласуются с результатами исследований [5, 15, 18, 24–26].

Корреляционный анализ измеренных среднесуточных значений скорости осаждения и выбранных факторов выявил значимые зависимости скорости осаждения свободного ^{218}Po от влажности (коэффициент корреляции $K = -0,92$) и температуры ($K = -0,88$) воздуха внутри помещения. Значимые корреляции между среднесуточными значениями скорости осаждения свободного ^{214}Pb и метеорологическими параметрами не выявлены.

В табл. 2 представлены средние за месяц значения скорости осаждения свободных ^{218}Po и ^{214}Pb , температуры и влажности внутри помещения. Видно уменьшение скорости осаждения ^{218}Po с ростом температуры и влажности. Для ^{214}Pb четкой зависимости от температуры и влажности не видно, хотя средние за месяц значения изменяются до полутора раз. Таким образом, результаты показывают, что скорости осаждения свободных ^{218}Po и ^{214}Pb зависят от сезона года (или месяца) с характерными значениями температуры и влажности, однако эти зависимости не одинаковые.

Скорость осаждения свободных ДПР радона является важным параметром модели переноса продуктов распада радона в воздухе. В литературе представлены экспериментальные данные (см. табл. 1) о том, что скорость осаждения может быть различна для свободных ^{218}Po и ^{214}Pb , а отношение этих скоростей (v_1^f / v_2^f) может быть 3:1 [27] или 4:1 [18]. Неучет этого различия может существенно повлиять на результаты моделирования и привести, в итоге, к ложным выводам. В связи с выявленными в литературных данных противоречиями мы решили произвести анализ среднесуточных и средних за месяц значений отношения скоростей (v_1^f / v_2^f).

Таблица 2

Месяц	Влажность воздуха внутри помещения, г/кг	Температура воздуха внутри помещения, °С	Скорость осаждения, см/с		Отношение скоростей осаждения свободных ^{218}Po и ^{214}Pb
			^{218}Po	^{214}Pb	
Март	4,5	23	0,075	0,055	1,99
Апрель	7,0	24	0,062	0,052	1,21
Май	9,3	26	0,031	0,041	0,84
Июнь	9,2	27	0,035	0,043	0,99
Июль	10,7	28	0,039	0,070	0,64

Получено, что среднесуточные значения отношения (v_1^f / v_2^f) изменяются от 0,5 до 4 в течение всего периода эксперимента (март—июль). В табл. 2 представлены средние за месяц значения отношения (v_1^f / v_2^f), которые существенно изменяются для разных месяцев, хотя среднее за весь период эксперимента отношение скоростей равно ~ 1 , что хорошо согласуется с результатами работы [21]. Такое поведение величины (v_1^f / v_2^f) позволяет объяснить противоречивые литературные данные, более того, это отношение может быть меньше единицы в «теплый» сезон года.

Влияние теплообмена на величину скорости осаждения изучали при включенном и выключенном отоплении. Выявлено, что скорости осаждения свободных ^{218}Po и ^{214}Pb зависят от скорости теплообмена в помещении. Значимой зависимости скорости осаждения свободных ^{218}Po и ^{214}Pb от атмосферного давления и объемной активности радона в воздухе помещения не обнаружено.

Выводы

В результате проведенного эксперимента определено, что скорости осаждения свободных ^{218}Po и ^{214}Pb на твердые поверхности имеют одинаковый диапазон изменения от 0,02 до 0,09 см/с и в среднем равны 0,05 см/с. Среднее за длительный период (несколько месяцев) значение отношения этих скоростей v_1^f / v_2^f близко к единице, хотя среднесуточные значения могут изменяться до 8 раз в разные сезоны года. В средних за месяц значениях v_1^f / v_2^f наблюдается тенденция снижения с минимальными значениями в «теплый» период года. Выявлены значимые корреляции скорости осаждения свободного ^{218}Po от температуры, влажности воздуха внутри помещения и скорости теплообмена. Для ^{214}Pb зависимость от температуры и влажности проявляется слабее.

Полученные значения скорости осаждения могут быть использованы при моделировании процессов переноса ДПР радона внутри жилых помещений, а также при ретроспективных оценках доз от радона, полученных жильцами в прошлом.

1. *Porstendörfer J.* Physical parameters and dose factors of the radon and thoron decay products // *Radiat. Prot. Dosim.* 2001. V. 94. N 4. P. 365–373.
2. *Jacobi W.* Activity and potential α -energy of ^{222}Rn and ^{220}Rn daughters in different air atmospheres // *Health Phys.* 1972. V. 22. P. 441–450.
3. *Porstendörfer J.* Behavior of radon daughter products in indoor air // *Radiat. Prot. Dosim.* 1984. V. 7. N 1–4. P. 107–113.
4. *Porstendörfer J., Reineking A.* Indoor behavior and characteristics of radon progeny // *Radiat. Prot. Dosim.* 1992. V. 45. N 1–4. P. 303–311.
5. *McLaughlin J.P., O'Byrne F.D.* The role of daughter product plateau in passive radon detection // *Radiat. Prot. Dosim.* 1984. V. 7. N 1–4. P. 115–119.
6. *Hadler J.C., Paulo S.R.* Indoor radon daughter contamination monitoring: the absolute efficiency of CR-39

taking into account the plate-out effect and environmental conditions // *Radiat. Prot. Dosim.* 1994. V. 51. N 4. P. 283–296.

7. *Ilić R., Sutej T.* Radon monitoring devices based on etched track detectors // *Radon Measurements by Etched Track Detectors: Applications in Radiation Protection Earth Sciences, and the Environment.* Singapore: World Scientific, 1997. P. 103–128.
8. *Pressyanov D., Rusinov I., Simeonov G.* Radon progeny deposition in track-detection diffusion chambers // *Nucl. Instrum. and Meth. Phys. Res. A.* 1999. V. 435. P. 509–513.
9. *Lengar I., Skvarc J., Ilić R.* Deposition of radon decay products onto metals in contact // *Radiat. Meas.* 2001. V. 34. P. 577–580.
10. *Cauwels P., Poffijn A.* An improved model for the reconstruction of past radon exposure // *Health Phys.* 2000. V. 78. N 5. P. 528–532.
11. *Cauwels P., Poffijn A., Mondelaers W., Lahorte P., Masschaele B., Meesen G., Van Deynse A.* Theoretical study of the relation between radon and its long-lived progeny in a room // *Health Phys.* 2000. V. 79. N 4. P. 389–395.
12. *Schmidt V.* Untersuchungen zum Einfluss von Oberflächenablagerungen der kurzlebigen Zerfallsprodukte von ^{222}Rn auf die Messung und Beurteilung von Strahlungsschutzgrößen in Wohnräumen: Dissertation, TU Freiberg. 2000. (in German).
13. *Schmidt V.* Measurement of deposition velocities and particle concentration of unattached radon decay products near surfaces: Proc. // 5th Int. Conf. on High Levels of Natural Radiation and Radon Areas. Munich. Germany, 2000.
14. *Knutson E.O., Gogolak C.V., Scofield P., Klemic G.* Measurements of radon progeny activity on typical indoor surfaces // *Radiat. Prot. Dosim.* 1992. V. 45. N 4. P. 313–317.
15. *Gadgil A.J., Kong D., Nazaroff W.W.* Deposition of unattached radon progeny from enclosure flows // *Radiat. Prot. Dosim.* 1992. V. 45. N 1–4. P. 337–341.
16. *Holub R.F.* Turbulent plateau of radon daughters // *Radiat. Prot. Dosim.* 1984. V. 7. N 1–4. P. 155–158.
17. *Holub R.F., Raes F., Van Dingenen R., Vanmarcke H.* Deposition of aerosols and unattached radon daughters in different chambers: theory and experiment // *Radiat. Prot. Dosim.* 1988. V. 24. N 1–4. P. 217–220.
18. *Schmidt V., Hamel P.* Measurements of deposition velocity of radon decay products for examination of the correlation between air activity concentration of radon and the accumulated Po-210 surface activity: Proc. // *Radon in the Living Environ.* Athens. Greece. 1999. P. 1143–1150.
19. *Hengde W., Essling M.A., Toohey R.E., Rundo J.* Measurements of the deposition rates of radon daughters in indoor surfaces // *Annual Report ANL-82-65.* 1982.
20. *Scott A.G.* Radon daughter deposition velocities estimated from field measurements // *Health Phys.* 1983. V. 45. N 2. P. 481–485.
21. *Toohey R.E., Essling M.A., Rundo J., Hengde W.* Measurements of the deposition rate of radon daughter on indoor surfaces // *Radiat. Prot. Dosim.* 1984. V. 7. N 1–4. P. 143–146.
22. *Rudnick S.N., Maher E.F.* Surface deposition of ^{222}Rn decay products with and without enhanced air motion // *Health Phys.* 1986. V. 51. N 3. P. 283–293.
23. *Leonard B.E.* ^{222}Rn progeny surface deposition and resuspension-residential materials // *Health Phys.* 1995. V. 69. N 1. P. 75–92.

24. Knutson E.O., George A.C., Frey J.J., Koh B.R. Radon daughter plateout – II Prediction model // Health Phys. 1983. V. 45. N 2. P. 445–452.
25. Brager G.S., Nero A.V., Tien C.L. Transport and deposition of indoor radon decay products – I. Model development and Validation // Atmos. Environ. B. 1991. V. 25. N 3. P. 343–358.
26. Nazaroff W.W., Kong D., Gadgil A.J. Numerical investigations of the deposition of unattached ^{218}Po and ^{212}Pb from natural convection enclosure flow // J. Aerosol Sci. 1992. V. 23. N 4. P. 339–352.
27. Vanmarcke H., Landsheere C., Van Dingenen R., Poffijn A. Influence of turbulence on the deposition rate constant of the unattached radon decay products // Aerosol. Sci. and Technol. 1991. V. 14. P. 257–265.

V.S. Yakovleva, V. Schmidt, P. Hamel, H. Buchröder, M.A. Gyngazova. **Deposition of short-lived Rn-222 decay products on solid surfaces.**

The analysis of the data on the unattached radon decay products' deposition velocities presented in literature for the last two decades was made. The characteristic range of the surface (dwelling walls) deposition velocity of short-lived ^{222}Rn decay products was investigated for living conditions in Germany over a long term period. The influence of the different parameters (atmosphere pressure, indoor and outdoor air temperature, humidity, turbulence in the near-surface air, radon activity concentration, heating, ventilation regimes and season) on the deposition velocity was statistically analyzed. Mean values of the deposition velocity and the ranges were found to be $0,05 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ ($0.02\text{--}0.09 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$) for unattached ^{218}Po and for unattached ^{214}Pb . The significant correlations between the unattached ^{218}Po deposition velocity and indoor air temperature, humidity and season have been found.