

用甄别 α 粒子的方法测定氡和氡子体产物的放射性浓度

张纯祥 关祖杰

(物理学系)

氡(^{222}Rn)和氡(^{220}Rn)是天然放射性物质铀和钍衰变放出的放射性气体。凡是含有铀和钍的土壤、岩石和建筑材料,都会排放出氡气和氡气到周围的空气中去。氡衰变产生子体产物 RaA (^{218}Po)、 RaB (^{214}Pb)和 RaC (^{214}Bi);氡衰变产生子体产物 ThB (^{212}Pb)和 ThC (^{212}Bi)。这些子体产物很快便和空气中的微尘结合成放射性气溶胶,使空气受到放射性气溶胶的污染。准确而快速地测定空气中氡、氡子体的浓度,对工矿的安全防护和环境放射性调查都有重要意义。

Tsivoglou等人^[1]首先提出了测定单个氡子体浓度的方法,后来Thomas^[2]改进了这一方法,使测量 RaA 浓度的准确度有较大提高。其他作者也报导了类似的测定方法^[3,7]。但是当氡子体浓度接近甚至超过氡子体浓度时,由于氡子体衰变放出的 α 粒子对氡子体浓度测量的干扰,上述方法对氡子体浓度测量会产生很大的误差。

另一方面,有关测定氡子体,即 ThB 和 ThC 浓度,Duggan^[6]提出的方法,只能在氡子体浓度较高,而氡子体对测量的干扰可以忽略的情况下才能使用。

Harley和Pasternack^[6]曾将Thomas测定氡子体浓度的三段法推广到测定氡、氡混合子体的浓度测定。他们的方法所用的测量时间太长,难以用于环境监察。此外,它测定 ThC 浓度的准确度也不高。采用 α 能谱学的方法原则上可以较准确地测定氡、氡子体浓度,但是所需设备庞大,价格昂贵,不适用于安全防护工作。

本文提出用 α 粒子能量甄别方法测定氡、氡子体浓度,可以在氡子体浓度比氡子体浓度高近10倍的条件下,不受氡子体的干扰而较准确地测定 ThB 和 ThC 的浓度。同时,在氡子体浓度接近甚至高于氡子体浓度的情况下,在测定 ThB 和 ThC 浓度的同时仍能准确地测定 RaA 、 RaB 和 RaC 的浓度。此外,测量所需设备简单,便于携带,所需测量时间也比Harley所用的短。

一、原理和公式

众所周知, ^{220}Rn 是按图1所示的衰变链衰变。由于 ThA 半衰期很短,为0.158秒,

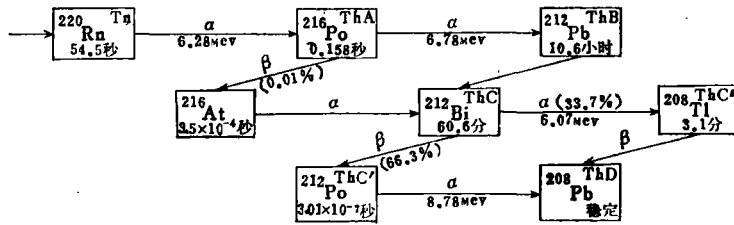


图1 ^{220}Rn 衰变图

实际上和 ^{220}Rn 总是处于放射平衡的。因此， ^{220}Rn 经由 ThA 衰变到 ThB 的衰变链，可认为是从 ^{220}Rn 直接衰变到 ThB ，并放出一个 α 粒子。同样， ThC' 半衰期仅为 3.04×10^{-7} 秒， ThC'' 为3.1分也远比它们的母体 ThC 的半衰期短。因此，从 ThC 到 ThD 的衰变链可认为是33.7%几率放出能量为6.07MeV的 α 粒子，而66.3%几率放出能量为8.78MeV的 α 粒子。因此，可得图2所示的简化氡衰变图。

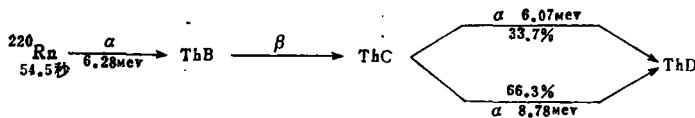


图2 ^{220}Rn 的简化衰变图

用一单道脉冲分析器，很容易将 ThC 衰变到 ThD 而放出的8.78MeV α 粒子和6.07MeV α 粒子区分开来，如果8.78MeV α 粒子由定标器1记录，那么氡子体放出的所有的 α 粒子同时为另一台定标器2所记录。假如还有氡子体，那么氡子体放出的所有 α 粒子也为定标器2所记录，因为在氡的短寿命子体中，只有 RaA 和 RaC 放出能量为6.00MeV和7.68MeV的 α 粒子。测量线路的方框图由图3给出。

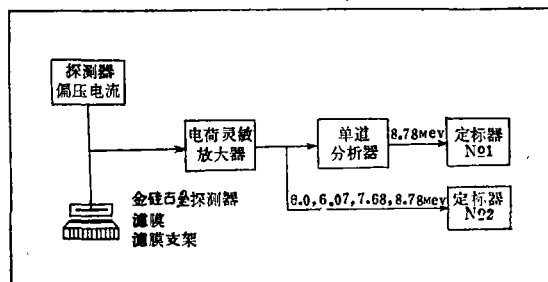


图3 用于滤膜样品分析 α 粒子甄别方框图

如果我们定义 R 为只有氡子体时，定标器1上的 α 计数率与定标器2上的 α 计数率之比值，并称为校正因子。由简化衰变图可知，在理想情况下， R 的最大值应为

0.663。但是，由于滤膜的自吸收等原因，使一些 α 粒子能量软化，因此，实验所用的 R 值一般都小于它的最大值。当 R 值为实验测定后，由定标器1记录的 α 计数被 R 除，便得到氡子体以 ThC 衰变到 ThD 总 α 计数。这样，采样结束后从 t_a 到 t_b 氡子体总 α 计数 $N(t_a, t_b)$ 应为：

$$N(t_a, t_b) = A(t_a, t_b) / R \quad (1)$$

式中， $A(t_a, t_b)$ 是定标器1从 t_a 到 t_b 时间内测得的 α 计数。如果我们在采样结束后选取二段时间 (t_1, t_2) 和 (t_3, t_4) 进行测量，由(1)式同样可得 $N(t_1, t_2)$ 和 $N(t_3, t_4)$ ，将 $N(t_1, t_2)$ 和 $N(t_3, t_4)$ 代入下列方程组，便可算出 ThB 和 ThC 的浓度。

$$\begin{aligned} C_{ThB} &= \frac{1}{VEF} [K_{11}N(t_1, t_2) + K_{12}N(t_3, t_4)] \\ C_{ThC} &= \frac{1}{VEF} [K_{21}N(t_1, t_2) + K_{22}N(t_3, t_4)] \end{aligned} \quad (2)$$

式中： C = 核素浓度(微微居里/升)；

E = 装置的 $4\pi\alpha$ 探测效率；

V = 采样流速(升/分)；

F = 包括滤膜自吸收的 α 过滤效率；

K_{ij} = 是一个系数，与采样时间 T 、选取的测量时间间隔 (t_1, t_2) 和 (t_3, t_4)

有关。表1列出几组采样时间和测量时间的 K_{ij} 值。

表1 选取不同时间 $C(T; t_1, t_2; t_3, t_4)$ 时的系数 K_{ij} 值

$C(T; t_1, t_2; t_3, t_4)$	K_{11}	K_{12}	K_{21}	K_{22}
$C(5; 6, 30; 31, 60)$	-0.01061	0.01201	0.00745	-0.00107
$C(5; 6, 30; 360, 390)$	-0.000089	0.004200	0.004753	-0.001078
$C(5; 6, 30; 360, 420)$	-0.000077	0.002127	0.004750	-0.000546
$C(60; 6, 30; 31, 60)$	-0.000910	0.001030	0.001140	-0.000691
$C(60; 6, 30; 360, 390)$	-0.0000076	0.0003604	0.0005345	-0.0002417
$C(60; 6, 30; 360, 420)$	-0.0000066	0.0001825	0.0005338	-0.0001224

在一级近似下，由计数统计性而产生的标准偏差 S_i (微微居里/升)由下式表示：

$$S_{ThB} = \frac{1}{VEF} \left[K_{11}^2 N(t_1, t_2) + K_{12}^2 N(t_3, t_4) \right]^{\frac{1}{2}}$$

$$S_{ThC} = \frac{1}{VEF} \left[K_{21}^2 N(t_1, t_2) + K_{22}^2 N(t_3, t_4) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (3)$$

由于采用的测量装置本底较低(约0.1计数/分),上述公式中没有考虑本底计数对测量的影响。如本底计数不可忽略时,上式中的 N 应采用 α 净计数。

图4、图5给出了不同采样时间和测量时间与 ThB 和 ThC 相对标准偏差的关系(计算所用参数如下:探测效率 $E=1.00$,过滤效率 $F=1.0$, $R=0.663$,采样流速 $V=1$ 升/分,采样时间 $T=60$ 分)。从图4、图5可以看出,选取采样时间60分,采样结束后6至30和360至420分测量, ThB 和 ThC 浓度的误差最小。

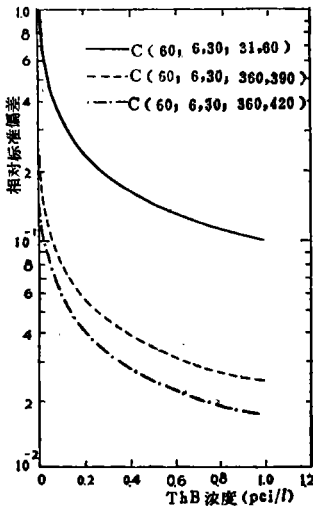


图4 不同测量时间 ThB 相对标准偏差与 ThB 浓度的关系

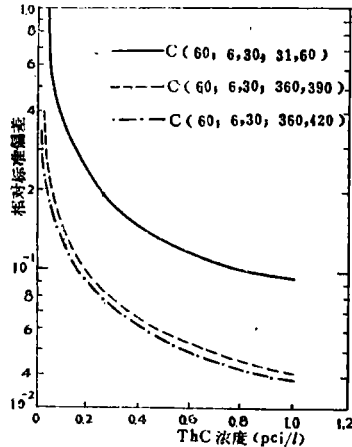


图5 不同测量时间 ThC 相对标准偏差与 ThC 浓度的关系

在氡、氡子体都存在的空气中,如果不考虑氡子体对氡子体的干扰,采用Thomas三段法计算 RaA 、 RaB 和 RaC 的浓度,所得氡子体浓度值必将高于空气中的实际浓度。从表2可以看出,氡子体浓度越高,氡子体浓度的计算值与实际值的偏离就愈大。

为了防止氡、氡子体在测量中相互干扰, α 粒子能量甄别方法采用两台定标器同时分别测定氡子体和氡、氡子体在 t_a 至 t_b 时间内的 α 计数。这样,氡子体在 t_a 至 t_b 时间内的 α 计数可由下式求出:

$$N_{Rn}(t_a, t_b) = N_{total}(t_a, t_b) - N(t_a, t_b) \quad (4)$$

式中, $N_{total}(t_a, t_b)$ 是定标器2在 t_a 至 t_b 时间内的氡、氡子体总 α 计数;

$N(t_a, t_b)$ 是由(1)式求得的 t_a 至 t_b 时间内的氡子体 α 计数。

表2 不考虑氡子体的影响时, RaA、RaB和RaC浓度的计算值偏高的情况

氡子体浓度 (pci/l) $C_{RaA} = C_{RaB} = C_{RaC}$	氡子体浓度 (pci/l) $C_{ThB} = C_{ThC}$	氡子体浓度的计算值 * (pci/l)		
		C_{RaA}	C_{RaB}	C_{RaC}
1.00	0.00	1.00	1.00	1.00
1.00	0.10	1.06	1.17	1.06
1.00	0.20	1.13	1.35	1.13
1.00	0.40	1.24	1.69	1.26
1.00	0.80	1.49	2.38	1.52
1.00	1.00	1.60	2.73	1.65
1.00	10.00	7.10	18.31	7.48

• 计算所用参数: $E=1, V=1$ 升/分; $C_{RaA} : C_{RaB} :$
 $C_{RaC} = 1 : 1 : 1 ; ThB : ThC = 1 : 1$

(4)式表示, 氡子体的 α 计数 $N(t_a, t_b)$ 是作为本底从总 α 计数中被减掉, 从而得到氡子体净计数 $N_{Rn}(t_a, t_b)$ 。这样, 我们就可以将 $N_{Rn}(t_a, t_b)$ 代入Thomas三段法公式中直接计算出RaA、RaB和RaC的浓度。采样5分钟的Thomas氡子体计算公式如下:

$$\begin{aligned}
 C_{RaA} &= \frac{1}{VEF} \left[0.16894N_{Rn}(2,5) - 0.082N_{Rn}(6,20) \right. \\
 &\quad \left. + 0.07753N_{Rn}(21,30) \right] \\
 C_{RaB} &= \frac{1}{VEF} \left[0.00122N_{Rn}(2,5) - 0.02057N_{Rn}(6,20) \right. \\
 &\quad \left. + 0.04909N_{Rn}(21,30) \right] \quad (5) \\
 C_{RaC} &= \frac{1}{VEF} \left[-0.02252N_{Rn}(2,5) + 0.03318N_{Rn}(6,20) \right. \\
 &\quad \left. - 0.03771N_{Rn}(21,30) \right]
 \end{aligned}$$

这里 C_{RaA} 、 C_{RaB} 和 C_{RaC} 是RaA、RaB、RaC的浓度(微微居里/升)。

假定氡子体 RaA RaB 和RaC处于放射平衡, 浓度为1 微微居里/升, 如果待测空气中有氡子体存在, 由于计数的统计涨落的影响, 氡子体的相对标准偏差与所测定空气中氡子体浓度有关, 并随氡子体浓度增加而增加。表3给出在不同氡子体浓度下的氡子体浓度相对标准偏差的计算值。

表3 平衡时氡子体浓度(1pci/l)的相对标准偏差与氡子体浓度的关系

氡子体浓度(pci/l) $C_{ThD} = C_{ThC}$	氡子体浓度的相对标准, 偏差* (%)		
	S_{RaA}/C_{RaA}	S_{RaB}/C_{RaB}	S_{RaC}/C_{RaC}
0.00	52.4	16.3	17.6
0.10	58.3	18.5	19.8
0.20	63.6	20.5	21.8
0.40	73.1	23.9	25.3
0.80	89.1	29.6	31.1
1.00	96.1	32.1	33.6
10.00	261.2	90.0	93.2

* 用时间间隔2至5, 6至20, 21至30分的Thomas方法进行计算。

二、实验

用带有转子流量计的蓄电池供电的粉尘采样机进行空气采样, 一个 ϕ 30毫米测尘滤膜用于收集待测空气中的氡子体。采样结束后, 测尘滤膜放在 ϕ 30毫米的金硅面垒探测器的测量装置中测量 α 计数。装置所用 R 值为0.35。表4列出在采样时间60分钟时, 测量得一般砖瓦结构的建筑物中的氡子体浓度。表5给出了在实验室和稀土冶炼厂测得的 RaA 、 RaB 、 RaC 、 ThB 和 ThC 的浓度。

表4 在住房中 ThB 和 ThC 浓度的测量值和标准偏差

测量地点	测量时候间隔	ThB 浓度 C_{ThB} (pci/l)	ThC 浓度 C_{ThC} (pci/l)	$C_{TB}:C_{ThC}$
楼下通风不好 房间	6,30; 31,60;	0.039 ± 0.007	0.023 ± 0.007	1:0.59
	6,30; 360,390;	0.0451 ± 0.0021	0.0185 ± 0.0030	1:0.41
	6,30; 360,420;	0.0437 ± 0.0015	0.0194 ± 0.0029	1:0.44
楼下不通风 房间	6,30; 31,60;	0.093 ± 0.012	0.048 ± 0.011	1:0.52
	6,30; 360,290;	0.0971 ± 0.0033	0.0453 ± 0.0048	1:0.46
	6,30; 360,420;	0.0927 ± 0.0023	0.0482 ± 0.0046	1:0.52
楼下不通风 房间	6,30; 31,60;	0.137 ± 0.016	0.108 ± 0.015	1:0.79
	6,30; 360,390;	0.1492 ± 0.0040	0.0996 ± 0.0063	1:0.68
	6,30; 360,420;	0.1498 ± 0.0029	0.0992 ± 0.0060	1:0.66
楼下不通风 房间	6,30; 31,60;	0.1980 ± 0.022	0.173 ± 0.021	1:0.87
	6,30; 630,390;	0.2009 ± 0.0054	0.1706 ± 0.0090	1:0.85
	6,30; 360,420;	0.2034 ± 0.0039	0.1689 ± 0.0085	1:0.83

表5 实验室和稀土工厂氡、氡子体浓度的测量值

测量地点	采样时间	浓度 (pci/l)				
		RaA	RaB	RaC	ThB	ThC
不通风实验室	5	1.49±0.65	1.16±0.21	0.70±0.21	0.141±0.01	0.087±0.014
不通风钍仓库	5	56.01±17.48	34.31±6.33	21.93±6.41	525.53±0.62	209.52±0.76
不通风实验室	60	0.82±1.79	1.88±0.12	1.58±0.27	0.263±0.004	0.214±0.008

由于RaA、RaB、RaC、ThB和ThC衰变半衰期均不相同，所以采样时间长短对测量单个子体浓度的准确度有很大的影响。对RaA来说，采样5至10分钟，测量误差最少；对RaB来说，测量误差随采样时间增加而减少，直至采样30分钟；对ThB和ThC来说，采样时间为60分钟时，测量误差最小。所以对于氡、氡混合子体的测量，为了提高测量RaA的测量准确度，选取采样时间为5至10分钟较为恰当，这点从表5所列数据亦可看出。此外，从表5还可看出，当钍子体浓度比氡子体浓度高10倍时，采用 α 能量甄别方法，仍能较准确地测定氡子体的浓度。ThB和ThC浓度测量的准确度还与下列因素有关：校正因子R的选取和E、V、F参数的选取。而氡子体浓度测量的准确度还与空气中氡子体浓度有关。从表5还可以看出， α 粒子能量甄别方法对ThB和ThC测量的灵敏度较高，可在环境调查中使用。

为了验证 α 粒子能量甄别方法，我们测量了二组采样后滤膜上的 α 放射性的衰变曲线，如图6和图7所示。测量时间从采样结束至9小时，二组曲线分别在不同地

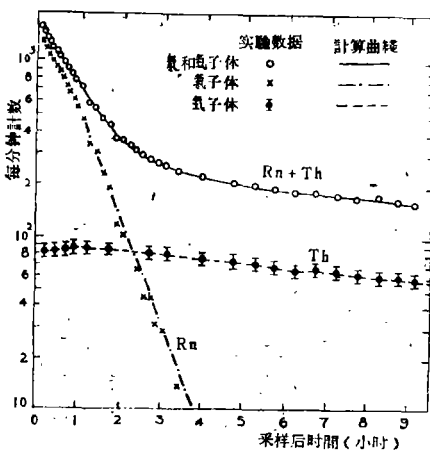


图6 实验数据与计算衰变曲线的比较。
实验采样地点：不通风的实验室；
采样时间：60分钟

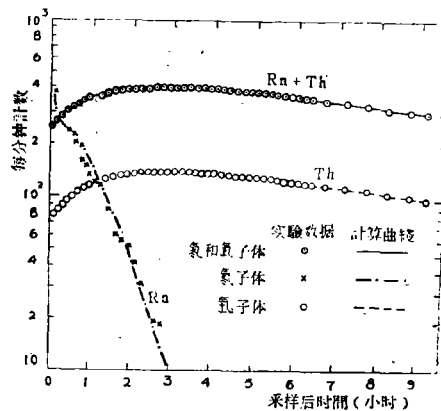


图7 实验数据与计算衰变曲线的比较。
实验采样地点：不通风的钍仓库；
采样时间：5分钟

点采样和不同采样时间测得的,由于采用图3的实验装置,所以可以在同一个图上划出氡子体、氡子体和氡、氡混合子体的衰变曲线。理论上,根据放射性连续衰变的规律,由五个方程式亦可以计算出采样后任一时刻滤膜上的 α 放射性。如果能量甄别方法能将氡、氡子体放出的 α 粒子正确地区分开来,而且所选取的测量时间间隔如果合适,那么计算出来的氡子体、氡子体和氡、氡混合子体的 α 衰变曲线应和实验测出的曲线相符合。由图6和图7可以看出,它们之间符合得很好,这说明能量甄别方法是能用于氡、氡子体浓度的分别测量的。

三、讨论和结论

本文讨论了测量ThB、ThC、RaA、RaB和RaC浓度的一种较为准确和简便的方法,这种方法在氡、氡子体的混合空气中,当氡和氡子体的浓度在测量中均不能被忽略时也能应用。如果测量中仅希望得较准确的ThB和ThC浓度,那么建议采用采样60分钟,采样结束后用图3的测量装置在6至30和360至420分钟测量两段时间在二台定标器上的 α 计数,然后根据(1)式和(2)式可求得ThB和ThC的浓度。而在氡子体浓度较高的情况下,测氡、氡子体的浓度时,建议采用采样时间为5分钟,采样结束后用图3所示的测量装置在2至5、6至20、21至30(6至30)、360至420这几段时间内测定滤膜在二台定标器上的 α 计数,代入上面有关公式(1)、(2)、(5)等,便可计算出RaA、RaB、RaC、ThB、ThC的浓度。

由于本方法所需设备简单,测量时间间隔较短,并在各种情况下,不受氡、氡子体相互干扰的影响,可用于环境监察或稀土工厂安全防护测量。

参 考 文 献

- [1] E. C. Tsivoglou, H. E. Ayer and D. A. Holaday, *Nucleonics*, 11(1953), 40.
- [2] J. W. Thomas, *Health Phys.*, 23(1973), 783.
- [3] K. D. Cliff, *Phys. Med. Biol.*, 23(1978), 55.
- [4] *Manual on Radiological Safety in Uranium and Thorium Mines and Mills Safety Series No. 43, IAEA, 1974.*
- [5] M. J. Duggan, *Health Phys.*, 24(1973), 301.
- [6] N. H. Hariey and B. S. Pasternack, *Health Phys.*, 24(1973), 379.
- [7] Y. Kurokawa, K. Nakashina, Y. Kitahara and R. Kurosanh, *Area Monitoring in the NINGYO-TOGE Mine, Proceeding of the Specialist Meeting on Personal Dosimetry and Area Monitoring Suitable for Radon and Daughter Products, Canada, 1976.*

Measurement of Radon and Thoron Daughters Concentration by Alpha Particle Discrimination.

Zhang Chunxiang Guan Zujie

Abstract

A monitoring method is discussed that has been used to measure concentration of short-lived daughters of ^{222}Rn and ^{220}Rn in air of residential buildings and rare earths mills. The method used consists of sampling thoron and radon daughters on a filter paper, the alpha activities of which are measured with a semiconductor detector and a device of alpha particle discrimination. Therefore the concentrations of ThB and ThC are calculated from discriminated alpha counts at two different time intervals. The concentrations of RaA, RaB and RaC can be calculated from alpha counts of radon daughters at three different time intervals.

The advantages of the method are: 1) for atmospheres in which the radon concentration is dominant over thoron by several factors. The concentration of ThB and ThC can be determined with relatively higher sensitivity; 2) for atmospheres in which radon daughter concentration does not exceed the thoron daughter concentration, the concentration of RaA, RaB, RaC, ThB and ThC can also be measured with reasonable accuracy; 3) the equipment used is not complicated, and the method is suitable for environmental monitoring.