

用Ge(Li)γ谱仪测定建筑材料中天然放射性

江俭玲 赵淑权 陈正国 何志浩

(上海市工业卫生研究所)

关键词: 天然放射性 建筑材料 Ge(Li)γ谱仪

人群受到的天然辐射来自宇宙射线、地球辐射、膳食和建筑材料中天然放射性核素的辐射。建筑物对人群的照射水平取决于建材中放射性核素的含量。近年来,随着住宅建设的发展,建筑材料的需求量日益增长,建筑业广泛采用粉煤灰、磷石膏等工业废渣和副产品作为建筑材料。这些材料与传统材料相比,天然放射性核素的含量明显高,人群受照剂量升高。为了保护居民的健康,防止过量照射,有必要测定和控制建材中天然放射性。最近,我们为上海水泥厂等单位提供的建材样品作了放射性核素比活度测定,并计算了它们的当量镭比活度,为建材的使用和卫生学评价提供了科学依据。

一、测定方法

U、Th 系和⁴⁰K 是建材中主要天然放射性核素,它们都辐射 γ 射线。测量时我们使用美国 7229-7500 型 100cm³ 的 Ge(Li)探测器(相对效率为20%,分辨率2.0keV),S-80 系4096 道分析器和 5cm 厚、内腔为 35cm×35cm×40cm 的铅室,内衬4mm铜板。整个测量装置见图 1 所示。

装置的灵敏度 A 和探测限 L_D 按下式 $A=$

$$\frac{3}{\eta} \sqrt{\frac{2n_b}{T}} \text{ 和 } L_D = 4.4 N_b^{1/2} \text{ 计算。其中 } \eta \text{ 为核素}$$

的探测效率(%), N_b 和 n_b 分别为本底计数和本底计数率, T 为样品测量时间。当样品量为 500g、测量容器体积为460ml、测量时间为10⁴秒、置信度为95%时,本装置灵敏度和探测限列于表 1。

样品粉碎成 100 目,烘干、称重、倒入环形塑料杯(北京工卫所提供),用石蜡密封,样品量 500 克,样品容积 460 毫升,环形杯直接放于探测器周围,在最佳条件下测量。

刻度源是以 Al₂O₃ 和 SiO₂ 为介质,分别掺入一定量的铀-镭平衡钍矿粉(北京工卫所提供)、KCl 标准试剂,混匀配置而成。它的形状、重量与样品完全一样,在相同的测量条件下测量,获得 ²²⁶Ra、²³²Th、⁴⁰K 的刻度系数。

假定 ²²⁶Ra、²³²Th 分别与其子体放射平衡,我们选用 ²¹⁴Pb 的352keV γ 射线、²⁰⁸Tl 的 583keV γ 射线来确定 ²²⁶Ra、²³²Th 的含量,选用 ⁴⁰K 的1460keV γ 射线确定 ⁴⁰K 含量。采用总峰面积法^[2]定量。

根据 $X = Q / (2.8 \times 10^{-6} \times A \times T_{1/2})$ ^[3] 算出核素的放射性。

式中, X 为核素原子量; Q 为核素含量(g); $T_{1/2}$ 为核素半衰期(y); A 为核素放射性(Ci), $1g^{232}Th = 1.10 \times 10^{-7}Ci$, $1g^{226}Ra = 0.986Ci$, $1g^{40}K = 6.29 \times 10^{-6}Ci$ 。

在样品制备过程中,有一部分氡射气从样品中泄漏出去,刚制成的样品中氡与 ²²⁶Ra 达不到放射平衡,因

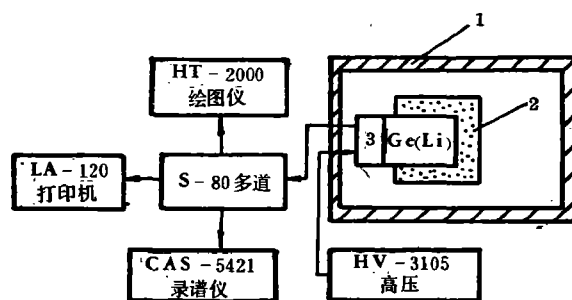


图 1 γ 谱仪示意图

1. 铅室 2. 环形样品杯 3. 前置放大器

表 1 测量装置性能

核素	测量时间(s)	γ 能量(keV)	本底计数	灵敏度(Bq)	探测限
²²⁶ Ra	10 ⁴	352	37	0.13	26
²³² Th	10 ⁴	583	47	0.25	30
⁴⁰ K	10 ⁴	1460	467	1.6	95

注: 本底计数和探测限指10⁴秒时间内的计数

此确定 ^{226}Ra 含量的测量应该在样品密封38天后进行, 这样, 样品的分析周期很长, 为了缩短测量周期, 我们采用二次测量法来确定 ^{226}Ra 的含量。依据放射系原子核递次衰变规律^[4], 氡与其母体 ^{226}Ra 的放射性满足方程(1):

$$A_{\text{Rn}} = A_{\text{Ra}}(1 - e^{-\lambda_{\text{Rn}}t}) + A_{\text{Rn}}'e^{-\lambda_{\text{Rn}}t} \quad (1)$$

式中, A_{Rn} 为样品密封后 t 时刻氡的放射性; A_{Rn}' 为密封时刻样品中残留氡的放射性; A_{Ra} 为平衡时样品中 ^{226}Ra 的放射性; λ_{Rn} 为氡的衰变常数。

将方程(1)积分即可使 A_{Ra} 与 γ 谱测量中的 γ 射线峰面积联系起来, 可得方程(2)

$$\frac{S_{352}}{\gamma_{352}\eta_{352}} = \int_0^{\Delta t} A_{\text{Rn}} dt = A_{\text{Ra}} \left(\Delta t + \frac{e^{-\lambda_{\text{Rn}}\Delta t} - 1}{\lambda_{\text{Rn}}} \right) + A_{\text{Rn}}' \left(\frac{1 - e^{-\lambda_{\text{Rn}}\Delta t}}{\lambda_{\text{Rn}}} \right) \quad (2)$$

式中, S_{352} 、 γ_{352} 、 η_{352} 分别是352keV γ 射线的峰净面积、分支比和探测效率; Δt 是测量时间。

从样品密封后的前后二个不同时刻的二次测量, 可获得一个联立方程(3):

$$\begin{cases} \frac{S_{352}^1}{\gamma_{352}\eta_{352}} = A_{\text{Ra}} \left(\Delta t_1 + \frac{e^{-\lambda_{\text{Rn}}\Delta t_1} - 1}{\lambda_{\text{Rn}}} \right) + A_{\text{Rn}}' \left(\frac{1 - e^{-\lambda_{\text{Rn}}\Delta t_1}}{\lambda_{\text{Rn}}} \right) \\ \frac{S_{352}^2}{\gamma_{352}\eta_{352}} = A_{\text{Ra}} \left[\Delta t_2 + \frac{e^{-\lambda_{\text{Rn}}\Delta t_2} (e^{-\lambda_{\text{Rn}}\Delta t_1} - 1)}{\lambda_{\text{Rn}}} \right] + A_{\text{Rn}}' \left[\frac{e^{-\lambda_{\text{Rn}}\Delta t_1} (1 - e^{-\lambda_{\text{Rn}}\Delta t_2})}{\lambda_{\text{Rn}}} \right] \end{cases} \quad (3)$$

式中, S_{352}^1 、 S_{352}^2 为二次测量352keV 的 γ 射线峰净面积, t 为二次测量间隔时间, Δt_1 、 Δt_2 分别为第1次和第2次测量时间, 解方程(3)即得 ^{226}Ra 的放射性 A_{Ra} 。

此外, 参照文献[7]的公式: $EC_{\text{Ra}} = C_{\text{Ra}} + 1.26C_{\text{Th}} + 0.086C_{\text{K}}$ 计算当量镭比活度 EC_{Ra} , C_{Ra} 、 C_{Th} 、 C_{K} 分别为 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 的比活度。

二、测量结果

各种建材中放射性核素的比活度测定结果列于表2。表3列出了某些国家建材中放射性, 以供比较。

从表2可见: 钢渣(35)、(31)、(14)中 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 的比活度特别低, 均低于30Bq/kg, 样品中测不到 ^{40}K , 它们的当量镭比活度在40Bq/kg 以下, 是常用建材石灰砂浆的1/6~3/8; 各种磷石膏中的 ^{226}Ra 比活度都很高, 在260~730Bq/kg 之间, ^{232}Th 比活度均低于37Bq/kg, 多数样品测不到 ^{40}K , 它们的当量镭比活度是常用建材石灰砂浆的3至7倍; 粉煤灰砂浆的 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 的比活度比常用建材石灰砂浆高得多, 而 ^{40}K 比活度, 前者比后者低得多, 当量镭比活度前者是后者的2.5倍; 425矿水泥(Ⅰ)中的 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 的比活度略高于425矿水泥(Ⅱ), 当量镭比活度约增加1/3。

表2 各类建材中的放射性(Bq/kg)

材	料	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	EC_{Ra}
常用建材	石灰砂浆	15±1	19±2	676±20	96
	425矿水泥Ⅰ	57±2	49±2	152±9	118
	南通围填土	43±3	58±2	641±12	170
新型建材	粉煤灰砂浆	133±3	71±4	148±16	237
	425矿水泥Ⅱ	80±1	60±1	165±9	171
	钢渣(31)	27±0.1	6±0.5	—	36
	钢渣(35)	10±0.3	3±0.3	—	14
	钢渣(14)	9±0.6	4±0.6	—	14
原料	二水磷石膏	481±6	—	—	481
	半水磷石膏	531±5	4±3	—	537
	磷石膏(永)	722±2	10±2	—	733
	磷石膏(化)	268±1	6±1	—	274
	改性磷石膏	376±4	18±4	195±18	415
	纯粉煤灰(公)	131±5	132±3	235±17	318
	纯粉煤灰(所)	150±3	128±2	334±10	340
	窑灰	37±2	24±3	463±19	107

注: (1)改性磷石膏是两份磷石膏(永)加一份窑灰。(2)425 矿水泥(Ⅰ)(Ⅱ)各为425 矿水泥加天然石膏和改性磷石膏。(3)空白行表示该核素放射性测不到, “—”行表示该核素放射性低于探测限。

测量结果与几个国家报导的建材中放射性相比, 纯粉煤灰的 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 比活度与西德的飞灰、英国的飞灰(2)相近, 425矿水泥(1)的 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 的比活度接近瑞典水泥, 而425矿水泥(2)的 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 比活度接近马来西亚、罗马尼亚的水泥。磷石膏的 ^{226}Ra 比活度与英国、西德的磷石膏很接近, 是美国磷石膏的1/2。

表3 某些国家建材中放射性 (Bq/kg)

建材	国家	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	参考文献
水泥	瑞典	55	47	240	8
	英国	22	18	160	8
	马来西亚	81	59	200	8
	罗马尼亚	106	45	320	6
飞灰	西德	210	130	700	5
	英国(1)	7	40	550	5
	英国(2)	140	30	550	5
	英国(3)	50	44	220	5
磷石膏	英国	800	20	70	5
	西德	600	<5	110	5
	美国	1500	7		5

表4 ^{226}Ra 比活度的两种方法测定值(Bq/kg)

材料	磷石膏(化)	425矿水泥 I	425矿水泥 II	磷石膏	改性磷石膏
推算值	272	59	78	717	384
平衡值	268	57	80	722	276
相对误差(%)	1.5	3.5	2.5	0.7	2.1

该对测量值作平衡校正。当我们测量磷石膏(永) γ 谱时, 发现由 ^{214}Bi 的911keV γ 射线和 ^{208}Tl 的583keV γ 射线确定的 ^{232}Th 的放射性有差异, 结果为: 由583keV确定 ^{232}Th 比活性为 $4 \pm 3 \text{ Bq/kg}$, 由911keV确定 ^{232}Th 比活性为 $10 \pm 2 \text{ Bq/kg}$, 充分说明磷石膏(永)中 ^{232}Th 与其子体没有达到放射平衡。应该对测量结果作修正。由于不了解磷石膏(永)生产过程, 很难确定 ^{232}Th 与其子体不平衡程度, 因而无法进行修正。

参 考 文 献

- [1] 复旦大学等, 原子核物理实验方法(下册), 原子能出版社, 1982年。
- [2] 潘京金等, 土壤中放射性核素的 γ 能谱学测量(会议资料), 1982年。
- [3] 编写组, 环境放射性监测方法, 原子能出版社, 1977年。
- [4] 卢希庭, 原子核物理, 原子能出版社, 1981年。
- [5] UNSCEAR, Ionizing radiation sources and biological effects, 1982.
- [6] I. Mocsy et al., Radiat. Prot. Dos. 1—4, 277 (1984).
- [7] E. M. Krisiuk et al., Heal. Phys., 39, 573 (1980).
- [8] 高益群, 湖南建材, 2, 42(1984).
- [9] R. Collé et al., Radon transport through and exhalation from building materials, NBS, 9, 1981.

(上接第10页)

参 考 文 献

- [1] A. James et al., Physics in nucleas medicine, 1st ed., New York, 1980.
- [2] F. E. Grubbs, Ann. Math. Statistics, 21, 27 (1950).
- [3] 杜毅仁等, MIC-80 微型计算机(上海交通大学科技交流室资料), 1983年。
- [4] U. Pietilä et al., Design principles for automatic RIA gamma counter, Proceedings of conference for "Radiochemical Techniques in Clinical Biochemistry", Univ. of Sussex, 21st-23rd Sept. 1976.
- [5] T. G. R. Rawlins et al., Calculation of RIA results using the spline function, Reprinted from International Laboratory, Nov./Dec, 1978.

(1983年12月27日收到)

Adsorbing uranium characteristics of P_4 -fibre adsorbent

Wu Ling Su Huijuan Chen Qingze Chen Banglin
(East China Normal University)

The P_4 -fibre adsorbent exhibits high adsorption capacity and high adsorption rate for U. The uranium adsorbed can be readily desorbed by a mixture solution of Na_2CO_3 and NaCl. The influence of the common ions on the ability of P_4 -fibre to adsorbing U is not critical except Fe^{3+} , Al^{3+} , and CO_3^{2-} . It is suitable to use P_4 -fibre as an excellent adsorbent to recovery uranium from waste water in industry and mining.

Keywords: uranium adsorbent fibre waster treatment

Measurements of natural radioactivity in building materials with a Ge(Li) spectrometer

Jiang Jianling Zhao Shuquan Chen Zhengguo He Zhihao
(Shanghai Institute of Industrial Hygiene)

The paper describes the radioactivity measurements of natural radionuclides ^{232}Th , ^{226}Ra and ^{40}K in some building materials used in Shanghai district with a Ge(Li) spectrometer. A discussion is also made on the methods of measuring the radioactivity of ^{226}Ra in both equilibrium and disequilibrium states.

Keywords: natural radioactivity building materials Ge(Li) γ -ray spectrometer

The application of the ZSS single card computer in ^{14}C dating

Tiao Wenqiang Wang Chongyan
(Geological Institute, National Earthquake Bureau) (Shanghai Jingan area electronic society)

Utilizing the ZSS single card computer with a liquid scintillation counter the ^{14}C dating can be controlled successfully in an automatic way. Its function includes the record of the counts, check of the errors, changing sample in a pre-set time, calculation of the ^{14}C ages and printing out the dates. Because it has an effective function as well as a small volume and good economy it is suitable to set up in a general ^{14}C laboratory to improve the operation condition. These advantages bear realistic significance for the automation of ^{14}C measurement.

Keywords: single card computer ^{14}C measurement
collecting and processing of dates calculation of ^{14}C age
automatic change of samples