

空气中 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体水平 α 能谱 测量方法的优化

康 玺¹ 肖德涛² 李君利¹

1(清华大学工程物理系 北京 100084)

2(南华大学核科学与技术学院 衡阳 421001)

摘要 通过 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体 α 能谱测量程序对 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体测量不确定度的分析, 获得了有关采样时间、测量时间段、总测量时间与 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体测量不确定度的较清晰的关系。在此基础上, 按照快速准确测量 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体的原则, 优化了一种 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体 α 能谱测量程序, 并通过和多种早先提出的 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体测量程序的实验对比, 验证了该测量程序的合理性。

关键词 ^{222}Rn 子体, ^{220}Rn 子体, α 能谱

中图分类号 O613.16, TL817.2

环境中 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 及其子体对人体的辐照剂量约占天然辐射的一半以上, $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 及其子体又是导致肺癌的第二大因素^[1]。因此, $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 及其子体测量技术的研究得到重视。

目前 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 测量方法有多种, 但 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体测量方法相对较少。根据能否分辨 α 粒子能量, $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体的测量法可分为总 α 法和 α 能谱法^[2]。总 α 法(如 Thomas 三段法)适用于现场测量, 但其测量不确定度较大, 对须区分 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体的应用, 需较长的测量时间(如五段法需 10 h 左右)。 α 能谱法测量不确定度较小, 能快速区分 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体, 越来越受到重视。

关于总 α 测量法的优化, 已有较多研究^[3-7], 但 α 能谱测量法的优化探讨, 则相对较少。南华大学建立了体积为 2.7m^3 ^{222}Rn 室, 为满足其 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体准确快速测量的需要, 本文对 α 能谱测量法进行了优化, 并将优化方法与一些常用的总 α 法进行了对比测量验证。

1 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体 α 能谱测量方法的优化

1.1 α 能谱法测量 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体水平的基本原理

实际测量的 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体, 是五种短寿命核素: $\text{RaA} (^{218}\text{Po})$ 、 $\text{RaB} (^{214}\text{Pb})$ 、 $\text{RaC} (^{214}\text{Bi})$ 、 $\text{ThB} (^{212}\text{Pb})$

和 $\text{ThC} (^{212}\text{Bi})$, 后者包括 $\text{ThC}' (^{212}\text{Po})$ 。

图 1 为 RaA 、 $\text{RaC}' (^{214}\text{Po})$ 和 ThC 衰变时释放 α 粒子的 α 能谱图, α 能谱法测量 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体释放的不同能量的 α 粒子, 可实现 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体核素鉴别和水平测量, 当然还需解决 α 能谱的峰重叠问题和 $\text{ThC} 6.05\text{ MeV}$ 和 6.09 MeV α 粒子对 RaA 测量的影响问题。

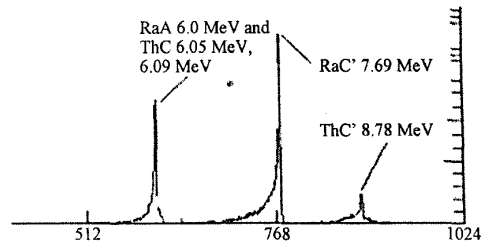


图 1 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体 α 能谱
Fig.1 Alpha spectra of $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ daughters
能谱仪 α spectrometer, ORTEC;

探头 Detector, 900 mm^2 PIPS; 真空度 Vacuum, $<133\text{ Pa}$

$^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体 α 能谱测量的过程如下: 用滤膜采样装置过滤待测空气将 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体收集在采样滤膜上, 用 α 能谱仪测量滤膜(如 Jonassen 测量程序^[8-9]), 分时间段统计 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 各子体对应的 α 能峰计数, 用 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体的 Bateman 衰变特征方程组求得 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体水平。

国家自然科学基金项目 (10575049) 和湖南省科技计划重点项目 (04FJ4046) 资助

第一作者: 康 玺, 男, 1979 年出生, 2005 年于南华大学核技术及应用专业获硕士学位, 现为清华大学工程物理系博士研究生

通讯作者: 肖德涛

收稿日期: 2007-11-20, 修回日期: 2008-05-23

1.2 α能谱法测量 ²²²Rn/²²⁰Rn 的基本公式

在不考虑 RaA、RaC、ThC 的 α探测效率和滤膜的自吸收差别时,根据 Bateman 衰变特征方程组,可得出采样后滤膜上任意时间段内三个 α能谱峰区内 α粒子计数:

$$N_{11}(t_0, T_1 \rightarrow T_2) = 2.22\nu\epsilon\eta K_\alpha C_2 (19.3620g_2\phi_2) \quad (1)$$

$$N_{12}(t_0, T_1 \rightarrow T_2) = 2.22\nu\epsilon\eta K_\alpha [C_2 (0.4546g_2\phi_2 + 724.659g_3\phi_3 - 410.585g_4\phi_4) + C_3 (564.92g_3\phi_3 - 3049.92g_4\phi_4) - C_4 (807.765g_4\phi_4)] \quad (2)$$

$$N_{13}(t_0, T_1 \rightarrow T_2) = 2.22\nu\epsilon\eta K_\alpha [C_5 (937418g_5\phi_5 - 8430.14g_6\phi_6) + 7627.62C_6g_6\phi_6] \quad (3)$$

式(1)~(3)中, $N_{11}(t_0, T_1 \rightarrow T_2)$ 、 $N_{12}(t_0, T_1 \rightarrow T_2)$ 和 $N_{13}(t_0, T_1 \rightarrow T_2)$ 分别表示 RaA、RaC 和 ThC 在 t_0 取样时间结束后的 $T_1 \rightarrow T_2$ 时间段内衰变释放的 α粒子计数; ϵ 为探测器对 α粒子的探测效率(%); η 为滤膜的过滤效率; K_α 为滤膜的自吸收系数; V 为取样流量, L/min; C_2 、 C_3 、 C_4 、 C_5 、 C_6 分别为空气中 RaA、RaB、RaC、ThB 和 ThC 浓度, pCi/L。假定在取样期间 ²²²En/²²⁰Rn 的浓度不变, g_i 、 ψ_i 可由下式表示:

$$g_i = 1 - e^{-\lambda_i t_0}, \quad \phi_i = e^{-\lambda_i T_1} - e^{-\lambda_i T_2} \quad (4)$$

式中, λ_i 分别为 RaA、RaB、RaC、ThB、ThC 的衰变常数。由式(1)~(3), 为求出 ²²²Rn/²²⁰Rn 子体浓度, 须在采样后两段时间内进行 α能谱测量。由式(1)~(3)可得:

$$N_{ij} = [\sum_{j=1}^5 F_{ij} C_j] \epsilon K_\alpha \eta \nu \quad (5)$$

式中, N_{ij} 为取样结束后第 i 段时间内滤膜上第 j 种 α粒子的计数, F_{ij} 为系数矩阵; C_j 分别为 RaA、RaB、RaC、ThB、ThC 的浓度。

求出矩阵 F 的逆矩阵 L , 就可计算出 ²²²Rn/²²⁰Rn 子体的浓度。

$$C_j = \frac{1}{\epsilon K_\alpha \eta \nu} \sum_{i=1}^2 L_{ji} N_{ij} \quad (6)$$

C_j 的不确定度为 S_j :

$$S_j = \frac{1}{\nu \epsilon \eta K_\alpha} \left\{ \sum_j L_{ji}^2 N_{ij} + (\sum_j L_{ji} N_{ij})^2 \cdot \left[\left(\frac{\Delta V}{V} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \eta}{\eta} \right)^2 + \left(\frac{\Delta K_\alpha}{K_\alpha} \right)^2 \right] \right\} \quad (7)$$

1.3 α能谱测量优化方法

从(7)式可知: 1) S_j 与流量 V 、探测效率 ϵ 以及滤膜的过膜效率 η 、自吸收系数有关, 增大 V 和 ϵ , 并使用高效滤膜可减小 S_j ; 2) 空气中 ²²²Rn/²²⁰Rn 子体浓度越高, 各时间段内计数越大, S_j 也就越小; 3) S_j 与 L_{ji} 有关, 即与采样时间(t_0)、采样后的测量时间段($T_{1-1}-T_1$)有关。

测量仪器、滤膜一经选定很难改动, 探测效率 ϵ 、滤膜的各系数对误差的影响就是确定的, 流量 V 的改变对探测结果的影响也很易得出, 则测量程序成为测量不确定度中不易估算的量。为明确测量程序对误差造成的影响, 寻找测量误差较小的测量程序, 下文分析采样时间与误差的关系、总测量时间与误差的关系、测量两时间段与误差的关系。在选取测量程序时, 除保证测量误差较小外, 还力求使总测量时间最短。

1.3.1 测量程序分析

在测量程序分析中, 测量误差使用 Matlab 进行编程计算, 并假定采样流量 $V=20$ L/min, $\epsilon=0.2$, η 、 K_α 均为 1, 不确定均为 0.05, 空气 ²²²Rn 子体的浓度 37 Bq/m³, ²²²Rn 子体平衡比 1:0.6:0.4, ²²⁰Rn 子体浓度 3.7 Bq/m³, ²²⁰Rn 子体平衡比 1:0.6。

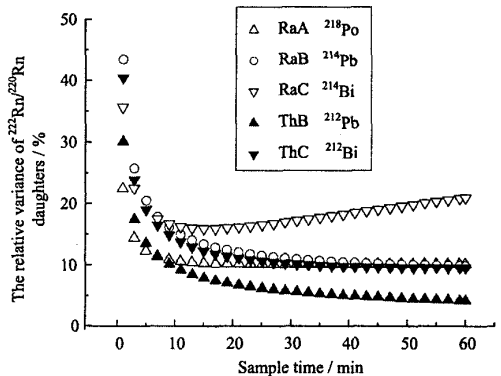


图 2 α能谱法测量 ²²²Rn/²²⁰Rn 子体相对误差随采样时间变化图

Fig.2 The relative variance of ²²²Rn/²²⁰Rn daughters vs the sampling time in alpha spectrum measurement

为分析采样时间与测量误差的关系, 需选择一定的 ²²²Rn/²²⁰Rn 子体 α能谱测量程序。不同 ²²²Rn/²²⁰Rn 子体 α能谱测量程序, 随采样时间变化

反映出大致相同的测量误差变化规律，因此选择 (0-12)、(15-30)、(2-60)、(60-120) 作为 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体能谱测量程序，进行采样时间与测量误差间关系的计算。计算得到的 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体测量误差与采样时间的变化关系(图 2)表明，RaA、RaB、ThB、ThC 的相对误差均随采样时间的增加而减小，RaC 的相对误差在采样 15 min 左右达最小。这些特征与各子体的半衰期和计算传递误差有关。多种 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体平衡比计算结果也表明采样 15 min 是较好的采样时间。

对 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体测量两时间段与误差的关系分析方法为：采样时间 15min，第一段测量时间(min)为 2 到 a，第二段测量时间为 a 到 b(b 为总测量时间)，

a 从 3 一直递增至(b-1)。第一段测量开始时间为 2 min，是采样后转移滤膜和能谱仪抽真空所需时间。

由此得到的测量时间段与测量误差的关系(图 3)表明，RaA 的测量误差随第一段测量时间增加而减小；RaB、RaC、ThB、ThC 的测量误差则随第一段测量时间的变化呈规律性变化，减小→最小值→增大，且第一段测量结束时间在一段时间内变化时测量结果具有较稳定的相对误差。其不同 ^{222}Rn 子体平衡比计算表明，总测量时间为 30 min 时，误差较小的第一段测量结束时间在 12 min；不同 ^{220}Rn 子体平衡比计算表明，总测量时间为 120 min 时，误差较小第一段测量结束时间为 43 min。

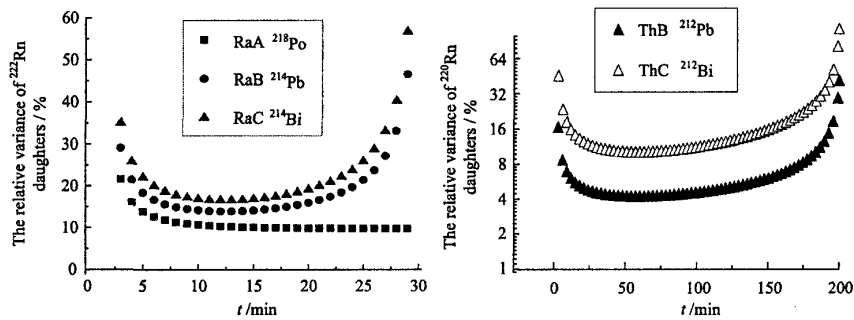


图 3 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体测量相对误差随第一段测量结束时间变化的关系图

Fig.3 The relative variance of $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ daughters vs the first time interval of the alpha spectrum measurement

$^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体总测量时间与误差的关系分析方法为：采样时间 15 min；对每一总测量时间，按上文的测量时间段的优化法选出最优的测量时间段，保证在每个总测量时间内都能获得在该总测量时间内最小的测量误差。随后增加总测量时间，得出总测量时间测量误差。表 1 和表 2 分别给出 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体测量相对误差随总测量时间变化。

由表 1、表 2， $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体的测量误差随总测量时间的增加而减小，且随总测量时间增加而减小的比例逐渐变小，延长总测量时间以减小测量误差并非良策。考虑测量误差的变化率和尽量缩短采样时间，可选择 30 min 作为 ^{222}Rn 子体总测量时间，120 min 作为 ^{220}Rn 子体测量时间。

表 1 ^{222}Rn 子体测量相对误差随总测量时间变化表(%)

Table 1 Relative variance of ^{222}Rn daughters by α spectrum measurement of different minutes						
总测量时间 Total time /min	10	20	30	40	50	60
RaA(^{218}Po)	12.60	10.91	10.28	10.00	9.99	9.84
RaB(^{214}Pb)	69.64	23.59	13.88	10.00	8.02	6.85
RaC(^{214}Bi)	49.84	22.90	16.54	13.76	12.23	11.28

表 2 ^{220}Rn 子体测量相对误差随总测量时间变化表(%)

Table 2 Relative variance of ^{220}Rn daughters by alpha spectrum measurement of different minutes										
总测量时间 Total time /min	30	60	90	120	150	180	210	240	270	300
ThB(^{212}Pb)	36.23	14.22	8.59	6.13	4.79	3.96	3.40	3.00	2.71	2.48
ThC(^{212}Bi)	104.03	66.61	55.21	49.66	46.36	44.20	42.68	41.56	40.70	40.33

表 4 优化能谱法与 Thomas 三段法实测结果比较表
Table 4 The experimental comparison of optimal spectrum method and Thomas method

测量方法 Methods		$C_{\text{RaA}}/\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$	$C_{\text{RaB}}/\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$	$C_{\text{RaC}}/\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$	$S_{\text{RaA}}/\%$	$S_{\text{RaB}}/\%$	$S_{\text{RaC}}/\%$
1	Thomas 三段法 Thomas method	668	230	160	18.19	15.57	24.31
	优化能谱法 Optimal	695	225	151	5.82	10.64	10.87
2	Thomas 三段法 Thomas method	740	233	121	16.04	14.90	31.04
	优化能谱法 Optimal	738	226	123	5.65	10.19	12.47
3	Thomas 三段法 Thomas method	240	47	28	22.90	32.03	58.99
	优化能谱法 Optimal	212	38	40	9.54	27.27	18.23
4	Thomas 三段法 Thomas method	134	53	34	37.58	28.24	48.10
	优化能谱法 Optimal	170	59	20	10.66	16.39	30.46

表 5 优化能谱法与五段法实测结果比较表
Table 5 The experimental comparison of optimal spectrum method and five intervals method

测量方法 Methods		$C_{\text{RaA}}/\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$	$C_{\text{RaB}}/\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$	$C_{\text{RaC}}/\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$	$C_{\text{ThB}}/\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$	$C_{\text{ThC}}/\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$
1	五段法 Five interval	75.6	15.4	33.0	20.4	-34.4
	优化能谱法 Optimal	65.1	4.8	4.0	17.9	3.6
2	五段法 Five interval	58.7	13.7	-2.0	20.7	-7.2
	优化能谱法 Optimal	33.6	11.9	4.2	19.9	9.7
3	五段法 Five interval	1664	152	30	58	-16
	优化能谱法 Optimal	1651	145	17	52	6.8
4	五段法 Five interval	1325	223	94	230	210
	优化能谱法 Optimal	1276	212	112	232	187

3 小结

本文对 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体 α 能谱测量程序对测量不确定度进行了分析, 获得了有关采样时间、测量时间段、总测量时间与测量不确定度的较清晰的关系。在此基础之上, 按快速准确测量 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体的原则, 优化了一种 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体 α 能谱测量程序, 并通过与多种 $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ 子体测量程序的理论和实验对比, 验证了该测量程序的合理性。

参考文献

1 潘自强. 辐射防护的现状与未来. 北京: 原子能出版社, 1997
PAN Zhiqiang. The reality and future of radiation protection. Beijing: Atom Press, 1997

2 张智慧. 空气中氡及其子体的测量方法. 北京: 原子能出版社, 1994
ZHANG Zhihui. The measurement methods of Radon and its daughters in air. Beijing: Atom Press, 1994

3 张纯祥, 罗达玲. 辐射防护, 1983, 3(2): 33-38

ZHANG Chunxiang, LUO Daling. Radiation Protetion, 1983, 3(2): 33-38

4 张哲, 吴桂惠, 吴峰. 辐射防护, 1986, 6(6): 23-27
ZHANG Zhe, WU Guihui, WU Feng, *et al.* Radiation Protection, 1986, 6(6): 23-27

5 田德源, 陆治钊. 核电子学与探测技术, 1994, 14(6): 361-364
TIAN Deuan, LU Zhizhao. Nucl Electr Detec Tech, 1994, 14(6): 361-362

6 王英, 张少东. 辐射防护, 1996, 16(2): 145-149
WANG Ying, ZHANG Shaodong. Radion Protectoin, 1996, 16(2): 145-149

7 李德平, 潘自强主编. 辐射防护手册(第二分册). 北京: 原子能出版社, 1988. 245-256
LI Deping, PAN Zhiqiang. Radiation protection manual. (Second Volume). Beijing: Atom Press, 1988. 245-256

8 Sonoc S, Sima O. Radiation Protection Dosimetry, 1992, 45(1): 51-52

9 Thiessen N P. Health Physics, 1994, 67(6): 632-640

Optimization of alpha energy spectrum method for measuring radon and thoron daughters in air

KANG Xi¹ XIAO Detao² LI Junli¹

1 (Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084)

2 (School of Nuclear Science and Technology, Nanhua University, Hengyang 421001)

Abstract Based on uncertainty analysis of the α spectroscopy program for measuring the $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ daughters, the relationships among the sampling time, measurement intervals, and total measurement time and measurement uncertainty are studied in details, and an optimal measurement program was given for quick and accuracy determination of the $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ daughter concentrations in air. The optimal program was also proved by comparing the results with several measurement programs by other researchers in theory and practice.

Key words Radon daughters, Thoron daughters, α energy spectrum

CLC O613.16, TL817.2