

静电收集式氦析出率仪的计算公式讨论

苟全录 张智慧

(中国辐射防护研究院, 太原, 030006)

从放射性衰变的基本理论出发, 结合静电收集式氦析出率仪收集室内氦及其子体变化规律及其影响因素, 导出了氦析出率的理论计算公式, 并对 z 的取值进行了讨论。从而说明了目前所见的静电式氦析出率仪计算公式中存在的问题, 引入有效衰变常量导出了氦析出率测量的实用公式。还对收集室内氦发射的 α 粒子的影响以及前一个点测量中剩余的氦子体对下次测量的影响进行了讨论, 给出了相应的修正系数, 使得该方法更加完善, 也更符合实际。

关键词 静电收集 氦析出率仪 有效衰变常量

中图法分类号 O 571.321

目前, 不仅铀矿退役需要监测氦析出率, 并且随着人们对氦危害认识的进一步加深, 对土壤、建材及地下工程、旅游山洞等表面的氦析出率的监测也已提到了议事日程。在当前所见的氦析出率测量方法中, 静电收集式氦析出率仪^[1]以其简便迅速、可即时测量给出结果得到了较广泛的应用。本文就该方法计算公式中存在的问题加以讨论。

1 仪器结构及工作原理

全套装置由探头(探测器、氦收集室)和电子学线路及高低压电源等几部分构成, 其工作原理图示于图 1。探测器用 $\phi 50$ 金硅面垒型半导体探测器, 具有体积小、响应快、对 γ 不灵敏的特点。收集室采用双层结构, 内壁衬有铜皮, 下面与铜网连接。测量时, 将收集室扣在待测介质表面, 加上 1500 V 高压, 这时收集室内氦变化有以下 4 种机制: 介质内氦原子在扩散与渗透作用下逸出介质表面进入收集室; 收集室中的一部分氦经扩散返回介质内(称之为反扩散); 一部分氦原子经收集室与介质表面接触处泄露出去; 收集室中的氦原子衰变产生氦子体。在这 4 种机制的作用下, 经过一段时间后收集室内氦浓度达到动态平衡。在静电场的作用下, 带正电的氦子体 ^{218}Po 被探测器前的铝膜收集, 氦子体衰变产生的 α 粒子被探测器记录, 由 α 计数即可推算出介质表面的氦析出率。

苟全录: 男, 31 岁, 辐射防护与核安全专业, 助理研究员

收稿日期: 1997-05-30 收到修改稿日期: 1997-10-13

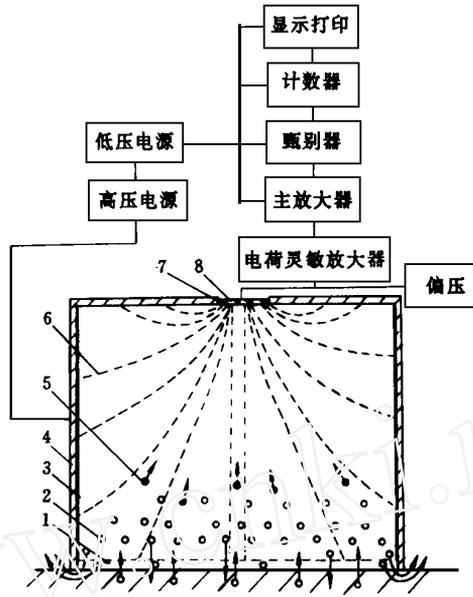


图 1 氡析出率仪工作原理示意图

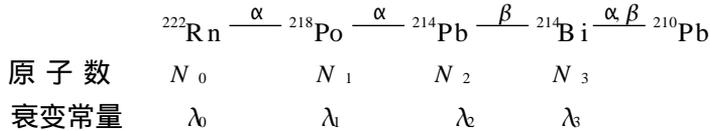
Fig 1 Principal schematic diagram of radon exhalation monitor

- 1——铜网; 2——氡原子; 3——铜皮;
4——外壳; 5——²¹⁸Po 离子; 6——电力线;
7——铝膜; 8——半导体探测器

2 用近似公式计算氡析出率时存在的问题

2.1 收集室中氡及其子体的变化规律

氡(²²²Rn)是天然放射性铀系衰变产生的放射性气体,其衰变链如下:



假定氡衰变产生的带正电的²¹⁸Po 立即被收集到探测器前的铝膜上,则收集室中的氡及其铝膜上的子体原子数的变化可用下面的微分方程描述:

$$\frac{dN_0(t)}{dt} = \frac{RS}{\lambda_0} - \lambda_0 N_0(t) \tag{1}$$

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = \eta\lambda_0 N_0(t) - \lambda_1 N_1(t) \tag{2}$$

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = \lambda_1 N_1(t) - \lambda_2 N_2(t) \tag{3}$$

$$\frac{dN_3(t)}{dt} = \lambda_2 N_2(t) - \lambda_3 N_3(t) \tag{4}$$

式中: R 为介质表面的氡析出率, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; S 为收集室的底面积, m^2 ; λ 为收集室内氡的

有效衰减常量, s^{-1} ; $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$ 分别为 $^{218}\text{Po}, ^{214}\text{Pb}, ^{214}\text{Bi}$ 的物理衰变常量, s^{-1} ; η 为探测器对 ^{218}Po 的收集效率。

若考虑理想情况, 假定收集开始时收集室中的氡及其子体原子数为零, 即: $t=0$ 时, $N_0(t)=0, N_1(t)=0, N_2(t)=0, N_3(t)=0$, 则上述方程组的解为:

$$N_0(t) = \frac{RS}{\lambda_1 \lambda_0} (1 - e^{-\lambda_1 t}) \quad (5)$$

$$N_1(t) = \eta RS \left[\frac{1}{\lambda_1 \lambda_2} - \frac{1}{\lambda_2 (\lambda_1 - \lambda_2)} e^{-\lambda_1 t} + \frac{1}{\lambda_1 (\lambda_1 - \lambda_2)} e^{-\lambda_2 t} \right] \quad (6)$$

$$N_2(t) = \eta RS \left[\frac{1}{\lambda_1 \lambda_2} - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 (\lambda_2 - \lambda_1) (\lambda_2 - \lambda_3)} e^{-\lambda_1 t} - \frac{1}{(\lambda_1 - \lambda_2) (\lambda_1 - \lambda_3)} e^{-\lambda_2 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 (\lambda_2 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_1)} e^{-\lambda_3 t} \right] \quad (7)$$

$$N_3(t) = \eta RS \left[\frac{1}{\lambda_1 \lambda_3} + \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_2 (\lambda_2 - \lambda_1) (\lambda_2 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_3)} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_2}{(\lambda_1 - \lambda_2) (\lambda_1 - \lambda_3) (\lambda_1 - \lambda_3)} e^{-\lambda_2 t} + \frac{\lambda_1}{(\lambda_2 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_1) (\lambda_2 - \lambda_3)} e^{-\lambda_3 t} + \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_3 (\lambda_3 - \lambda_2) (\lambda_3 - \lambda_1) (\lambda_3 - \lambda_2)} e^{-\lambda_3 t} \right] \quad (8)$$

2.2 铝膜上氡子体的 α 衰变率

铝膜上氡子体的 α 衰变率 $A(t)$ 为: $A(t) = \lambda_1 N_1(t) + \lambda_3 N_3(t)$, 将式(6)、(8)代入化简可得:

$$A(t) = \eta RS \left[\frac{2}{\lambda_1} + \frac{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 + \lambda_1 (\lambda_2 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_3)}{\lambda_2 (\lambda_2 - \lambda_1) (\lambda_2 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_3)} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_2 \lambda_3 + (\lambda_1 - \lambda_2) (\lambda_1 - \lambda_3)}{(\lambda_1 - \lambda_2) (\lambda_1 - \lambda_3) (\lambda_1 - \lambda_3)} e^{-\lambda_2 t} + \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_1) (\lambda_2 - \lambda_3)} e^{-\lambda_3 t} + \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_3 - \lambda_2) (\lambda_3 - \lambda_1) (\lambda_3 - \lambda_2)} e^{-\lambda_3 t} \right] \quad (9)$$

若令 X 为 $t_1 - t_2$ 时间间隔内测得的 α 计数, E 为探测器对铝膜上 α 放射性子体的探测效率, 则 $t_1 - t_2$ 时间间隔内铝膜上氡子体的 α 衰变数为:

$$\frac{X}{E} = \int_{t_1}^{t_2} A(t) dt = \eta RS \cdot Z \quad (10)$$

其中:

$$Z = \frac{2}{\lambda_1} (t_2 - t_1) - \frac{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 + \lambda_1 (\lambda_2 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_3)}{\lambda_2^2 (\lambda_2 - \lambda_1) (\lambda_2 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_3)} (e^{-\lambda_1 t_2} - e^{-\lambda_1 t_1}) - \frac{\lambda_2 \lambda_3 + (\lambda_1 - \lambda_2) (\lambda_1 - \lambda_3)}{\lambda_1 (\lambda_1 - \lambda_2) (\lambda_1 - \lambda_3) (\lambda_1 - \lambda_3)} (e^{-\lambda_2 t_2} - e^{-\lambda_2 t_1}) - \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_3 (\lambda_3 - \lambda_2) (\lambda_3 - \lambda_1) (\lambda_3 - \lambda_2)} (e^{-\lambda_3 t_2} - e^{-\lambda_3 t_1})$$

$$\frac{\lambda_1 \lambda_3}{\lambda_2 (\lambda_2 - \lambda_1) (\lambda_2 - \lambda_3)} (e^{-\lambda_2 t_2} - e^{-\lambda_2 t_1}) - \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_3 (\lambda_3 - \lambda_1) (\lambda_3 - \lambda_2)} (e^{-\lambda_3 t_2} - e^{-\lambda_3 t_1}) \quad (11)$$

由式(10)可得氡析出率 R 的表达式为:

$$R = \frac{X}{S \eta E Z} \quad (12)$$

2.3 Z 的取值

λ 不是一个固定值, 它和介质种类以及收集室与测量表面之间的密封情况等有关。通常 λ 的值在 $2.100 \times 10^{-6} \sim 2.500 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 的范围内变化。若 λ 分别取值为 2.097×10^{-6} 、 8.333×10^{-5} 、 1.667×10^{-4} 、 $2.500 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, λ_1 、 λ_2 、 λ_3 分别取 3.788×10^{-3} 、 4.311×10^{-4} 和 $5.864 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, 即可求得 λ 取不同值时不同时间间隔测量时的 Z 值(表 1)。

表 1 Z 的计算值

Table 1 Calculation value of Z

起始时间/s	计数时间间隔/s	$10^6 \Delta t^2 / \text{s}^2$	不同 $\lambda (\text{s}^{-1})$ 下的 $10^6 Z / \text{s}^2$			
			2.097×10^{-6}	8.333×10^{-5}	1.667×10^{-4}	2.500×10^{-4}
0	0—600	0.36	0.084	0.083	0.082	0.081
	0—1200	1.44	0.481	0.467	0.455	0.442
	0—1800	3.24	1.262	1.209	1.159	1.112
60	60—660	0.36	0.108	0.106	0.105	0.103
	60—1260	1.44	0.541	0.525	0.510	0.495
	60—1860	3.24	1.322	1.304	1.248	1.195
300	300—900	0.36	0.224	0.219	0.215	0.210
	300—1500	1.44	0.807	0.779	0.752	0.726
	300—2100	3.24	1.796	1.708	1.625	1.547
600	600—1200	0.36	0.396	0.384	0.372	0.361
	600—1800	1.44	1.177	1.126	1.077	1.030
	600—2400	3.24	2.383	2.246	2.119	2.002

2.4 近似公式的误差讨论

(1) 由表 1 可见, 不同时间间隔下 Z 值的差异较大, 表中最大值与最小值可相差两个数量级, 因此对于一定的测量条件, Z 的取值就显得非常重要, 但由于 λ 随介质不同和密封情况不同而有所不同。在目前所见的静电式氡析出率测量装置中, 其计算公式采用近似的办法^[1], 即用测量时间间隔 Δt^2 来取代(12)式中的 Z 值。在表 1 所示的几种情况中只有一种是 $Z > \Delta t^2$, 其余 11 种都是 $Z < \Delta t^2$, Δt^2 为 Z 值的 1.3—1.4 倍。这样用 Δt^2 取代 Z 的结果使得氡析出率的测量值比实际值偏低。尽管随着计数开始时间的滞后和测量时间间隔的加长, Δt^2 与 Z 值的差异缩小, 但是这种差异是不允许的。

(2) 由表 1 还可以看出, 在 λ 的正常变化范围内 ($8.300 \times 10^{-5} \sim 2.500 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$), 同一测量条件下的 Z 值相差很小 ($< 2\%$), 即使是在极端情况下, 即 λ 等于 ^{222}Rn 的物理衰变常量 ($2.100 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$), 也就是氡无泄露和反扩散, Z 值的变化也小于 5%。尽管如此, 由于 λ 在实

验上难于确定,公式(12)实际上难于运用。

3 实用氡析出率计算公式的推导

如第 1 节所述,当收集室扣在被测介质表面时,其中的氡浓度受以下 4 种机制的影响:氡析出、衰变、泄露、反扩散。介质表面的氡析出使得收集室内的氡浓度增加,其余 3 种因素则相反。于是收集室内氡浓度的变化可用下式表示:

$$\frac{dC(t)}{dt} = \frac{RS}{V} - C(t)\lambda \quad (13)$$

式中: $C(t)$ 为收集室中的氡浓度, $Bq \cdot m^{-3}$; V 为收集室的体积, m^3 。

令 $t=0$ 时,收集室中的氡浓度为 C_0 ,则式(13)的解为:

$$C(t) = \frac{RS}{\lambda V} (1 - e^{-\lambda t}) + C_0 e^{-\lambda t} \quad (14)$$

如果进行时间间隔为 T 的连续测量,则相邻两次测得的氡浓度有如下的关系:

$$C_i(t) = \frac{RS}{\lambda V} (1 - e^{-\lambda t}) + C_{i-1}(t) e^{-\lambda t} \quad (15)$$

令 $A = \frac{RS}{\lambda V} (1 - e^{-\lambda t})$, $B = e^{-\lambda t}$,则有:

$$C_i(t) = A + B C_{i-1}(t) \quad (16)$$

由于对一次测量来说, λ 可视作常数,因而 A 和 B 都是常数, A 和 B 之间有

$$A = \frac{RS}{\lambda V} (1 - B) \quad (17)$$

为了提高测量精度,可多次测量,用最小二乘法来计算 A 和 B ,最后求出 R 。

4 测量时间的选取及有关影响修正

4.1 测量时间的选取

若取 $C_0 = 20 Bq \cdot m^{-3}$, $R = 10^{-3} Bq \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$, $S = 0.032 m^2$, $V = 0.005 m^3$,由式(14)可得 λ 取不同值时,收集室中氡浓度的增长规律(图 2)。图 3 是收集室内氡原子和氡子体 α 放射性增长的实测曲线。由图可见 100 min 以前均近似以直线规律增长。因此其测量时间要选在曲线的直线段(100 min 以内)。

4.2 氡发射的 α 粒子的影响

在收集室内,探测器附近氡发射的 α 粒子会被记录,其影响可通过体积计算修正。已知探测器直径 $D = 5 cm$, ^{222}Rn 的 α 粒子能量为 5.49 MeV,其在空气中的射程为 $L = 4.2 cm$,则能射到探测器表面的是在如图 4 包容的体积内的 α 粒子。图 4 的体积 $V = \frac{1}{3} \pi H (L_1^2 + L_2^2 + L_1 L_2)$ 。这里 $L_1 = 6.7 cm$, $L_2 = 2.5 cm$, $H = 4.2 cm$ 。则 $V = 298 cm^3 \approx 0.3 L$ 。

收集室总体积为 5 L,则氡发射 α 粒子的体积占总体积的 6%。因为计算时是以圆台计算的,多算了一些,估计氡发射 α 粒子体积与总体积之比小于 5%。在这部分体积中产生的 α 粒子中,只有扩散到探测器表面的那部分才产生计数,考虑探测器面积占圆台总内表面积之比后,估计氡发射的 α 粒子对总计数的影响小于 1%。

4.3 本底影响修正

在实际测量中由于前一次测量时沉积在铝膜上的氡子体没有全部衰变掉,这部分子体必

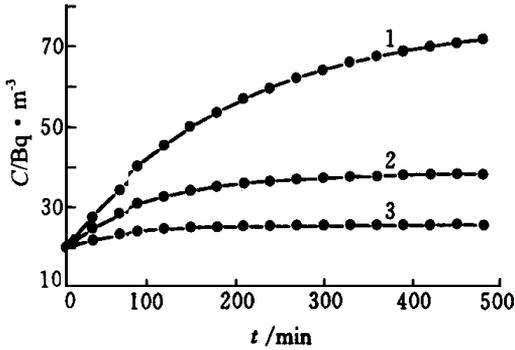


图 2 收集室内氡浓度增长曲线

Fig 2 Curve of radon concentration growth in collection chamber versus time

1— $\lambda = 8.333 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$; 2— $\lambda = 1.667 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$;
3— $\lambda = 2.500 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$

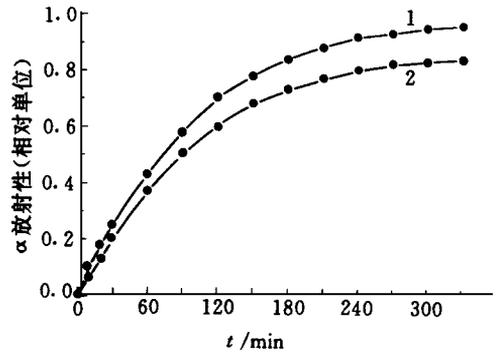


图 3 收集室内氡原子和氡子体 α 放射性增长的实测曲线

Fig 3 Measurement curves of radon and a radiativity of its daughter versus time
1—氡原子; 2—氡子体

然对下次测量有影响, 应对其进行修正。相邻 2 次测量的时间坐标示于图 5。 $t_2 - t_1$ 为第一次测量的时间间隔, $t_4 - t_3$ 为第二次测量的时间间隔, $t_3 - t_2$ 为等待时间, T 为衰变时间, 是 2 次测量时间间隔中点之间的时间间隔。令第一次测量得到的累积计数为 G_0 , 对第二次测量的计数贡

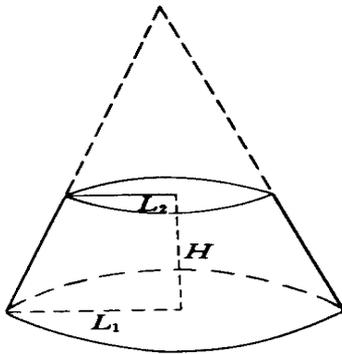


图 4 氡发射 α 粒子的计数体积示意图

Fig 4 Volume concerned in count caused α particles from radon

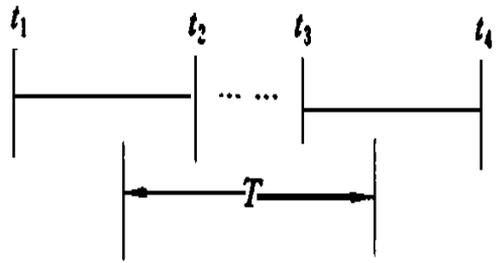


图 5 相邻 2 次测量的时间坐标

Fig 5 Time coordinates of two sequential measurements

献为 G , 则有

$$G = G_0 e^{-\lambda T} \tag{18}$$

式中 λ 为氡子体的表观衰变常量, 取 $4.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, 衰变时间 T 为:

$$T = 1/2(t_2 - t_1) + (t_3 - t_2) + 1/2(t_4 - t_3)$$

若取 $t_1 = 0 \text{ s}$, $t_2 = 600 \text{ s}$, $t_3 = 960 \text{ s}$, $t_4 = 1560 \text{ s}$, 则 $T = 960 \text{ s}$, 由式(18)得:

$$G = 0.36G_0$$

5 结论

通过理论推导和数学计算分析了现有静电收集式氡析出率仪计算公式中存在的问题,并考虑了影响收集室内氡浓度的各种因素,引入有效衰变常量,导出了用该方法测量氡析出率的实用公式,使得该方法更加完善,也更符合实际,还对有关影响因素进行了分析,给出了相应的修正系数。

参 考 文 献

- 1 王庆恒, 韩国胜, 李晓戈, 等. 氡析出率测量装置的研制: 中国核科技报告 CN IC-01157, CRP-0017. 北京: 原子能出版社, 1997.

DISCUSSION ON THE FORMULA OF ELECTROSTATIC COLLECTION RADON EXHALATION RATE MONITOR

Gou Quanlu Zhang Zhihui

(China Institute for Radiation Protection, Taiyuan, 030006)

ABSTRACT

The formula for calculating radon exhalation rate from the surface of materials are deduced based the theory of radioactivity decay by considering factors which effect the change of radon and its decay products. The selection of value of Z in the formula are also discussed and some problems that exist in the available formula used to calculate the radon exhalation rate are explicated. The practical formula are deduced by adopting the effective decay constant λ of radon in the collector. The fraction of α particles emitted by radon which effects the measurement results and the contribution of radon decay products left in the former measurement to the next measurement are also considered, and the correction factors are given respectively. The method is more complete and more practical.

Key words Electrostatic collection Radon exhalation rate Effective decay constant