

CNIC-00574

HYIT-0001

CN9300204

# 中国核科技报告

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT

驻极体收集积分测氡法

RADON MONITORING TECHNIQUE  
WITH ELECTRET COLLECTING

*(In Chinese)*



原子能出版社

中国核情报中心

China Nuclear Information Centre



田志恒：衡阳工学院辐射防护教研室主任，高级工程师。1959年毕业于北京大学技术物理系核物理专业。

Tian Zhiheng: Director of the Radiation Protection Division, Hengyang Institute of Technology, senior engineer. Graduated from the Department of Technology physics of Beijing University in 1959, majoring in nuclear physics.

CNIC-00574

HYIT-0001

## 驻极体收集积分测氦法

田志恒 左富琪 肖德涛 赵修良

(衡阳工学院)

### 摘 要

驻极体收集积分测氦法,利用驻极体产生的静电场收集 $^{218}\text{Po}^+$ 正离子,极大地提高了测氦灵敏度。采用驻极体法测氦,响应因子比常规被动采样法的大千倍左右,达 $4.70\text{ cm}^{-2}\text{ Bq}^{-1}\text{ m}^3\text{ h}^{-1}$ 。还对测量装置和方法进行了描述,介绍了该方法在秦山核电站、湖南省环境监测中心站和一些铀矿山应用的情况及质量保证体系。分析结果表明,秦山核电站的氦浓度变化关键因素是海陆风,当风从陆地吹来时氦浓度较高,从海上吹来时则较低,两者的比值约为2。

# **RADON MONITORING TECHNIQUE WITH ELECTRET COLLECTING**

*(In Chinese)*

Tian Zhiheng Zuo Fuqi Xiao Detao Zhao Xiuliang

(HENGYANG INSTITUTE OF TECHNOLOGY)

## **ABSTRACT**

The integrating radon monitoring technique with electret collecting is a method which collects the  $^{218}\text{Po}^+$  positive ions by electrostatic field produced by electret. It has greatly improved the sensitivity of radon measurement. The response factor of this method reaches to  $4.7 \text{ cm}^{-2}\text{Bq}^{-1}\text{m}^3\text{h}^{-1}$ , 1000 times larger than that of common passive sampling method. The monitoring device and its principle are introduced in this article. The measuring results of radon concentration and radon flux rate and quality assurance system by using this method in the Qinshan Nuclear Power plant, Hunan Environmental Monitoring Central Station and some uranium mines are also presented. The analytical results show that the radon concentration in the Qinshan Nuclear Power plant is affected by wind direction. When wind directs toward sea, the radon concentration is high. If the wind is to the contrary, it is low. The radon concentration ratio of both is about 2.

## 前言

氡和氡子体是铀矿工人职业照射的主要来源,也是人类所接受的电离辐射剂量当量的主要来源<sup>[1]</sup>。矿井和室内外的氡和氡子体的浓度变化很大,抓样法的测量结果用于评价职业或环境照射有很大的局限性。但氡子体平衡因数的变化幅度较小,因此通过氡浓度的积分测量来估算氡和氡子体的剂量当量,这种方法已被越来越多的人所采用。

铀尾矿堆析出的氡是环境放射性污染的一个重要因素。按联合国原子效应科学委员会的估算,对于整个核燃料循环所产生的归一化有效剂量负担(以人·Sv(GWe·a)<sup>-1</sup>为单位),当积分时间较长时,由铀尾矿堆析出的氡起主要作用<sup>[2]</sup>。因此,对铀尾矿堆的处置和评价,使其氡析出率满足规范的要求,是核工业环境保护的一个重要课题,也是为子孙后代创造安全卫生的生活环境的重要战略措施。

铀矿及铀尾矿堆通常位于远离实验室的旷野,而需要监测的居民区也可能远离监测中心。这些监测现场条件各异,氡浓度和氡析出率的测量装置必须具有携带方便、操作简单、灵敏可靠、现场采样周期短、耐受恶劣环境而不发生故障、不需要电源而便于成批测量等特点。由衡阳工学院研制的驻极体收集积分测氡仪<sup>[3]</sup>,基本上能满足这些要求,已在核工业总公司一些厂矿及地方环境保护部门推广应用。

## 1 测量装置和方法

### 1.1 被动采样小室

被动采样小室是一个圆柱形塑料筒,上部设驻极体探测盒,下部设过滤底盘,如图1所示。小室体积为 $3.16 \times 10^{-3} \text{m}^3$ ,内表面镀铬。空气中的氡由扩散作用透过过滤底盘而进入被动采样小室,而空气中的氡子体则被阻隔在外。进入小室内的氡衰变产生的<sup>218</sup>Po有90%带正电荷。<sup>218</sup>Po<sup>+</sup>正离子在驻极体产生的静电场作用下被收集到驻极体探测盒上对CR-39固体核径迹探测器进行照射,由此极大地提高了CR-39上的 $\alpha$ 粒子径迹密度,因而提高了测氡灵敏度。

将去掉底盘的被动采样小室(底面积为 $2.78 \times 10^{-2} \text{m}^2$ )直接扣在地板、墙壁、土壤、矿体或矿堆上,就构成了测定这些介质表面氡析出率的装置。

当被动采样小室用于氡浓度测量时,小室内的氡浓度 $C$ 可表示为

$$\frac{dC}{dt} = -\lambda_1 C_0 - \lambda_2 (C - C_0) \quad (1)$$

$$\lambda_2 = \frac{dA}{dV}$$

其中: $C_0$ ——小室外面的氡浓度;

$\lambda_1$ ——<sup>222</sup>Rn的放射性衰变常数;

$\lambda_2$ ——氡扩散引起的转移速率常数;

$d$ ——氡在过滤膜中的扩散系数;

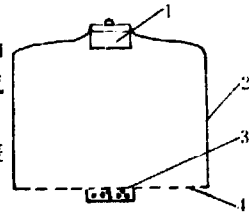


图1 采样小室示意图

- (2) 1——探测盒; 2——采样小室; 3——干燥剂; 4——底盘及扩散窗。

$\delta, A$ ——过滤底盘上滤膜的厚度和面积;

$V$ ——采样小室的容积。

由实验测定的  $\lambda_0 = 2.8 \text{ h}^{-1}$  ( $T_{1/2} = 15 \text{ min}$ ), 即  $\lambda_0 \gg \lambda_1$ 。于是, 对于恒定的  $C_0$ , 当  $\lambda_0 t \gg 1$  时, 小室内外的  $^{222}\text{Rn}$  浓度即达到平衡:

$$C = C_0 \quad (3)$$

当被动采样小室用于氡析出率测量时, 小室内的氡浓度可表示为

$$\frac{dC}{dt} = \frac{SJ}{V} - (\lambda_1 + \lambda_0)C \quad (4)$$

其中:  $J$ ——被监测介质表面的  $^{222}\text{Rn}$  析出率(即通量密度);

$S, V$ ——被动采样小室的底面积和体积;

$\lambda_0$ —— $^{222}\text{Rn}$  的放射性衰变常数;

$\lambda_1$ ——由反扩散和泄漏所决定的减弱速率常数。

设被动采样小室内的初始氡浓度可以忽略, 则方程(4)的解可表示为

$$C = \frac{SJ}{V(\lambda_1 + \lambda_0)}(1 - e^{-(\lambda_1 + \lambda_0)t}) \quad (5)$$

当  $(\lambda_1 + \lambda_0)t \ll 1$  时, (5)式简化为

$$C = \frac{SJt}{V} \quad (6)$$

对土壤的测量实验表明, 采样时间  $t$  在 10 h 以内  $^{222}\text{Rn}$  浓度随  $t$  线性增长。在保持氡浓度线性增长的条件下, 小室内的氡暴露量为

$$E = \frac{1}{2V} SJT^2 \quad (7)$$

式中  $T$  为采样周期。

## 1.2 刻度系统

氡测量的条件实验和刻度是在一个自制的简易氡室内进行的, 其系统图如图 2 所示。氡室由胶合板制成, 内外表面涂密封漆, 体积为  $0.758 \text{ m}^3$ 。系统中的  $^{222}\text{Rn}$  源是一个射气系数高且稳定的固体  $^{226}\text{Ra}$  源, 其  $^{222}\text{Rn}$  产率  $A_{\text{Rn}} = 77.0 \text{ Bq min}^{-1}$ ,  $^{222}\text{Rn}$  的饱和活度  $A_{\text{Rn}} = 6.11 \times 10^5 \text{ Bq}$ 。包括过滤器和干燥器的氡源系统的  $^{222}\text{Rn}$  产率不受气压、温度和湿度的影响。在实验时将采样小室和某些监测仪器放入氡室内, 调节氡在源内的积累时间或膜片泵的送气时间, 可以精确地控制氡室内的  $^{222}\text{Rn}$  浓度。氡室除设有氡源循环管道外, 还开有一个电缆孔, 作为连续监测仪表和条件实验设备的电缆和流气通道。对氡室采取了密封措施。用连续监测仪表在氡室内连续监测 48 h, 并用闪烁室取样测量, 未发现氡室系统有可察觉的泄漏。

根据刻度时氡室内的氡浓度  $C$ 、被动采样小室在氡室内的照射时间  $T$  和处理后 CR-39 固体核径迹探

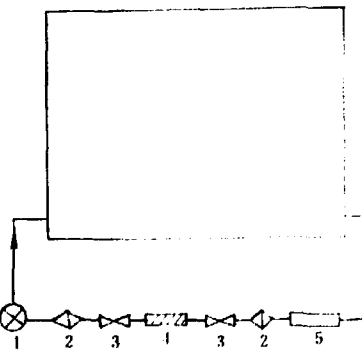


图 2 氡室系统示意图

1——膜电表; 2——过滤器; 3——阀门; 4——氡源; 5——干燥器。

测器上的径迹密度  $T_0$ ，即可给出被动采样积分测氡法的响应因子  $R$ ：

$$R = T_0 / \int_0^T C dt \quad (8)$$

它是在单位氡浓度的空气中照射单位时间在 CR-39 固体核径迹探测器上产生的径迹密度，实验测定的响应因子

$$R = 4.70 \text{ cm}^{-2} \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$$

比不用注射体的常规被动采样法的响应因子大上千倍(参看表 1)。这表明，将各种采样小室放在氡浓度相同的气氛中照射时，本方法采样半天所达到的径迹密度比常规方法采样半年所能达到的径迹密度还高。

表 1 各种被动采样积分测氡法灵敏度对照表

方 法	响应因子 $(\text{cm}^{-2} (\text{Bq m}^{-3} \text{ h})^{-1})^{-1}$	在 $2 \text{ Bq m}^{-3}$ 空气中测量	
		时 间	径迹 $\text{cm}^{-2}$
传统方法(北京)	4.98	0.5 a	43.1
传统方法(上海)	3.78	0.5 a	32.7
注射体法(贵阳)	4700	0.5 d	113

### 1.3 径迹蚀刻和测读

对照射过的 CR-39 固体核径迹探测器进行化学或电化学蚀刻处理。化学蚀刻在  $6.5 \text{ mol L}^{-1}$ 、 $70^\circ\text{C}$  的 KOH 溶液中进行，蚀刻时间 10 h。如果希望较快地获取数据，在  $75^\circ\text{C}$  下蚀刻 1.5 h 亦可。

电化学蚀刻使用 1.5 kHz、1 kV 高频电源。蚀刻时的温度和浓度控制条件与化学蚀刻时的相同。在对厚型(1.71 mm 厚)CR-39 进行电化学蚀刻时，电压选在 1 kV，持续 5 h；对于薄型(0.21 mm 厚)CR-39，电压和蚀刻时间为 0.1 kV 和 2.5 h。

蚀刻后的 CR-39 用双目显微镜测读。根据径迹疏密程度可以选择不同的放大倍数(10~1600 倍)。

### 1.4 探测下限

由采样周期  $T$  和 CR-39 探测器上的径迹密度  $T_0$  即可求出空气中的平均氡浓度  $C$  或氡析出率  $J$ ：

$$C = T_0 / RT \quad (9)$$

$$J = 2T_0V / SRT^2 \quad (10)$$

探测下限定义为未受照射的 CR-39 固体核径迹探测器径迹密度标准差  $S_T$  的两倍所对应的氡浓度或氡析出率。由(9)式或(10)式可知，氡浓度的探测下限  $LLD_c$  为

$$LLD_c = 2S_T / RT \quad (11)$$

氡析出率的探测下限  $LLD_j$  为

$$LLD_j = 4S_T V / SRT^2 \quad (12)$$

国产 CR-39 探测器本底径迹密度的标准差为  $3 \text{ cm}^{-2}$ 。如果氡浓度测量的采样周期为 10 h，氡析出率的采样周期为 1 h，则对应的氡浓度和氡析出率的探测下限分别为

$$LLD_c = 0.13 \text{ Bq m}^{-3}$$

$$LLD_2 = 0.14 \text{ mBqm}^{-2}\text{s}^{-1}$$

## 2 应用

本研究自1990年通过技术鉴定以来,已在衡阳市环保监测站、湖南省环境监测中心站、秦山核电站、国营781矿、713矿和715矿等单位用于室内外氡浓度的测量、建筑材料氡析出率的测量、矿井氡浓度的测量和尾矿堆氡析出率的测量,在这些测量中,除给出氡浓度和氡析出率的监测数据之外,还研究了其变化规律,下面仅就后者加以介绍。

### 2.1 海陆风对氡浓度的影响

秦山核电站氡浓度测量的主要目的在于研究空气中 $\alpha$ 放射性浓度的变化规律,作为核电站正常运行或事故情况下环境监测的本底资料,在一般内陆地区,露天氡浓度有明显的昼夜变化规律,白天大气逆温消失后氡浓度低,夜间氡浓度高,在秦山核电站的氡浓度测量中,白天9:00~19:00为一个采样周期,夜间19:00~9:00为另一个采样周期,连续测量了100天,测量数据的分析结果表明,在影响氡浓度变化的众多因素中,海陆风是关键的因素。

秦山核电站位于杭州湾,厂区北面朝海,防护带的一个监测站(秦联)东面朝海,两地氡浓度的昼夜变化规律有别,对风向的相关分析表明,当风从陆地吹来时氡浓度较高,从海上吹来时氡浓度较低,两者的比值约为2。

### 2.2 室内氡浓度的分布

在开窗条件下,室内靠近窗台处的氡浓度将低于其他地方的氡浓度,在关窗条件下,门口处氡浓度将低于屋角处的氡浓度,因此,室内的氡浓度不会是均匀的,在进行剂量估算时,必须考虑这一因素,湖南省环境监测中心站利用驻极体收集积分测氡法于1991年2月5日至2月7日在桑植县测量了煤渣砖房间在开窗和关窗条件下室内氡浓度的分布,测量结果如表2所示,还于1991年8月17日至8月18日在衡阳工学院实验室测量了离地面不同高度的氡浓度,测量结果列于表3,从表2的数据可以看出,门窗关闭与打开条件下室内平均氡浓度相差6倍,室内床头处的氡浓度最高,开窗时窗口处的氡浓度最低,开窗时不同位置的氡浓度相差约3倍,由此可见,在进行剂量估算时,必须考虑室内氡浓度的分布以及人在不同位置的平均居留时间,表2和表3中的三种高度分别代表人坐着、站着时呼吸带的高度以及采样小室经常布放的高度。

表2 煤渣砖房内不同位置的氡浓度

位 置,m	氡浓度, Bqm <sup>-3</sup>	
	关门窗	开门窗
床头离窗0.22	367±86	75±3.6
房中央离地板0.88	296±24	60±12
房中央离地板1.55	257±96	55±31
房中央离地板2.40	228±56	41±16
窗边离窗0.7	359±109	26±3.1



表3 普通建筑材料房间中央不同高度的氡浓度(门窗关闭)

离地高度, m	氡浓度, Bq/m <sup>3</sup>
0.88	12.2±0.4
1.50	11.7±0.2
2.70	9.6±0.1

### 2.3 氡析出率的测量

利用驻极体收集积分测氡法测量了建筑材料、铀矿和铀尾矿堆的氡析出率。对在役和退役铀矿山进行卫生和环境影晌评价时,氡析出率是一个关键的控制指标。铀矿山氡析出率的测量有3个特点:(1)测量对象有坑道、矿堆和峭壁,要求采样器随处而安;(2)矿堆分布范围广,要有足够数量的采样点才能进行有效的评价;(3)为了对不同矿点、不同覆盖厚度矿堆的氡析出率进行横向比较,监测必须在短期内完成,驻极体收集积分测氡法能够满足所有这些要求。例如在713矿的测量中,用30个采样小室轮番采样,用一周时间完成了420个样品的现场采样任务,在地势平坦的地区一天采了130个样,在781矿的测量中,要求对难以填埋的矿坑对环境氡的影响作出评价,为此,测量了矿壁、矿柱和石壁的氡析出率以及矿坑的氡浓度,白天的氡析出率采样完毕之后,将测氡小室布置在不同位置,到第二天清晨即获得矿坑氡浓度的测量样品,接下来可继续完成矿堆氡析出率的采样任务,非常方便,120个样品2d就完成了。

建筑材料和铀矿氡析出率测量的典型数据参见表4。

表4 氡析出率的测量值

监测对象	氡析出率, mBq/m <sup>2</sup> ·s <sup>-1</sup>
青砖	10.9
红砖	8.0
石灰墙	3.4
油漆墙	1.7
水泥	1.3
水磨石	0.7
瓷砖	0.5
土壤	15.6
铀矿床	3000
矿柱	300
尾矿(治理前)	1000
尾矿(治理后)	200

## 3 质量保证

### 3.1 建立理论模型进行条件实验

任何测量方法都会受到环境因素的影响,为了保证测量结果的可靠性,需要建立理论模型,进行必要的条件实验,将环境因素对测量结果的影响降到最低水平。例如,驻极体测氡法基于驻极体电场对<sup>218</sup>Po<sup>+</sup>正离子的收集,而<sup>218</sup>Po<sup>+</sup>正离子态在空气中的寿命随空气湿度的增加而缩短。这就需要在采样小室内设置干燥剂,根据空气湿度和采样时间估算干燥剂的用量,并对诸多干燥剂进行条件实验,此外,对小室内的电场分布,小室内氡及氡子体的升长规

律,以及驻极体的收集效率等,都要进行必要的理论计算和实验,以求达到对环境影响因素不灵敏的最佳效果。

### 3.2 刻度

对不同批号的 CR-39 固体核径迹探测器,以及在进行重大测量工作时,都要利用图 2 所示的氡室刻度系统对被动采样小室进行刻度。

### 3.3 比对

本研究方法曾由湖南省环境监测中心站张政国先生带到六所标准氡室进行比对,测定的氡浓度为  $1137(1 \pm 3.3\%) \text{ Bq m}^{-3}$ ,六所氡室的参考浓度为  $1182(1 \pm 3.2\%) \text{ Bq m}^{-3}$ ,由此可见,本方法的测定值与标准氡室的参考值在总不确定度的范围内一致。

本方法用于氡析出率测量时,曾与 272 厂的闪烁室采样法进行比较,两者对铀尾矿堆氡析出率的测量值相符。

## 4 结 语

驻极体收集积分测氡法灵敏度高,采样小室结构简单,操作方便,采样现场不用电源,采样周期短,可成批布点和轮番采样,适于环境氡浓度的测量、矿井氡浓度的测量、建筑材料氡析出率的测量和尾矿堆氡析出率的测量,对在役和退役的铀矿山进行辐射卫生和环境影响评价时,氡的监测任务可在一周左右的时间内完成,因而可保证测量结果的可比性。

本研究得到核工业总公司的支持,在此谨致谢意。

## 参 考 文 献

- [1] UNSCEAR. Ionizing Radiation, Sources and Biological Effects, UNSCEAR 1982 Report.
- [2] 田志恒等,利用驻极体提高测氡灵敏度的研究,核电子学与探测技术,1991,(1)

驻极体收集积分测氡法

原子能出版社出版

(北京2008信箱)

原子能出版社激光照排中心排版

北京市海淀区三环快速印刷厂印刷

☆

开本787×1092 1/16·印张1·字数7千字

1991年12月北京第一版·1991年12月北京第一次印刷

ISBN 7-5022-0628-0

TL·372

# CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT



This report is subject to copyright. All rights are reserved. Submission of a report for publication implies the transfer of the exclusive publication right from the author(s) to the publisher. No part of this publication, except abstract, may be reproduced, stored in data banks or transmitted in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording or otherwise, without the prior written permission of the publisher, China Nuclear Information Centre, and/or Atomic Energy Press. Violations fall under the prosecution act of the Copyright Law of China. The China Nuclear Information Centre and Atomic Energy Press do not accept any responsibility for loss or damage arising from the use of information contained in any of its reports or in any communication about its test or investigations.

ISBN 7-5022-0628-0  
TL-372

China Nuclear Information Centre