

用路卡斯(Lucas)计数器测量氡—— 应用到天然水中镭的测定

Yamazaki K et al, Radioisotopes 29 (5): 236~239, 1980 (英文)

前 言

地球化学和海洋学对雷的同位素感兴趣,对于 ^{226}Ra ($T_{1/2}=1600$ 年,为 ^{238}U 系的一个成员), ^{228}Ra ($T_{1/2}=5.76$ 年,为 ^{232}Th 系的一个成员)的测定已有各式各样的放化分析和计数测定的方法。然而,由 ^{222}Rn 或 ^{220}Rn 衰变而产生的总 α 经典地广泛地使用 ZnS 光电倍增管进行测量,因为它能测到 α 粒子而且灵敏度较高。路卡斯发展了用活性的 ZnS 衬里的钟罩形 Rn 计数管,并说明几何位置和探测效率分别接近于 4π 和100%。只要探测器组成部分如光电倍增管窗的石英使用无放射性的物质就容易做成一台低成本定标器。对于氦气抽出和转移到计数系统,为了得到高的灵敏度和好的重复性,对于样品的个别情况也还是要进行摸索。

现在的工作一方面为了反复验证路卡斯型号计数器对天然水中 ^{226}Ra 分析测定的传统方法,另一方面是为了进行GEOSCE计划的中间一部分即1973~1974年部分,GEOSCE计划是1967~1980年研究遍及全世界的水中镭的分布图,资料已被积累。经实验室间的校对,有些结果的差异达20%。虽然作者未参加GEOSCE计划,但作者认为氦气的抽出是关键性的。从我们最近的经验来看,认为用同样型号的 α 计数器还是有利于更能重复、更精确地测定天然水中的 ^{226}Ra 。

计数器和它的性能试验

我们现在研究中使用了两种市场上可买到的路卡斯型计数器。一种是LAC-2计数器(Johnston实验室,美国有限责任公司),另一种是VR21-349-1(Aloka有限公司,日本)。这两种计数器大小相同(6cm高 \times 5cm直径,95ml),并通过一个石英窗与一个Toshiba 7696光电倍增管相联接。在经过一个附加活塞充进纯的 ^{222}Rn 之后,探测器用防光黑色外壳屏蔽并安装在10cm厚的铅屏蔽中。再把探测器与一台Fujitsu SA-500定标器相接。这两种计数管在900~1150V电压范围内坪的斜率非常稳定 $\leq 0.2\%$ 。

在计数器内充进 ^{222}Rn 让其短半衰期的子体与 ^{222}Rn 达到平衡,大约200分钟开始测量 ^{222}Rn 的计数。

计数器的性能是应首先研究的。用小量的 ^{226}Ra 标准溶液半充满居里瓶(0.5~1升)用 HCl 稍微酸化的溶液用载带气体(冷的活性碳过滤空气)发光。载带气经过三个捕集器,其中两个捕集器分别用 CaCl_2 和苏打石灰填充,用于冰-酒精冷却。另一个捕集器在干冰-酒精温度下用活性碳填充。吸附在活性碳上的氦气于300~400℃在10分钟内完全释放到冷捕集器的抽空部分和手指状小活性碳管的抽空部分。冷捕集器和手指状小活性碳管在干冰-酒精温度下是合适的。然后用汞泵将纯氦气转移到抽空的路卡斯计数器中。

测量氦气的溶解度用 ^{220}Rn 的 $K=(\text{Rn})_{\text{气}}/(\text{Rn})_{\text{液}}$ 式子来表示。在2.5~80℃相等体积(60ml)的气相与液相放射性之比是2.5~92。在较低温度下氦气有较高的溶解度,所以一定要仔细地清扫射气。从0.5升溶液中抽出氦气的效率是在不同流速情况下测量的。载带气的体积为液体的10倍,在室温下载带气体流速 ≤ 2.0 升/分钟发现氦的提取效率 $\geq 99\%$ 。氦的收集和转移到计数器是随着冒泡的气体增加呈指数增加,用较慢的冒泡速率,收集更有效。在气体收集、转移 $\geq 99\%$ 的情况下测定计数效率,用含 ^{226}Ra $2.31 \times 10^{-10}\text{g}$ (每分钟508个核衰变)的水0.5升,其计数效率为 $(74.6 \pm 0.2)\%$ (^{222}Rn 和它的子体三种 α 射线每分钟计数是 379.0 ± 0.7 ,三次试验的平均值),计数率在统计学上重复性很好。计数器抽空到 $0.1\text{Pa}(10^{-3}$ 毫米汞柱)其本底计数率在前两个月是 ≤ 0.1 ,连续使用 ^{226}Ra 4个月其本底计数率增到0.25个计数/分钟。用100升空气在干冰-酒精温度下过滤,其空白计数率是 0.36 ± 0.05 个计数/分钟(四个试验平均值),此值包括计数器的本底 0.25 ± 0.03 个计数/分钟,这个值还说明了从空气中(大约100个衰变/100升,分钟)有效地除去了 Rn ,因此,使用过滤空气来清扫天然水样品中的氦是允许的。

应用到天然水中Ra-226的测定

上述计数器系统的灵敏度经计算, 同子体氡平衡的Ra-226为 $10^{-14} \sim 10^{-13}$ g。在大西洋和太平洋的两个表层水中约含 4×10^{-14} g²²⁶Ra/升, 而深层水和靠近海岸的水样中含²²⁶Ra量要高的多。

然后重新组装气体清扫系统, 气体清扫系统包括20升样品容器, 直接收集和计数²²²Rn(图1.)。在这个系统中样品容器是用环氧树脂真空密封的厚聚乙烯

烯容器, 清扫气体是氦, 对于水的捕集器是简单的。玻璃贮液瓶作为氦源, 产生高的和不稳定的本底值。用瓶装氦气作空白试验, 以5.4升/分钟流速, 30分钟通过162升氦气, 直接到捕集器中用于干冰-酒精冷却。测量计数结果为 0.62 ± 0.08 计数/分钟, 此值与抽空的计数器本底值 0.61 ± 0.03 计数/分钟相似。然后用20升蒸馏水进行空白试验, 以同样的氮气流速5.4升/分钟通过50~60分钟, 产生的净空白计数为

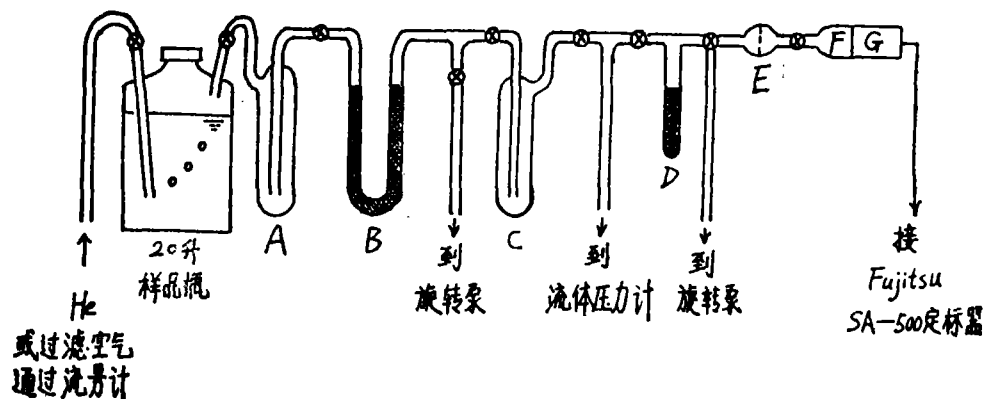


图1 从20升水样中抽出氦气图解

样品瓶是一个厚的聚乙烯瓶, 清扫气是瓶装氦气(或在干冰-酒精温度下经过U形活性碳管过滤的空气)。氦的纯化主要是与水分开, 经过两个冷的捕集器和一个活性碳捕集器。关于计数系统见本文。

F = 路卡斯(Lucas)计数器(Johnston LAC-2或Aloka VR21-349);

G = 光电倍增管(Toshiba 7679, 相当于DuMont 6292);

⊗ = 停止阀。

注, A, C = 冷的捕集器; B = 活性碳捕集器;

D = 活性碳过滤器; E = 球形接头;

表1 天然水样中的²²⁶Ra

样品	222Rn 与子体每分钟计数				226Ra	
	1	2	3	平均值	每分钟衰变(2)(3)	克/升
海水						
深度(米)						
200	3.7 ± 0.2	3.7 ± 0.2	3.4 ± 0.3	$3.65 \pm 0.13/20$ 升	$5.08 \pm 0.18/20$ 升	$(1.16 \pm 0.04) \times 10^{-13}$
500	4.4 ± 0.2	4.1 ± 0.3	3.8 ± 0.3	$4.19 \pm 0.15/20$ 升	$5.83 \pm 0.21/20$ 升	$(1.33 \pm 0.05) \times 10^{-13}$
1150	4.7 ± 0.2	4.5 ± 0.3	4.7 ± 0.3	$4.65 \pm 0.15/20$ 升	$6.47 \pm 0.21/20$ 升	$(1.47 \pm 0.05) \times 10^{-13}$
河水	0.40 ± 0.06	—	—	$0.40 \pm 0.06/20$ 升	$0.96 \pm 0.15/20$ 升	$(2.2 \pm 0.4) \times 10^{-14}$
温泉水	310.3 ± 1.8	—	—	$310.3 \pm 1.8/0.5$ 升	$411.8 \pm 2.4/0.5$ 升	$(3.74 \pm 0.14) \times 10^{-10}$

注: (1)、海水取自日本海(1967年8月3日采样, 取样地点: 北纬 $38^{\circ}06'$, 东经 $134^{\circ}27'$ Seifnmaru Maizuru 海洋气象天文台)。

河水取样地点: Saikawa 河水坝, Kanazawa。

温泉水采自 Arima—Gokurakuji, Kobe, 日本。

(2)、用²²⁶Ra标准溶液测定Rn的抽出效率, 对于不同Rn的抽出体系其抽出效率是不同的, 即对于海水, 河水和温泉水中Rn的抽出效率各不相同。

(3)、误差是按样品, 本底和标准²²⁶Ra计数的统计学。

0.14±0.09计数/分钟(三次试验平均值)。这些结果表明清扫气体用过滤空气和瓶装氮气它们的本底值无显著差异。

用瓶装氮气以5.4升/分钟流速通过含有508.8每分钟核衰变的²²⁶Ra的水来测定清扫效率:经过10分钟清扫掉42%的氡,20分钟为57%,25分钟为65%,40分钟为74%,50分钟为94%,60分钟为98%。以后实验都以同样流速(5.4升氡/分钟)通过60分钟。

测定系统(测量每分钟计数/已知²²⁶Ra每分钟衰变数)有代表性的整个效率是(71.9±3.1)%,此值为用含有10.18每分钟核衰变的²²⁶Ra水溶液做四次试验和用含有5.09每分钟核衰变的²²⁶Ra水溶液做三次试验的平均值。在引用误差范围之内每个试验结果是吻合的,平均值与上面描述的较小体系一次测定也是一致的,而这个平均值就认为是计数效率。基于这些结果,对取自Saikawa水闸的河水,取自Arima-Gokurakuji, Kobe的温泉水和取自日本海(北纬

38°06',东经137°27')不同深度的三个水样进行了²²⁶Ra的测定。其结果列于表1中。

由于粗劣的计数统计学(50~100分钟平均计数),所以数据准确程度不够。从表1中也可看出,河闸水中²²⁶Ra含量很低,而日本海水中²²⁶Ra含量比其他海洋水中似乎是高得多,但这需要积累更多的数据后才能进一步讨论,特别是对于日本海。

结 束 语

这个方法可使用在船上。使用瓶装氮气或过滤空气作为清扫气体。干冰和酒精作为捕集器冷却剂,干冰和酒精作为冷却剂比液氮便宜。所得结果具有好的重复性,是由于在这个实验中自始至终使用了象Li等人在气体抽出系统中使用了活性炭。此法与广泛使用的将玻璃管浸在液氮中的方法相比或与以前实验中使用的难以解吸氮的分子筛方法相比都大不相同。

(刘建英译 赵惠兰 石玉成审校)

用于剂量估算的环境放射性测定

Nakaoko A 等, Health Phys 38(5): 743~748, 1980(英文)

根据ICRP2号建议书,日本在1974年以法律规定了核电站周围环境中放射性所致的公众剂量不得超过500毫雷姆·年⁻¹。日本原子能委员会(日本AEC)于1975年根据轻水冷却动力堆周围剂量极限制定了全身剂量和甲状腺剂量的基本规定。全身剂量为5毫雷姆·年⁻¹,摄入的放射性碘引起的甲状腺剂量为15毫雷姆·年⁻¹。

本文根据日本AEC剂量规定所对应的放射性水平,叙述了一种估算剂量的方法。基于5毫雷姆·年⁻¹的全身剂量值对应于一定的放射性水平,要估算剂量,首先必需测出与剂量极限值相对应的很低放射性水平。为此,本文对各种环境样品中的每一种放射性核素都确定了必要的探测极限(NDLs)

一、测定环境放射性时的限定条件

1. 全身剂量在内外剂量之间的分配。

日本AEC规定的5毫雷姆·年⁻¹全身剂量值是内、外剂量之总和,并没有分别指明内、外剂量值。本文采用内、外剂量值相等的分配方法,都是2.5毫雷姆·年⁻¹,同时指定甲状腺剂量值为15毫雷姆·年⁻¹。

2. 剂量估算模式。

日本AEC所用的环境辐射剂量估算模式是专门用来估算轻水冷却动力堆周围的辐射剂量的,此模式所介绍的照射途径比较特殊,对于公众剂量的估算而言没有普遍意义。

为了使剂量估算具有普遍意义,我们对日本AEC模式做了一些修改。估算的对象是一般公众,而不是反应堆附近工作的关键组,并强调了直接摄取或吸入样品的重要性。辐射途径如图1,并由此计算了空气、饮水、蔬菜、牛奶和海产品等样品所致的剂量。

将2.5毫雷姆·年⁻¹的内剂量分配给图1所示的各种直接摄取的样品,食物的份额最大。内剂量比为:

$$\begin{aligned} \text{空气:饮水:食物(包括海产品)} &= 1:1:3 \\ &= 0.5\text{毫雷姆}:0.5\text{毫雷姆}:1.5\text{毫雷姆} \end{aligned}$$

由(1)式计算每种环境样品的剂量分配值。以成人计算,空气和饮水均为0.5毫雷姆·年⁻¹,蔬菜、牛奶、鱼、软体动物、甲壳类和海藻各为0.25毫雷姆·年⁻¹,其总和2.5毫雷姆·年⁻¹就是内剂量分配值。婴儿只摄取牛奶,其剂量比为:

$$\text{空气:牛奶} = 1:4 = 0.5\text{毫雷姆}:2.0\text{毫雷姆} \quad (2)$$

从核电站到人的途径中,假定土壤、海水和海底沉积物(见图1)是放射性核素的传递途径,而且放射性