

氡子体监测技术的发展

江西省工业卫生研究所 黎旺生* 综述

中国医学科学院放射医学研究所 王斐华审

一、前言

氡及其子体产物是一种有害的放射性气体,它们不仅存在于铀矿山的坑道和矿山环境的大气中,且在远离矿山的城市广大居民区,它们在空气中的含量也是相当可观的^[1]。如果人体长期吸入这些放射性气体,将可引起肺癌的危险^[2~6]。而且,发现氡的子体产物对人体的危害,又更甚于氡气本身^[6]。

因此,从五十年代初开始,人们就不断地研究各种方法并采用各种技术,对氡及其子体产物进行区域性的或个体的监测。特别因为氡的子体产物比氡的危害更大,所以人们对氡子体产物的监测技术更感兴趣。特别随着核工业的发展和新工艺的推广,氡及其子体产物的测定,在近年具有更重要的现实意义。

本文从五十年代初开始介绍,但着重论述从七十年代起至现在,氡子体监测技术之发展情况。

二、早期的监测技术(1953~1973年)

(一)区域性工作水平的测量

1. 空气采样器和 α 计数器技术

早在1956年, Kusnetz HL就提出了空气中氡子体工作水平(WL)的测量方法。该方法的优点,只要求 α 探测系统必须对RaC'的 α 能量(7.69MeV)起响应,不要求对其它子体的能量。方法的最小灵敏度为0.3WL,但该

法的最大缺点,即从采样开始到结束,还需延迟40分钟才进行计数率的测量。

1969年, Rolle R 发展了Kusnetz法,使完成一次WL测量的时间缩短为20分钟,误差可保持在 $\pm 12\%$ 以下。

2. 瞬时工作水平仪(IWLM)

为能快速测量氡子体工作水平,1968~1969年,美国Geo Con等公司开始研制WL自动测量仪(IWLM)。1972年,美国阿贡国立实验室的Groer对IWLM进行了改进,使测量RaA、RaB和RaC的灵敏度达到0.01WL和1pCi/l。

另外,美国Colorado州立大学的Schager,对IWLM也做了一些不同的改进,使WL的计算误差在 $\pm 10\% \sim \pm 15\%$ 范围内。

(二)区域性单个氡子体浓度测量

1. 空气采样器和 α 计数技术

1953年, Tsivoglou EC首先提出空气中单个氡子体RaA、RaB和RaC浓度的测量方法。由于该法测量的重现性不够理想,Thomas对其进行了改进。改进后,在0.3WL和氡子体为100:30:10的比率下,RaA、RaB和RaC的探测精确度分别达到4%、4%和12%。

1962年,苏联的Марков КИ等提出测量WL和单个RaA浓度的快速潜能法。

为鉴别上述各方法的优劣,苏联的Терен

15, John Wiley and Sons, New York, USA, 1977.

31. Wattenberg LW et al: in "Origins of Human Cancer, Book B, Mechanisms of Carcinogenesis" (Hiatt HH et al, eds.), P. 785, Cold Spring Harbor Laboratory, USA, 1977.

32. Slaga TJ et al: in "Radioprotectors and Anticarcinogens" (Nygaard OF et al, eds.), P. 471, Academic Press, New York, USA, 1983.

※ 已调广东省湛江市外经委

-rben MB等⁽⁷⁾，在规定当量平衡氧条件下，比较它们完成一次测量所耗费的时间，均方根误差 Δ 、灵敏度 C_{minv} 和 $(\sigma_c/c\sqrt{v_c})$ (pCi/分)^{1/2}，结果见表1。

表1 在规定当量平衡氧条件下，比较各测量方法

方法	均方根误差 Δ	$\sigma_c/C\sqrt{v_c}$ (pCi/分) ^{1/2}	(C_{minv}) (pCi/分)	所需时间 (分)
Kusnetz法				
第一种方案	0.053	0.2	0.69	55
第二种方案	0.048	0.144	0.385	60
第三种方案	0.038	0.09	0.184	80
Rolle法	0.102	0.2	0.696	17
Морков法	0.044	0.28	1.32	15
Thomas法	没有	0.6	5.846	35

σ_c —标准差；C—当量平衡氧；v—空气采样率。

第一种方案：采样10分，延迟40分，测量5分

第二种方案：采样10分，延迟40分，测量10分

第三种方案：采样10分，延迟40分，测量30分

2. α 谱技术

α 谱测定法，是另一种常用于测量单个氡子体浓度技术。1969年，Martz DE用该技术测量RaA和RaC'的单个 α 放射性。对RaA和RaC测量结果之标准差分别为8%和14%，比Tsivoglou法的更精确(RaA是29%，RaC是27%)。

〈三〉个体氡子体累积暴露量测量技术

个体氡子体累积暴露量测量技术，能提供精确的个人职业性累积暴露量。在1969~1971年期间，研制的氡子体个体剂量计，详见表2。

在矿山条件下使用上述剂量计会遇到机械碰撞、高湿度、高腐蚀性且探测器和过滤器会

被泥土堵塞、泵损坏等问题。

三、近期的技术发展(1974~1984年)

氡子体近期的监测技术，主要是针对早期技术的不足之处，予以改进，使之更加完善，力求达到方便快捷、准确实用的目的。另外，还出现一些新的能长期连续监测的探测技术。

(一)区域性工作水平测量技术——瞬时工作水平仪(IWLM)的改进

1980年，加拿大的Kawaji M等人⁽¹⁴⁾，用 4π 气体正比计数器代替早期IWLM所使用的固体或闪烁体探测器。使用 4π 气体正比计数器具有如上优点：

1. 既可只对 α 粒子计数，也可简单地改变探测器偏压对 α 和 β 粒子计数。

2. 计数器对 γ 射线相对地不灵敏。因此，在高 γ 水平的铀矿山，对WL的监测，用薄饼型GM计数器能成功地扣除因 γ 本底引起的 β 计数。

3. 计数器的固有计数效率常比其它探测器的高，而且容易提高复盖大滤膜的灵敏面积，以补偿滤膜上低流量的RaC'和必然的短停留及计数的倍数。

4π 气体正比计数器探测装置如图1所示。图中下面的计数器是封锁全部 α 粒子的窗厚 6.8mg/cm^2 的 β 计数器，上面是用于RaA和RaC'两者计数的窗厚为 0.7mg/cm^2 ，或只用于RaC'计数的窗厚为 4.6mg/cm^2 的 α 计数器。计数气体是纯甲烷。

表2 氡子体个体剂量计

文 献	探 测	探测器	位 置		泵的空气 流量(升/分)	测量范围 (WL-小时)	总重量 (公斤)	工作周期 (小时)
	对 象	类 型	泵	探测器				
[10]	氡子体	TLD (LiF)	矿工皮带	矿 帽	0.100	3~1000	0.8	>9
[10] [11]	氡子体	α 径迹蚀蚀	矿 帽	矿 帽	0.021	1~400	0.06	>13
[9]	氡子体	TLD (CaF ₂ : Dy)	矿工皮带	矿 帽	0.100	$0.026 \sim 2 \times 10^5$	0.2	9
[8] [12]	氡子体	TLD (LiF)	矿工皮带	矿 帽	0.170	$0.025 \sim 6 \times 10^6$	0.7	40
[8]	氡子体	α 径迹蚀蚀	矿工皮带	矿工皮带	0.015	4~600	0.3	10
[8] [13]	氦及其子体	α 径迹蚀蚀	—	矿 帽	手动采样	5~100	<0.03	无限

(二)区域性单个氡子体测量技术—— α 谱技术的改进

1. Jonassen NN的改进

为了测量低浓度单个短寿命氡子体,丹麦的Jonassen NN等人^[16]于1974年,使用一种部分耗尽型的灵敏面积是17.5mm半径的面垒探测器作 α 谱仪的计数器。他们把这种探测器安

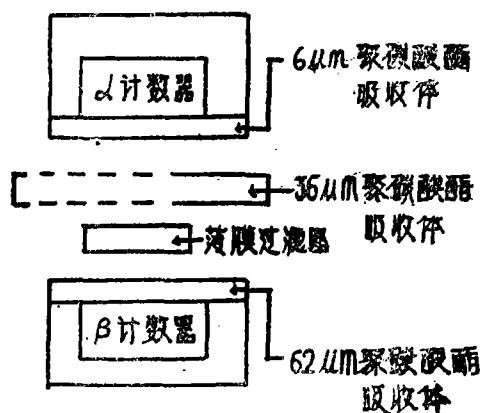


图1 探测器装置示意图

装在几秒钟内能聚集和抽到10mmHg压力的小真空中,在这个压力的保护下,探测器可防止离它只有14.4mm距离的过滤器上的反冲原子之污染。

用这种改进的技术,测量存在放射性平衡低于0.1pCi/秒之低浓度氡子体,其标准差比Martz法(1969年)和Thomas法^[16](1970年)更好。

2. Tremblay RJ的改进

1979年,加拿大的Tremblay RJ等^[17]把Kerr^[18]和Martz测量空气中短寿命氡子体浓度的 α 谱技术,推广到在采样期间和采样结束后,分别测量一个RaA和两个RaC'的总 α 计数。这种推广适于低工作水平的“非老化”(young)空气的监测,而且有效地缩短总的计数加采样时间。

3. Aprilesi G的改进

意大利的Aprilesi G等人^[19]对 α 谱测量氡子体浓度技术的改进,既考虑到前人在采样结束后才测量,使得收集的辐射原子已衰变一部分,而降低了测量的有效数据的数量,影响

结果的精密度;又考虑到氡子体衰变所放出的 α 粒子射程非常短,过厚的采集样品会使一部分 α 粒子不能被探测器所记录,所以致力于获得薄且均匀的粉尘层样品。

而氡的子体产物是用静电沉积器收集。他们使用这种改进了的装置,用20道分析器测量了典型氡子体 α 谱。

(三)连续监测氡子体浓度的测量技术

因为环境大气中氡及其子体产物,随时间的不同,其浓度有很大变化^[20]。如要监测建筑物内、外空气中,一个星期甚至几个星期氡子体的平均暴露量,就必须研制一种时间积分环境氡子体监测器。

1. 美国的Guggenheim SF等人为了适应上述需要,在1979年研制了一种新的时间积分环境氡子体监测器^[21]。这种装置适于建筑物内、外使用,且稳定坚固,有防水气和防尘装置,交、直流电都能使用。

该监测器使用对 α 灵敏的直径为1.7cm的热释光LiF片(3.2 \times 3.2 \times 0.38mm)作探测器;还有一片LiF放在屏蔽 α - β 辐射的与过滤器隔开的小室里,作为控制 γ 外照射用。除辐射状空气进气孔外,过滤器和LiF片是完全密闭的。

对于0.0005WL那样低的平均浓度,该装置可在一个星期内测出结果。而该装置的自动工作在平均周期可维持3~6个月。

为补偿高 γ 本底时的灵敏度损失,他们提出两种办法,即提高空气的采样流量率和使用更灵敏的荧光物质CaSO₄:Dy或CaF₂:Dy作探测器。

2. 为解决氡子体连续工作水平监测器中,氡子体在滤膜外的沉积和滤膜对氡子体的吸收问题,1981年,加拿大的Kawaji M等人^[22]研制了一种测量总滤膜活性的连续工作水平监测器。

连续工作水平监测器由滤膜采样器和能连续监测滤膜上累积活性的 α 和 β 计数器组成。它使用小空气泵固定时间周期连续采样,每次采样结束后,定标器记录累积活性计数,然后

用理论上推导的换算系数把活性计数换成WL。

为解决氡子体在滤膜外的沉积,他们使过滤器的空气入口完全敞开,而且使过滤器表面与探测器距离为3mm,这样问题就可解决了。虽然此时 α 计数效率降到20%,但对气体正比计数器和合适的光屏蔽闪烁计数器来说,也是足够合适的。

关于自吸收的影响,他们用薄膜过滤器代替玻璃纤维过滤器。在矿山,因粉尘浓度高,仍需用玻璃纤维过滤器。

为检验连续工作水平监测器的准确度,把该仪器和改进的自动Tsivoglou WL仪同时采样,所得结果非常相似。

3. 氡及其子体同时监测的TL仪的改进

径迹刻蚀胶片和TL剂量计,通常被用作 α 探测器。在胶片中,其径迹密度虽然比例于 α 粒子的数目,但相对于大范围的氡子体平衡系数,以工作水平为单位的氡子体暴露量,那是不够精确的(可用对 γ 和 β 线不灵敏的径迹探测器来补偿)。另外,TL剂量计虽然比例于短寿命的氡子体 α 能量,但对其它类型的放射性会失真。

为大规模研究和监测空气中的氡及其子体产物,必需有便宜、简单和可靠的积分类型的仪器。这样,对 α 粒子高响应、高发光量和低本底特性的测量氡浓度和WL的探测器便应运而生。

1984年,波兰的Niewiadomski T等^[23]在前人的基础上,把TL仪向前发展了。他们研制了三种都用 $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 特氟隆园片作探测器的仪器。

(1)根据Heischer RL^[24]和Urban^[25]提出的一个小散射室的径迹探测器,选择TLD和附加另一个悬浮粒子可以贯穿的体积,制造了能同时测量高浓度氡及其子体产物的SPR-1型仪器。仪器的上体积(150cm^3),其TL响应比例于平均氡浓度;其下体积相对于所有辐射核素的 α 浓度。该仪器的灵敏度为 3×10^{-4} 计数 $\text{M}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ 。

(2)根据电性极化的原理,利用探测器装置和室壁间电势(探测器装置被负极化到18伏)加强对氡和子体产物产生的 α 粒子的记录,而研制出SPR-2型仪器。该仪器对氡及其子体的响应是SPR-1型的4倍。

(3)研制的第三种仪器是高灵敏的有源-无源RWLM-82型仪器。该仪器的金属园柱由两部分组成:上部类似于George^[26]改进的用静电收集RaA离子的3升散射室(它所需的高压电源位于圆柱下部),且把McCurdy^[28]发展了的原理工作的有源WL仪结合在一起。

它对氡和WL的灵敏度分别为 0.1 计数 $\cdot \text{M}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ 和 100 计数 $\text{WL}^{-1} \cdot \text{L}^{-1}$ 。即是对10升/小时空气流量率,平衡系数为 $F = 0.3$ 的 $30 \text{Bq} \cdot \text{M}^{-3}$ 之氡浓度,只需24小时就能给出累积暴露量之清晰的TL讯号。

(四) 氡子体个体累积剂量计的发展

氡子体个体剂量计,是氡子体监测技术中发展最快的一种。因为它能提供具体个人的氡子体累积暴露量,这样对估算呼吸系统累积辐射剂量,更准确可靠。

1. Gammage RB的改进

1976年,美国橡树岭国立实验室的Gammage RB等人^[27],用陶瓷氧化铍(BeO)代替热释光剂量计(TLD)和 α 径迹刻蚀探测器,作个体无源氡子体剂量计(即不用泵的剂量计)。由于 BeO 被照射后,当受热激发时,其薄层表面会放出外激电子(TSEE)。特别对探测能量完全终止在其表面的核粒子,其探测效率相当高。

使用陶瓷 BeO 的TSEE剂量计,比TLD探测器有更多的优越性。首先,TL(热释光)和TSEE一样,可用同一剂量计读数,但TSEE比TL对 α 粒子的灵敏度更高。且TSEE经校正后便直接得到氡子体的工作水平,而光子辐照的平均本底值可由TL讯号估算。

另外,TSEE同 α 径迹刻蚀探测器比较,其读数过程更简便,并能重复使用。不过,在铀矿井下使用 BeO ,其表面需要进行屏蔽,因为坑道空气充满大量灰尘,且空气湿度很高。

2. Durkin J的电子氡子体剂量计

1979年,美国的Durkin J^[28]研制一种电子氡子体剂量计。

这种剂量计由固体探测器、电子线路和个体空气采样泵组成。过滤器采样头和空气泵都悬挂在矿工的工作皮带上,泵和过滤器用0.32 cm直径塑料管连接。过滤器头有直径为0.16 cm等距离的18个进气孔。采样流量率恒定为100cm³/分,样品收集在0.8μ小孔直径为13mm滤膜上。

通过比较,该剂量计测量结果与Kusnetz法标准测量结果非常一致。

3. Domanski T的研究

波兰的Domanski T等^[29]用研制的三醋酸酯纤维素胶片的无源径迹探测器,于1981年在两个铅锌矿和一个铜矿测量氡及其子体的暴露量。二年的研究表明,这种无源径迹探测器可代替区域的一般空气采样法,估算矿工氡及其子体的职业辐射危害。

1982年,Domanski T等^[30]更进一步将三醋酸酯纤维素胶片,研制成含散射阻挡层的无源微分径迹探测器,确定空气中氡及其子体的平衡度F值。

该装置由两张探测胶片组成。其中一张封闭在有散射阻挡层氡能渗入的小室里,但该室抑制氡的子体产物进入。其工作原理如下:微分装置的第一个探测器,通常是简单的无源径迹探测器,它不屏蔽,对氡及其子体均起反应;第二个探测器,用散射阻挡层屏蔽(如图2所示)。散射阻挡层用Whatman GF82玻璃

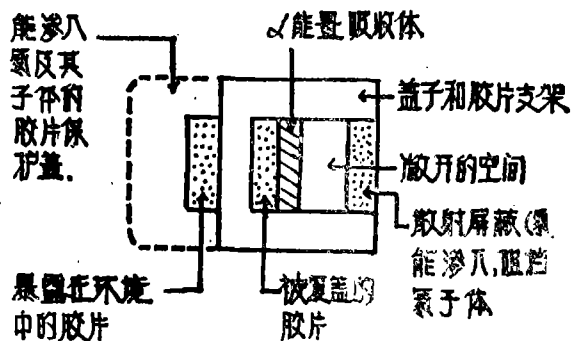


图2 无源微分径迹探测器装置

纤维过滤器。探测胶片是Kodak LR-115(Ⅱ型)。

4. 介电体剂量计

1983年,印度的Kotrappa P等^[31]根据介电体能浓集空气电离后产生的离子对之特性,把定量测量γ射线的介电体剂量计,改为能对空气采样滤纸测量氡/氡子体α潜能浓度的介电体剂量计。它具有如下优点:

(1)探测灵敏度可通过改变介电体厚度来控制;(2)介电体上的电荷,在饱和湿度和60℃温度条件下,能保持2年之久。因此适于高温、高温的井下作业;(3)价格低廉等。

这种剂量计的灵敏度可达1mWL潜能浓度。

5. 适合个体和环境监测的氡/氡子体剂量计

使用扩散结探测器和静电收集器的无源氡子体剂量计,既适合个体也适合于环境的监测,这种剂量计是加拿大的Bigu J在1983年设计的^[32],如图3所示。

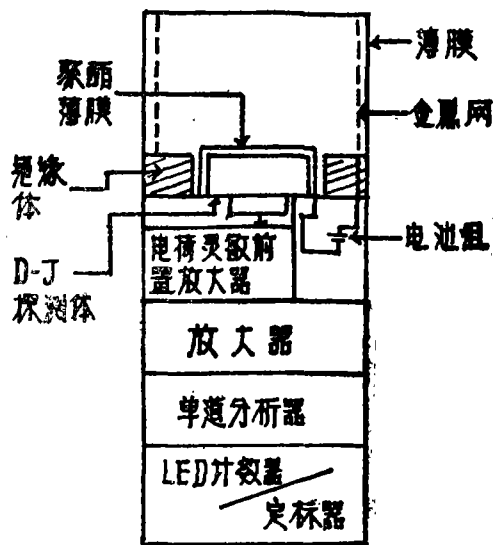


图3 个体无源因体α剂量计

静电收集器由圆柱状金属丝网组成。扩散结硅α探测器用薄铝聚酯薄膜片复盖。金属丝网和铝聚酯薄膜片之间,供给一直流电压,使后者对金属丝网保持负电位。

剂量计工作程序如图3所示,最后由LED

计数器/定标器读出 α 计数和采样时间。

该剂量计具有 α 能谱仪的本领, 仪器出来的讯号, 可直接送到多道分析器作能谱分析。如用最小的采样头(17cm³), 剂量计每天读数灵敏度约为 1×10^{-2} WL。

四、展 望

从上面的论述可知, 在国外, 对氡子体监测技术的研究非常活跃, 且新的监测技术不断涌现。

但就氡子体监测技术今后的发展而言, 务必根据包括长期可靠性几种因素: 即最初的投资要少, 日常维修、操作、数据处理和回收要容易; 仪器要轻巧、牢固、携带方便; 在恶劣环境条件下(高湿、高温、高粉尘浓度)能准确快速测量; 区域性监测能同时测量氡及其子体浓度, 而个体剂量计则应对氡及氡子体都灵敏等。

参考文献

1. Stranden E et al:Health phys 36:413, 1979.
2. Stranden E:Health phys 38:301, 1980.
3. Mcpherson RB:Health Phys 39:926, 1980.
4. Cohen BL:Health Phys 39:937, 1980.
5. Flescher RL et al:Health Phys 39:957, 1980.
6. Harley JH:Health Phys 38:1067, 1980.
7. Терентьев МВ и Крисюк ЭМ:Атом Энер 55:310, 1983.
8. O.White, JR., Report HASL TM 69-23A, P.26, Available from USAEC Health and Safety Laboratory, 376 Hudson Street, New York 1969.
9. O.White, JR., Report HASL TM 70-3, p. 34, Available from USAEC Health and Safety Laboratory, 376 Hudson Street,

New York 1970.

10. O.White, JR., Report HASL TM 71-17, p.15, Available from USAEC Health and Safety Laboratory, 376 Hudson Street, New York 1971.
11. Auxier JA et al:Health Phys 21:126,1971.
12. McCurdy DE et al:Health Phys 17:415, 1969.
13. Lovett DB:Health Phys 16:612, 1969.
14. Kawaji M et al:Health Phys 39:651,1980.
15. Jonassen N et al:Health Phys 26:104,1974.
16. Thomas JW:Health Phys 26:691, 1970.
17. Tremblay RJ et al:Health Phys 36:401, 1979.
18. Kerr GD,Oak Ridge ORNL-TM-4927 1975.
19. Aprilesi G et al:Nucl Instrum Methods 148:187, 1978.
20. Stranden E et al:Health Phys 36:413,1979.
21. Guggenheim SF et al:Health Phys 36:452, 1979.
22. Kawaji M et al:Health Phys 40:543, 1981.
23. Niewiadomski T et al:Radiat Prot Dosim 6:67, 1984.
24. Fleischer RL et al:Health Phys 39:957, 1980.
25. Urban M et al:Radiat Prot Dosim 1:97, 1981.
26. George AC:A Passive Environmental Radon Monitor,HASL 325, 25, 1977.
27. Gammage RB et al:Health Phys 30:145, 1976.
28. Durkin J:Health Phys 37:757, 1979.
29. Domanski T et al:Health Phys 40:211,1981.
30. Domanaki T et al:Radiat Prot Dosim 2: 27, 1982.
31. Kotrappa p et al:Radiat Prot Dosim 5:49, 1983.
32. Bigu J:Radiat prot Dosim 5:171, 1983.