

低本底测量系统测定水中的放射性

谭汉云

中图分类号: TL81 文献标识码: B 文章编号: 1004—714X(2005)01—0045—02

【摘要】 目的 探讨了影响测量结果的试验条件及变化规律, 分析水中矿化度与其放射性的相关性。方法 使用 IN20 低本底测量装置, 对标准源的选择、取水量、测量时间及残渣放置时间、矿化度等进行试验分析。结果 使用本测量系统, 标准源选为²³⁹Pu、取水量至少 2 L、测量时间为 6 h 为宜, 水库水残渣放置 3 d 后, 总α、总β 读数稳定, 水中矿化度与放射性成正比关系。结论 使用上述条件进行水中的放射性测量, 结果满意。

【关键词】 总α; 总β; 放射性; 水

随着核科学在能源、工业和医学方面的应用, 放射性核素对环境的污染也逐渐增多, 为评价放射性造成的危害, 对饮用水中放射性的准确测定, 定期对水质质量进行监测显得尤其重要。我们从 1989 年开始对出厂水、管网水和水源水中总α、总β 放射性进行监测, 到 2001 年 6 月参照《生活饮用水卫生规范》^[1] 测量水中总α、总β, 下面对影响测量结果的几个试验条件进行分析。

1 仪器和试剂

IN20 低本底测量装置(法国), 高温炉, 电热板, 红外线干燥灯, ²³⁹Pu(中国计量科学研究院), 乙醇丙酮混合液: 按 1:1(V/V) 配制, 氯化钾(国家标准物质研究中心)。

2 样品处理及测量

作者单位: 广州市疾病预防控制中心, 广东 广州 510080
作者简介: 谭汉云(1964~), 女, 广东新会人, 副主任技师, 从事卫生检验检测工作。

试现场。根据表 2 所列储源状态下的辐射水平, 应选用面包车或小货车装运, 汽车司机及伴随人员要距核仪表至少 1.5 m 以上。

短途搬运指在测试现场从一个测点转移至另一个测点的过程。一般在施工现场(如公路建设)要测多个点, 如每隔 50 m 就要测一个点。可连续测 10 个点。对这种短途转运不宜直接手提核仪表搬运, 因搬运者躯干距核仪表仅 20~30 cm, 受照剂量较大, 应采用专用短运工具。为此, 我们研制了一种专用防护车。该车车身长 90 cm, 宽 50 cm, 推车把手臂长 40 cm, 底盘之上的远端固定一个盛放核仪表的防护箱, 防护箱内径长 45 cm, 宽 35 cm, 三面高 20 cm, 朝向把手的一面高 40 cm, 由防中子材料含硼石墨板和屏蔽γ 射线的铅板制成。防护箱之前端, 另设一个长 45 cm, 宽 20 cm 的小工具箱, 存放打孔用的导板、钻钎和锤子。防护车底盘之下安装 4 个万向轮。使用这种防护车一是使受照距离从 30 cm 之内延长至 100 cm 以上; 二是增加了对中子与γ 射线的屏蔽防护, 这两项措施可使搬运人员的受照剂量减少 82.6%~98.1%(详见表 3)。

4.3 核仪表测量 在测量前用导板和钻钎准备测孔时, 要将核仪表移至 3 m 之外。将γ 源金属杆放入测孔以及按键盘和观察显示器读数时, 操作者要尽可能使身体躯干部位、眼睛和甲状腺远离仪表放射源, 而且动作要准确、迅速, 尽量缩短照射时间。

5 讨论

5.1 自主防护措施 MC-3 型核子湿度密度仪是一种自动化程度较高的核仪表, 应用比较广泛而方便。但由于它装有γ 源和中子源, 又是在野外现场测试, 故在测量时难以采用封闭性

2.1 样品处理 取 2 L 已酸化的水样(每 1 L 水样加 20 ml 硝酸)分次加入 2 000 ml 烧杯中, 使水样体积不超过烧杯容积的一半, 在可调温电热板上加热, 蒸发浓缩至 50 ml, 冷却。将浓缩液转入已预先在 350℃ 下恒重的瓷蒸发皿, 用少量水分次洗涤烧杯, 洗涤液并入瓷蒸发皿, 置于红外灯下小心加热、蒸干。将蒸发皿连同残渣放入高温炉, 350℃ 灰化 1 h, 取出放入干燥器中冷却至室温。

2.2 样品源的制备 准确称量固体残渣质量后, 用研钵将固体残渣研细, 用数滴丙酮把残渣粉末和成泥, 用压样器将固体粉末铺设均匀、平整。在红外灯下烘干, 之后放入干燥器中冷却, 再准确称取测量灰样 0.0706 g 放入已称量的样品盘中。

2.3 测量 将样品盘放在预先用α、β 标准源刻度过并测定了本底的 IN20 低本底测量装置中进行测量。

3 结果和讨论

3.1 标准源的选择 水中所含有的α、β 放射性核素很多, 我

表 3 MC-3C 型核子湿度密度仪短途搬运防护车防护效果¹⁾

		相当于操作者身体主要部位 剂量当量率(μSv·h ⁻¹)				
		头部	胸部	腹部	手	下肢
中子 剂量	手提搬运	1.07	1.4	2.04	5.7	5.7
	采用防护车	0.01	0.34	0.13	0.13	0.01
	防护效率 ²⁾ (%)	99.1	75.7	93.6	97.7	99.8
γ 剂量	手提搬运	1.2	2.5	4.0	6.3	12.6
	采用防护车	0.34	0.34	0.4	0.34	0.34
	防护效率(%)	71.7	86.4	90.0	94.6	97.3
中子 γ 总 剂量	手提搬运	2.27	3.9	6.04	12	18.3
	采用防护车	0.35	0.68	0.53	0.47	0.35
	防护效率(%)	84.6	82.6	91.2	96.1	98.1

注: 1) 测试仪器: 美国 451P 型 XY 巡测仪和美国 190N 型中子测量仪, 测试数据由山东省疾控中心辐射防护安全所提供; 2) 防护效率系指采用防护车后与手提搬运相比剂量减少的百分数。
较好的屏蔽防护, 只能采用时间防护和距离防护这两种由操作者自身决定的自主防护措施, 即操作者有意识尽可能远离放射源, 缩短操作时间, 以降低受照剂量。为此, 操作者就必须接受测量技术与防护知识的培训, 做到熟练掌握测量技术, 增强防护意识, 有较高的安全文化素养。

5.2 防中子材料 对中子的屏蔽防护, 我们试用含硼石墨代替含硼石蜡或聚乙烯, 同样可达到防护要求, 而且易于加工制作。

们所测量的是含有 α 或 β 放射性各种核素放射性活度的总和。而测量中所使用单一核素的放射性标准源, 不可能完全模拟样品残渣中通常是多数放射性核素的构成, 因此标准源的选择尤为重要。

测量水样中总 β 放射性时, 由于水中 β 放射性主要来源于 ^{40}K 。 ^{40}K 的 β 粒子的平均能量是 0.562 MeV 与 ^{90}Sr — ^{90}Y 平衡体的平均能量相近, 因此一般选用 ^{40}K 作为测定水中总 β 放射性标准源。 试验选用国家标准物质中心的优级纯 KCl。

测量水样中总 α 放射性时, 可用电镀源、天然铀标准溶液、 ^{241}Am 、 ^{239}Pu 、天然铀标准物质粉末作为标准源, 由于测量总 α 、总 β 的 IN20 低本底系统属流气式装置, 本方法选用中国计量科学研究所的 ^{239}Pu 作为测量水中总 α 放射性的标准源。

3.2 取水样量 按能产生固体残渣量 10~30 Amg(A 为样品盘面积, cm^2) 的确定体积水样, 本方法所用的样品盘面积 $A=3.14\times 1.4\text{ cm}^2=6.154\text{ cm}^2$ 。 即水样蒸干后残渣总量应大于 $10\times 6.154=61.54\text{ mg}$ 。 广州市 1 L 自来水残渣在 0.1 g 以上, 因此取水量至少 1 L。 条件允许的情况下(时间、水样量等), 应尽量多蒸一些水样, 能够减少称量残渣带来的误差, 我们实验选用取水量为 2 L。

3.3 水样加酸固定 若水样立即分析可不加酸, 直接取样蒸发浓缩处理测定, 若不能马上分析, 需每升水样加入 20 ml 硝酸, 使 $\text{pH}<2$, 减少放射性物质被器壁吸附造成的损失。

3.4 硫酸盐化 某些水样在蒸干和灼烧后, 可能产生不适合作放射性测量的残渣, 因为吸水潮解或难于粉碎或难于铺样。 对这种样品作硫酸盐化处理是合适的办法, 1 ml 浓硫酸足够使 1.8 g 碳酸钙硫酸盐化, 具体操作如下: 2 L 水样浓缩蒸至约 50 ml 时, 取出冷却至室温, 加入 1 ml 浓硫酸, 继续蒸发至近干, 然后置于恒重的瓷蒸发皿中, 继续在红外灯下蒸发至硫酸冒烟完毕。

大量试验表明, 广州市有 95% 的水可省略硫酸盐化这一步骤。

3.5 样品源制备的优化 理论计算残渣总量应大于 61.5 mg。 因为源严重影响 α 、 β 粒子的计数效率, 所以制作均匀平整的测量源至关重要, 我们用数滴已醇丙酮混合液把残渣粉末和成泥, 也可用数滴丙烯酸树脂溶液(溶解 50 mg 纯净的丙烯酸树脂于 100 ml 丙酮中)代替, 铺匀后再烘干测量, 试验发现如此操作样品易均匀且样品的粘牢性较强。 样品源要放在干燥器内保存, 否则样品容易吸湿, 吸湿后将增大源的自吸收, 导致计数率显著降低。

3.6 测量时间 测量时间的长短取决于样品和本底的计数率, 以及所要求的精度。 对于本台测量装置, α 放射性活度测量时, 本底计数率 $N_0=0.000\ 17\ \text{s}^{-1}$, 样品净记数率 N 在 $0.002\ 5\ \text{s}^{-1}$ 左右, 样品加本底测量计数率 $N_1=0.000\ 17+0.002\ 5=0.002\ 67\ \text{s}^{-1}$ 左右。 要求控制的相对标准差设定为 $E=\pm 15\%$, 测量时间为 T , 本底测量时间 T_0 。

由 $E=\frac{1}{N}(\frac{N_0}{T_0}+\frac{N_1}{T_1})^{1/2}$
得出 $T=\frac{2N_0+N}{(E\cdot N)^2}$
所以总 α 放射性活度测量时间应不少于:
 $T=\frac{2\times 0.000\ 17+0.002\ 5}{(0.15\times 0.002\ 5)^2}=20\ 196(\text{s})=5.6(\text{h})$
对于 β 放射性活度测量时, $N_0=0.008\ 3$, N_1 在 0.025 左右, 计数统计涨落误差 $E=\pm 15\%$, 此时测定时间应不小于:
 $T=\frac{2\times 0.008\ 3+0.025}{(0.025\times 0.15)^2}=4\ 735(\text{s})=1.32(\text{h})$
因为本法可同时测定 α 、 β , 所以我们应该按照测定 α 的时

间, 将测量时间定为 6 h。
3.8 残渣放置时间的影响 实验中发现, 某些水样制样完毕后需放置 3 d 后, 再测定计数才能稳定, 以下为某一水库水的计数情况, 取水样为 2 L, 制样完毕后马上计数(每次计数 10 800 s, 共 20 次)结果见表 1。

表 1 水样计数结果(cpm)

次数	总 α	总 β	次数	总 α	总 β
1	1 746	6 372	11	181	970
2	1 233	4 609	12	159	784
3	961	3 786	13	131	798
4	726	3 072	14	95	611
5	639	2 482	15	80	585
6	531	2 109	16	74	525
7	403	1 716	17	50	465
8	317	1 469	18	44	449
9	243	1 234	19	38	379
10	219	1 073	20	32	350

出现这种情况, 我们认为可能是样品中氡含量高, 在制样时, 氡作为气体挥发了, 而氡、钍的子体不易挥发, 其半衰期有的很短, 在 3 d 后约剩 10%, 因此我们在实验中为了消除半衰期很短的放射性核素的影响, 在制样后将样品源置于干燥器中, 放置 3 d 后再测量。

3.9 水样分析 我们对广州市生活饮用水中总 α 、 β 放射性定期检测, 表 2 是部分检测结果。 由表 2 可看出随着矿化度的增大, 放射性也有增大的趋势。 但是都低于《生活饮用水卫生规范》^[1] 的要求(总 $\alpha<5.0\text{ Bq/L}$, 总 $\beta<1.0\text{ Bq/L}$)。

表 2 出厂水及水源水的部分检测结果

编号	矿化度(mg/L)	总 $\alpha(\text{Bq/L})$	总 $\beta(\text{Bq/L})$
1	306	0.03	0.20
2	338	0.02	0.16
3	404	0.03	0.28
4	464	0.04	0.42
5	676	0.04	0.35
6	730	0.04	0.70
7	744	0.07	0.62

4 讨论

水样浓缩过程中, 我们用远红外制样炉控制温度在 90~95 $^{\circ}\text{C}$, 避免了因温度过高而爆沸造成的水样损失比直接在电炉上浓缩要好。

条件允许时, 尽量多蒸一些水样, 能够减少称量带来的误差。

制备样品源时, 为了把残渣均匀平坦地铺在样品盘上, 我们采用 1:1 无水已醇丙酮数滴, 把残渣粉末和成泥, 铺匀后再烘干测量。 试验发现, 样品易均且样品的粘牢性较强。

用 KCl 作 β 标准源, 由于 KCl 本身有吸潮性, 将给制样和测量带来困难, 我们采用烘干、测量, 再烘干、测量的方法, 避免了样品中的湿度对测量结果造成的误差。

开机后最初 0.5 h 为预热时间, 不进行测量工作, 若室内湿度较大, 则预热时间相应延长。

参考文献:
[1] 卫法监发[2001]第 161 号, 生活饮用水卫生规范[S].
(收稿日期: 2004-06-22)