

在线环境氡浓度测量的离子脉冲电离室研制

邱天力^{1,2} 李 蒙^{1,2} 魏向伦¹ 杨贺润¹ 马 朋¹ 鲁辰桂¹ 段利敏¹

胡荣江¹ 何周波^{1,2} 梁珺成³ 张 明³

1(中国科学院近代物理研究所 兰州 730000)

2(中国科学院大学 北京 100049)

3(中国计量科学研究院 北京 100013)

摘要 氡(Rn)及其子体对人体呼吸器官有严重危害,为避免有害辐射,需准确测量环境空气中的氡浓度。氡及其子体衰变放出的 α 粒子能将空气分子电离,据此研发了一套基于离子脉冲电离室的探测器系统,实现对单个辐射粒子的信息记录和空气中的浓度准确测量。该探测器通过双屏蔽结构来有效抑制噪声,并采用离子脉冲收集方式,通过示波器波形采样来获取数据。探测器的工作电压区间为 $-400 \sim -1\,200\text{ V}$,对 ^{241}Am 衰变产生的 α 粒子的能量分辨半峰全宽(Full Width at Half Maximum, FWHM)达到了17%,并在不同地点对空气中的氡含量进行了测量,得到有效信号和计数。测量结果表明:该地点符合GB/T 50325-2020对室内氡浓度的规定。

关键词 氡, 在线测量, 离子脉冲电离室, 计数, α 粒子

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.040403

Ion pulse ionization chamber for online measurements of the radon activity concentration

QIU Tianli^{1,2} LI Meng^{1,2} WEI Xianglun¹ YANG Herun¹ MA Peng¹ LU Chengui¹

DUAN Limin¹ HU Rongjiang¹ HE Zhoubo^{1,2} LIANG Juncheng³ ZHANG Ming³

1(Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China)

2(University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

3(National Institute of Metrology, Beijing 100013, China)

Abstract [Background] Radon and its daughters are seriously harmful to human respiratory organs. [Purpose] This study aims to accurately measure the concentration of radon in ambient air by ion pulse ionization chamber for online measurements. [Methods] Based on the principle that alpha rays emitted by radon and its daughters ionize air molecules, a detection system based on ion pulse ionization chamber was developed to record the information of single radioactive particles and accurately measure the concentration in the air. Double shielding structure to adopted to suppress the noise effectively for the detector, and ionized data was obtained by ion pulse collection and oscilloscope waveform sampling. The radon content in the air was measured in different locations, and the effective signals and counts were obtained. [Results & Conclusions] The measurement results show that the full width at half maximum (FWHM) of the ^{241}Am alpha particle energy resolution is 17% under the detector's working voltage

国家自然科学基金面上项目(No.11875302)、基金委联合重点(No.U1867214)、自然基金联合项目(No.U1832105)、自然科学基金面上项目(No.11875301)和自然基金联合项目(No.U1832167)资助

第一作者: 邱天力, 男, 1995年出生, 2018年毕业于西南科技大学, 现为博士研究生, 研究领域核技术及应用

通信作者: 杨贺润, E-mail: yanghr@impcas.ac.cn

收稿日期: 2020-10-20, 修回日期: 2020-12-31

Supported by State Natural Science Fund Project (No.11875302), Research Fund Committee Joint Focus (No.U1867214), Nature Fund Joint Project (No.U1832105), State Natural Science Fund Project (No.11875301), and Nature Fund Joint Project (No.U1832167)

First author: QIU Tianli, male, born in 1995, graduated from Southwest University of Science and Technology in 2018, doctoral student, focusing on nuclear technology and applications

Corresponding author: YANG Herun, E-mail: yanghr@impcas.ac.cn

Received date: 2020-10-20, revised date: 2020-12-31

range of -400 to $-1\ 200$ V. The radon concentrations in the air measured at two campus sites in Lanzhou city are (22.05 ± 0.86) Bq·m $^{-3}$ and (20.31 ± 0.84) Bq·m $^{-3}$, respectively, that conform to the provisions of GB/T 50325-2020 on indoor radon concentration.

Key words Radon, Online measurement, Ion pulse ionization chamber, Counts, α particle

氡(Rn)是天然放射性衰变系列中对人体非常有害的气态放射性核素^[1]。氡及其衰变子体是人类天然辐射的主要来源之一,是肺癌的第二大诱因^[2]。相关研究表明,氡及其子体与环境PM2.5呈正相关关系^[3]。因此,考虑到所涉社会影响的程度,测量空气中的氡及其子体的放射性已变得至关重要。

目前,空气中测氡的常规探测器主要有闪烁探测器、半导体探测器和电离室探测器^[4]。但大多数探测系统属于离线测量,不仅不能及时给出数据,而且部分探测器容易受到氡衰变子体的污染,导致测量结果不准确^[5]。相对于闪烁探测器和半导体探测器,电离室探测器造价相对比较便宜,不易收到样品污染,并且可以直接收集空气样品进行离线测量,也可以使空气连续流过探测器实现在线测量^[6],在线测量模式下,根据探测器在不同测量周期的校准因子与 ^{218}Po 衰变产生的 α 粒子数成反比的原理,可用于快速确定该探测器的校准系数^[7]。因此结合电离室探测器的优点,近代物理研究所气体组研制了一套可以在线实时监测环境氡浓度的离子脉冲电离室的探测器系统。该探测器是利用氡及其子体衰变放出 α 粒子能使空气分子电离的特性以及能对气体中离子脉冲有效收集的空气脉冲电离室系统,作为一套环境剂量的探测系统,该探测器还可作为低计数率 α 实验的在线监测谱仪。

1 离子脉冲电离室结构设计

离子脉冲电离室测量氡的原理:氡衰变发射出的 α 粒子对空气电离形成大量电子-离子对,在空气中一部分电子被负电性气体(O_2)吸附^[8],形成负离子,而电离室两极间的灵敏体积内构建了足够强的电场来避免电子、负离子和正离子复合的发生,电子、负离子和正离子在电场作用下产生定向漂移,从而在回路中输出相应信号。在常压、环境空气工作条件下,为避免负电性气体对电离室内部电离产生电子的吸附效应而降低探测效率和灵敏度的影响,该探测器采用离子收集方式^[9],即对内部电离产生的离子进行充分收集获得信号,实现对环境空气中氡浓度的精确测量。

为了提高探测效率和灵敏度,采用圆柱型结构的离子脉冲电离室如图1所示,主要由两层不锈钢屏蔽层^[10]和电离室灵敏区域组成。内外不锈钢屏蔽

腔体直接利用尼龙螺柱连接,其不仅起到减震作用,还可以使内外桶绝缘,避免了外界漏电流对探测器性能的影响,同时两层不锈钢屏蔽层为电离室增加自重来减小环境振动对探测器的干扰。电离室的尺寸需要满足 α 粒子的射程要求才能保证 α 粒子的能量能完全沉积在电离室的灵敏体积中。考虑到环境中氡以及子体衰变 α 粒子的射程和探测器的探测效率,另外还考虑到这种电离室结构的灵敏体积越大,其体电容越大,而探测器的体电容直接与噪声直接相关。所以最终设计电离室的灵敏面积为 $\varnothing 280\text{ mm} \times 220\text{ mm}$,体积达到了13.25 L。图1(a)为其纵向截面示意图(由不锈钢屏蔽层、电极丝、环氧板和尼龙螺柱组成),包括电离室的两层不锈钢屏蔽和灵敏区域。图1(b)是由电极丝和三层环氧树脂板制成的圆柱型电离室的灵敏区域。探测器的俯视图如图1(c)所示,展现了电极丝的分布情况,为得到更均匀的电场分布,采用双阿基米德螺旋线^[11]的形状排列,分别为高电压极(High Voltage, HV)和信号收集极(Signal),并且电极丝采用了直径为1 mm的镀金铍-铜合金丝,丝间距为1 cm。

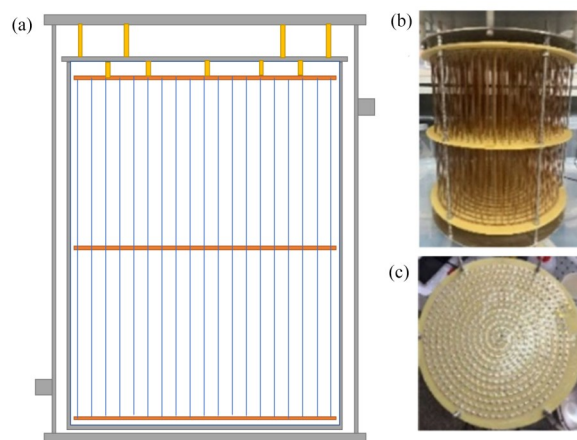


图1 脉冲电离室结构
(a) 电离室纵向截面, (b) 探测器内部结构, (c) PCB上的电极分布
Fig.1 Schematic diagram of pulse ionization chamber structure
(a) Longitudinal section of ionization chamber, (b) Internal structure of detector, (c) Electrode distribution on PCB

2 实验

离子脉冲电离室主要对内部电离产生的离子进行充分收集获得十分微弱的电流信号^[12]。在气体介

质中,离子在电场中迁移率比电子低2~3个数量级^[13],输出脉冲宽度1~10 ms。对于离子脉冲电离室能谱测试中,每个单独脉冲的脉冲幅度都载有入射粒子(α 粒子)能量信息,探测器的输出信号幅度与入射粒子在探测器中产生的电荷量有关^[14]。基于传统电子学无法获取和处理毫秒量级的电流脉冲信号,最终选择基于示波器波形采样技术来获取脉冲电离室的信号信息。

2.1 测量系统

测量系统主要由脉冲电离室、信号放大器、获取系统构成,如图2所示。 α 粒子入射在电离室的灵敏体积内,并电离空气形成离子,探测器输出的信号经低噪声电流灵敏放大器放大后分成两路信号:一路输入到获取系统中,通过甄别判选插件(CF8000)进行信号筛选,然后定标器(CAEN N1145)记录并给出单位时间内的计数,同时另外一路输入到示波器获取波形信息。

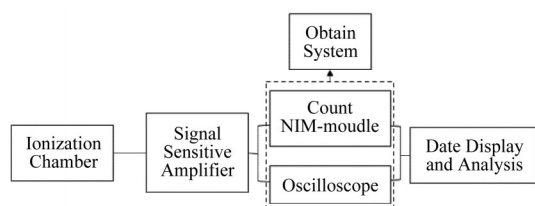


图2 脉冲电离室测量系统

Fig.2 Measurement system of pulse ionization chamber

2.2 离子脉冲电离室测试

离子脉冲电离室的性能指标是衡量脉冲电离室性能优劣的重要依据。对脉冲电离室的性能指标测试,主要包括电离室计数率坪特性曲线、饱和特性曲线、能量分辨率以及环境氡浓度的在线测试。

将 ^{241}Am 源放置于电离室内壁处,电离脉冲探测器测量的是低计数率条件下的工作状态,因此源上放置 $\varnothing 0.3\text{ mm}$ 准直孔来降低源的发射事例数。由于空气中的氡及其子体(^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Po 、 ^{210}Po)半衰期分别为3.823 d、26.8 min、164.3 μs 、138.4 d^[14],为减小本底干扰,将电离室的腔体封闭7 d以上后才进行性能测试。测试环境条件为空气介质,气压84.5 kPa,温度21 $^{\circ}\text{C}$,湿度10%。按照100 V的电压梯度变化测试脉冲电离室的计数率坪曲线和饱和特性曲线。对于脉冲电离室能谱测试,在上述实验条件下,选择-600 V高压对离子脉冲电离室的输出波形信息进行采样和分析。使用离子脉冲电离室在开放模式下对不同的地点进行了计数测量。

3 测试结果和分析

离子脉冲电离室的输出信号经过放大器后的示波器上显示的波形和示波器采样后的信号如图3所示,信号脉冲宽度约为4 ms,信号的噪声本底约为50 mV,信号幅度约为500 mV。

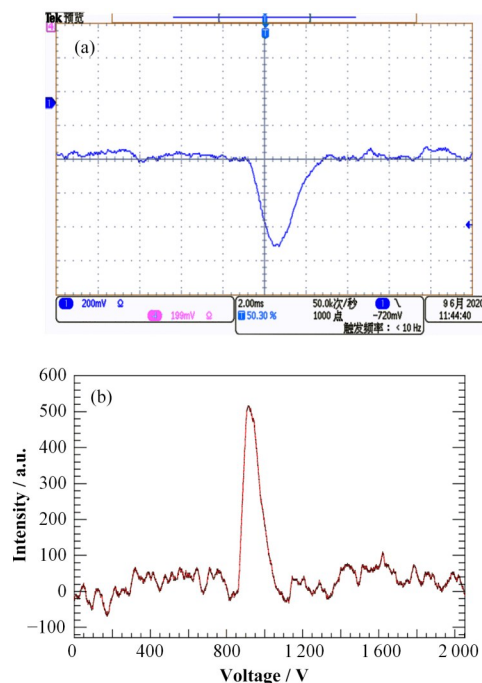


图3 脉冲电离室的输出信号 (a) 示波器显示的原始信号, (b) 示波器采样的信号

Fig.3 Output signal of pulse ionization chamber (a) Original signal displayed by oscilloscope, (b) Signal sampled by oscilloscope

3.1 计数率坪特性曲线和饱和特性曲线

入射粒子不变时,离子脉冲电离室的计数率同工作电压的关系曲线称为坪特性。随着电压的增加,离子脉冲电离室的噪声基线随之增加,所以选择离子脉冲电离室的电压测试区间:0~-1 200 V,时间间隔为10 min。计数率坪特性曲线的测试结果如图4所示(标上每个计数的测试时间),坪特性曲线的起始电压为-400 V,坪长为800 V,在-400~-1 200 V,坪斜小于1.76%/100 V,表现出较好的稳定性。

电离室输出脉冲信号幅度与工作电压的关系为脉冲电离室的饱和特性^[15],如图5所示,脉冲电离室的饱和特性曲线可以分为两个部分。其中OA段为复合区,随着工作电压的增加,在达到饱和电压-400 V以后,复合的影响减小,输出信号逐渐趋于饱和,即图5中的AB段,是脉冲电离室正常工作的区间为-400~-1 200 V,坪斜小于4.27%/100 V。

结合脉冲电离室计数率坪特性曲线和饱和特性

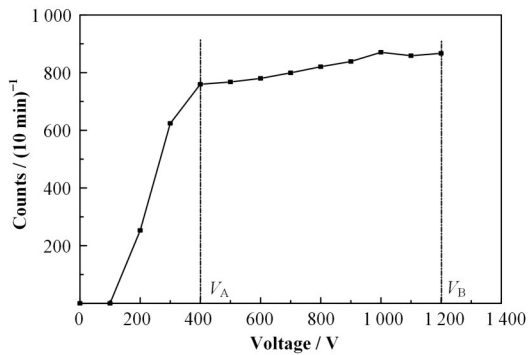


图4 脉冲电离室计数率坪特性曲线
Fig.4 Characteristic curve of pulse ionization chamber counting rate flat

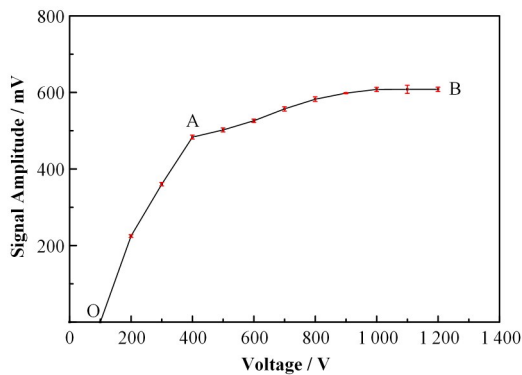


图5 脉冲电离室饱和特性曲线
Fig.5 Saturation characteristic curve of pulse ionization chamber

曲线的测试结果,两者同时表征了探测器在低电压条件下,脉冲电离室内部电场强度不足以克服电子与正离子、负离子与正离子复合的发生,从而导致输出信号幅度小于应有的幅度值。并且由于 α 粒子电离产生的电子-离子对以及正离子和负离子复合,使计数率低于实际值。随着电压的增加,这种复合逐渐减小到其影响可以消除^[16],使得计数率坪和饱和特性曲线的坪区出现。

3.2 能谱及能量分辨率

结合坪特性曲线和饱和特性曲线测试结果,选择在-600 V的电压下对脉冲电离室的能量分辨测试。在测试过程中,为减小麦克风效应^[17]引起的基线波动,选择振动小的场所测试探测器。在数据处理中,使用信号的上升时间和脉冲宽度作为判选标准可以有效的剔除噪声触发和堆积效应导致的信号畸变的影响。结合离子脉冲电离室的结构设计和工

作特点,主要影响能量分辨率的因素包括因机械振动引起的麦克风效应导致的基线波动、探测器的边缘效应和 α 粒子电离的统计涨落以及电子学引入的噪声贡献。最终测得的脉冲电离室的能谱如图6所示,对 ^{241}Am 衰变产生约5.48 MeV的 α 粒子能量分辨(半峰全宽(Full Width at Half Maximum, FWHM))约为17%,表明电离室对 ^{241}Am 衰变产生的 α 粒子在电离室中的能量沉积有很好的响应,探测器可以有效探测到 α 粒子的信号,并为后续氡衰变产生的 α 粒子(5.489 MeV)的信号阈值选择提供参考。

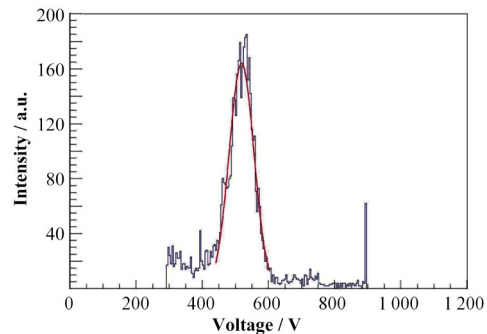


图6 脉冲电离室的能谱及能量分辨
Fig.6 Energy spectrum and energy resolution of pulse ionization chamber

3.3 离子脉冲电离室计数测试

3.3.1 本底测试

考虑到宇宙线等因素对离子脉冲电离室工作的影响,需要测试电离室对无氡环境中的计数响应。采用流气模式下,利用高纯P10($\text{Ar}+\text{CH}_4$, 90-10)工作气体,在工作电压为-600 V条件下,对探测器进行了本底计数测量。根据图6脉冲电离室的能谱,甄别插件CF8000设定阈值为-350 mV,通过定标器CAEN N1145进行累积计数,测量本底计数。对计数率的误差分析^[16],在时间 t 内记录了 N 个计数,可以得到计数率的标准误差为:

$$\sigma = \sqrt{\frac{N}{t^2}}$$

脉冲电离室的本底测试如表1所示,表中测量数据的计数率与计数率误差可以等效到脉冲电离室测量的放射性水平的下限,约为 $4.13 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 。当环境氡浓度小于测量下限时,探测器的输出信号计数回淹没在本底计数中。

表1 脉冲电离室对宇宙线等其他放射性本底的测试
Table 1 Measurement of cosmic rays and other radioactive background by pulse ionization chamber

测试地点 Test site	计数 Counting / 10 min					平均计数 Average count / 10 min	误差 Error σ
6# 208	19	11	18	14	14	15.20	1.233

3.3.2 在线环境氡浓度测试

选择-600 V 的电压下,使用研制的离子脉冲电离室对环境氡浓度进行在线测试。为保证测量系统的准确性,防止不同地点的本底相互干扰,将探测器腔体开放并置于测试地点 24 h。测试地点选择了近代物理研究所 6[#] 208(气压 84.5 kPa,温度 21 °C)和 6[#] 522(气压 84.5 kPa,温度 26 °C)室内进行测量,环境温度波动小于 3 °C。在保持电子学、探测器工作电压等条件不变的情况下进行测试。测量数据如表 2 所示,测量数据的波动性是由探测器的统计涨落、环

境氡浓度的波动、空气介质参数以及脉冲电离室本身的稳定性共同引起的,并且测量结果的误差估计满足本底测试的计数率误差和在线测试的计数率误差的均方根,即是 $\sigma_{\text{result}}^2 = \sigma_{\text{test}}^2 + \sigma_{\text{background}}^2$ 。通过计算, $\sigma_{6\#208}$ 为 3.43, $\sigma_{6\#522}$ 为 3.33。

通过计数与脉冲电离室的单位体积换算,结合测量结果的误差估计,测试地点近代物理研究所 6[#] 208 和 6[#] 522 的浓度分别为 $(22.05 \pm 0.86) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(20.31 \pm 0.84) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 均符合 GB/T 50325—2020^[18] 对室内氡浓度的规定。

表 2 脉冲电离室对在线环境氡浓度的测试
Table 2 Measurement of radon concentration in online environment by pulse ionization chamber

测试地点 Test site	计数 Counting / 10 min						平均计数 Average count	有效计数 Effective count	误差 Error σ	Rn 浓度 Rn concentration / $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$
6 [#] 208	100	106	109	94	98	110	102.83	87.63	3.43	22.05 ± 0.86
6 [#] 522	108	85	95	93	98	96	95.93	80.73	3.33	20.31 ± 0.84

4 电离室工作特点

离子脉冲电离室的工作模式可选择闭气模式和开放模式。在闭气模式下,可将短时间内采集的空气充入探测器中,通过甄别判选插件和计数插件对探测器的输出信号统计,实现对采集空气的氡浓度离线测量(需注意氡元素的半衰期对测量结果的影响)。在开放工作模式下,将探测器置于测试环境中让空气自然循环 24 h 以上,再实现连续在线测量。

离子脉冲电离室采用收集离子的方式,收集带电粒子电离产生的正离子以及空气中的水氧等负电性气体吸附电子形成的负离子。另外本探测器工作模式是全沉积式探测器, α 粒子在气压小范围变化下对其射程的影响很小,也就不会影响到 α 粒子在探测器中的能量沉积。离子脉冲电离室测量环境氡浓度时,双不锈钢屏蔽层可以有效减小环境噪声的影响,但是大振幅的震动环境引起的麦克风效应^[17]对探测器的信号输出影响很大。所以离子脉冲电离室仅适用于小振幅的震动环境中。

5 结语

本文阐述了一种工作在空气介质的离子脉冲电离室,其电极分布采用阿基米德双螺旋多丝结构,并设计双不锈钢屏蔽层来有效抑制噪声,抵抗外界环境干扰。通过采用针对性的放大器对信号进行处理放大并使用示波器波形采样来获取数据。

通过实验系统的测试了电离室计数率坪特性曲线,饱和和特性曲线和能量分辨率以及对环境氡浓度的在线测试。结果表明:采用双屏蔽结构的离子脉

冲电离室,其工作区间在-400~-1 200 V,对 ^{241}Am 产生的 α 粒子能量分辨(FWHM)达到 17%,表明该探测器能够有效探测到空气中氡衰变产生的 α 粒子的信号并给出计数,测试结果符合 GB/T 50325—2020 对室内氡浓度的规定。

参考文献

- 程业勋. 环境中氡及其子体的危害与控制[J]. 现代地质, 2008, 22(5): 857 - 868. DOI: 10.3969/j.issn.1000-8527.2008.05.023.
CHENG Yexun. Hazard and control measures of radon and its progenies in the environment[J]. Geoscience, 2008, 22(5): 857 - 868. DOI: 10.3969/j.issn.1000-8527.2008.05.023.
- Böhm R, Sedláček A, Bulko M, *et al.* Radon as a tracer of lung changes induced by smoking[J]. Risk Analysis, 2020, 40(2): 370 - 384. DOI: 10.1111/risa.13385.
- Li L F, Chen R, Zhou S M, *et al.* Evaluation of correlation between PM2.5 and radon-progeny equilibrium factor in radon chamber[J]. Nuclear Science and Techniques, 2018, 29(10): 151. DOI: 10.1007/s41365-018-0481-2.
- Baltzer P, Görsten K G, Bäcklin A. A pulse-counting ionization chamber for measuring the radon concentration in air[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1992, 317(1 - 2): 357 - 364. DOI: 10.1016/0168-9002(92)90629-i.
- 卢伟. 测氡仪器概述[J]. 现代仪器, 2002, 8(2): 5 - 8, 16. DOI: 10.3969/j.issn.1672-7916.2002.02.002.

- LU Wei. The summarization of radon-measurement instruments[J]. Modern Instruments, 2002, **8**(2): 5 - 8, 16. DOI: 10.3969/j.issn.1672-7916.2002.02.002.
- 6 Industriale S E. A multiple cell proportional counter for continuous airborne radon assessment[D]. JINST, SISSA, IT, 2003.
- 7 Li L F, Chen R, Zhou S M, *et al.* Evaluation of correlation between PM2.5 and radon-progeny equilibrium factor in radon chamber[J]. Nuclear Science and Techniques, 2018, **29**: 151. DOI: 10.1007/s41365-018-0481-2.
- 8 Paul A, Honig A, Forkel-Wirth D, *et al.* Traceable measurements of the activity concentration in air[J]. Nuclear Physics A, 2002, **701**(1 - 4): 334 - 342. DOI: 10.1016/S0375-9474(01)01607-4.
- 9 Gavriluk Y M, Gangapshev A M, Gezhaev A M, *et al.* High-resolution ion pulse ionization chamber with air filling for the ^{222}Rn decays detection[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2015, **801**: 27 - 33. DOI: 10.1016/j.nima.2015.08.034.
- 10 Kuzminov V V. Ion-pulse ionization chamber for direct measurement of radon concentration in the air[J]. Physics of Atomic Nuclei, 2003, **66**(3): 462 - 465. DOI: 10.1134/1.1563705.
- 11 Röttger S, Paul A, Honig A, *et al.* On-line low- and medium-level measurements of the radon activity concentration[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2001, **466**(3): 475 - 481. DOI: 10.1016/S0168-9002(01)00227-3.
- 12 Linzmaier D, Röttger A. Development of a transfer standard for the measurement of low Rn-222 activity concentration in air[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2014, **87**: 306 - 309. DOI: 10.1016/j.apradiso.2013.11.076.
- 13 陈伯显, 张智. 核辐射物理及探测学[M]. 哈尔滨: 哈尔滨工程大学出版社, 2011: 225 - 235.
CHEN Boxian, ZHANG Zhi. Nuclear radiation physics and detection[M]. Harbin: Harbin Engineering University Press, 2011: 225 - 235.
- 14 汪晓莲, 李澄, 邵明. 粒子探测技术[M]. 合肥: 中国科学技术大学出版社, 2009: 97 - 100.
WANG Xiaolian, LI Cheng, SHAO Ming. Particle detection technique[M]. Hefei: University of Science and Technology of China Press, 2009: 97 - 100.
- 15 Nuclear Structure & Decay Data (BNL, National Nuclear Data Center)[ED/OL]. 2020-10-12. <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>.
- 16 吴治华. 原子核物理实验方法[M]. 3版(修订本). 北京: 原子能出版社, 1997: 80 - 82.
WU Zhihua. Experimental methods for nuclear physics (part I)[M]. 3rd Ed. Beijing: Atomic Press, 1997: 80 - 82.
- 17 Delayen J R. Ponderomotive instabilities and microphonics - a tutorial[J]. Physica C: Superconductivity, 2006, **441**(1 - 2): 1 - 6. DOI: 10.1016/j.physc.2006.03.050.
- 18 中华人民共和国住房和城乡建设部. GB 50325—2020: 民用建筑工程室内环境污染控制规范[S]. 2020.
Ministry of Housing and Urban Rural Development of The People's Republic of China. GB 50325—2020: code for indoor Environmental pollution control in civil construction projects[S]. 2020.