

用半导体探测器及微孔滤膜监测 α 气溶胶

岳清宇 夏益华 杨英俊 黄子瀚 姚宛元 李洪山

(中国科学院原子能研究所)

摘 要

本文介绍用金硅面垒型半导体探测器制成的 α 放射性气溶胶监测仪和对几种国产滤纸的实验结果。实验表明,这种监测仪采用自制的孔径 2 微米的微孔滤纸取样,对铀²³⁸的监测灵敏度约为 1—2 最大容许浓度·小时(当氡本底浓度约 3×10^{-11} 居里/升时)。用超细玻璃纤维滤纸和 2 号微滤纸取样,灵敏度可达到约 6—7 最大容许浓度·小时左右。若对探头抽真空,灵敏度提高近一倍。改变单道阈值可用于监测钋-210、铀等 α 放射性气溶胶。

一、前 言

长寿命 α 放射性气溶胶对空气的污染,是构成辐射内照射危险的重要来源,如何快速地测定其污染浓度,是现场辐射防护工作的课题之一。近年来,对放射性气溶胶的监测,在原理上未见到重大发展,但其测量技术却进展较大。其中利用具有很高能量分辨本领的半导体探测器,用微孔滤纸或撞击器取样,可获得较高的灵敏度^[1,2]。

近年来国内有关单位在气溶胶监测仪研制方面做了许多工作。我们研制了一台“半导体探测器 α 气溶胶监测仪”,采用表面收集特性较好的小孔硝化纤维滤纸取样,用半导体探测器测量,灵敏度约可达到 1—2 最大容许浓度·小时。监测仪的探头和线路单元合装在一个机壳内,总重量 12 公斤(图 1)。测定了自制的各种孔径滤膜以及国产超细玻璃纤维滤纸和 2 号微滤纸的某些性能。用上述三种滤纸取样测量与三天后测量结果比较,符合较好,与用灵敏度计算公式算出的结

果比较一致。

二、工作原理

取样时由于氡氡子体和人工核素同时被收集在滤纸上,当取样时间较短(约 15 分钟),取样后等待一段时间(约 15 分钟)进行测量时,氡氡子体的影响主要是 RaC' ,因此当场所空气中存在人工核素(如铀²³⁸等)时测到的能谱如图 2。

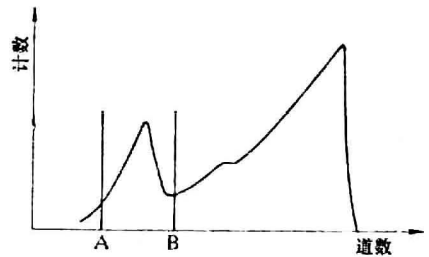


图 2 人工核素和氡氡子体能谱示意图

图中横座标 $A-B$ 称为人工道,其中积分计数以 N 表示, B 以后的积分计数为 N_2 ,称为超道计数,由于吸收造成的氡氡子体 α 能量的退化,使谱线“拖尾”到人工道,其积分数以 N_1 表示,则人工放射性计数为:

$$N_A = N - N_1 \quad (1)$$

当在空气中只存在氡氡子体 α 放射性时取样,对选定的滤纸和测量条件,可测出:

$$K = \frac{N_1}{N_2} \quad (2)$$

K 称为补偿系数。由(1)、(2)式得出

$$N_A = N - \bar{K}N_2 \quad (3)$$

式中 $\bar{K}$ 为多次测量的平均值, N , N_1 分别由记录仪表读出,人工 α 放射性计数 N_A 即可求得。

放射性气溶胶监测仪灵敏度的表示方法各不相同,但一般都以监测仪本底读数涨落表示,我们取三倍本底读数的标准误差表示监测仪的灵敏度,导出近似公式为:

$$S = 3 \frac{\bar{K}f n_1}{(1 + \bar{K})P} [(\sigma_{N_1}/N_1)^2 + (\sigma_{N_2}/N_2)^2 + (\sigma_K/\bar{K})^2]^{1/2} \quad (4)$$

式中 f 为与取样、等待和测量时间有关的修正因子 (<1);

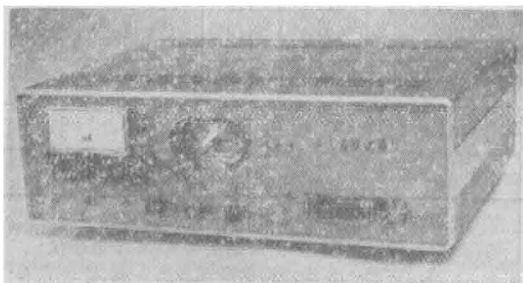


图 1 α 气溶胶测量仪

n_2 为空气中氡氡子体放射性浓度(以蜕变/分·升表示);
 P 为人工道对人工核素 α 粒子的计数效率;
 σ_{N_1}/N_1 为 N_1 相对标准误差;
 σ_{N_2}/N_2 为 N_2 相对标准误差;
 $\sigma_K/\bar{K}$ 为 K 的相对标准误差。

三、监测仪及其参数

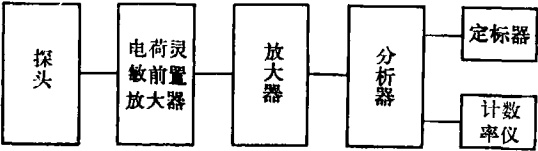


图3 监测仪方框图

探头是一个可抽真空的密封盒，半导体探测器固定在里面，样品可通过密封盒小门取放。探测器是金硅面垒型，有效直径26毫米。电荷灵敏前置放大器(JDHQ-1型)、放大器、单道脉冲分析器和计数率表这五部分构成监测仪，是自行设计焊制的。放大器的放大倍数约20倍(可调)，稳定性好于0.1%，微、积分时间常数(可调)选定为1.5微秒，单道阈值从0.5—5伏，道宽0—2.5伏，连续可调。道内计数单元推动608-017型机械计数器。超道计数由计数率表指示。全部插件单元由±24伏电源供电，+150伏(连续可调)供半导体探测器。监测仪连续工作八小时稳定性为2.4%。用直径26毫米的探测器测量直径30毫米的电镀锌²²²参考源，当探头抽空时测得监测仪的分辨率为2.1%(FWHM=113千电子伏)，不抽空时为4.7%(FWHM=233千电子伏)，监测仪道内本底计数率约为0.8计数/小时。

为减少空气吸收的影响，探头应能抽真空，并且在不致于损坏和污染探测器表面的情况下，样品尽可能靠近探测器。我们选用的条件是：样品距探测器表面3毫米，偏压100伏或120伏。

四、实验结果

1. 滤纸取样特性实验

关于 α 能量甄别法取样用的滤纸应该具有对 α 能谱畸变小的特点。撞击器的表面收集特性很好，撞击样品的 α 能谱几乎和自镀源的 α 能谱相同，但其撞击效率随气流速度和气溶胶粒径分散度的不同而不同，撞击效率的刻度比较困难。也有用玻璃纤维滤纸的^[1]。但较合适的还是用微孔滤纸。我们试制了这种滤纸，确定了合适的孔径范围，并和目前已有工业产品的合成纤维纸、超细玻璃纤维纸和2号微滤纸的有关性能进行了比较。

显然，微孔滤纸的孔径越小其表面收集特性越好，但其阻力越大；反之，则阻力降低，但能谱特性变坏。

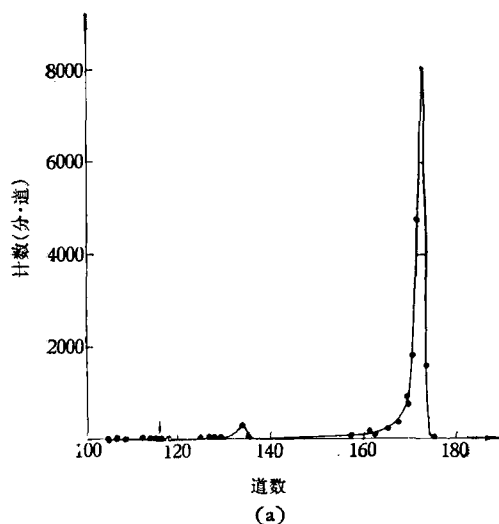
因此，确定合适的孔径范围是实验的重要任务。
 实验中，为了消除空气层吸收的影响，我们将探头抽空至10毫米水银柱，用多道分析器测量天然氡子体RaC'的 α 脉冲谱。为了尽量缩短取样时间，以减少灰尘累积量并提高统计精度，我们在氡气浓度达到10⁻¹¹居里/升的地下室内取样。为了使各样品的统计精度相同，在待测滤纸取样的同时，还通过另一张孔径为0.8微米的参考滤纸取样，参考滤纸上面装有一个 α 闪烁探头，即时测定滤纸上的 α 计数。当其总 α 计数达到15000时停止取样，等待10分钟后开始用多道分析器测量。取样流量每次都控制在100升/分，每次记下在此流量下滤纸的阻力。每种孔径或品种的滤纸至少测定五张，求平均。

(1) α 脉冲幅度谱的测定和孔径的选择 有人报道^[4]通过测定滤纸阻力和 α 脉冲幅度谱峰的半高处全宽度(FWHM)，来确定合适的滤纸孔径。但是，我们的实验结果表明：用FWHM来表征微孔滤纸对能量甄别本领的影响是不合适的。因为滤纸上 α 谱的展宽实际上是由两部分组成的：一部分是由探测器和电子学系统中的各种无规涨落过程造成的，这一分布可用高斯分布描述；另一部分是由滤纸等物质层对 α 粒子

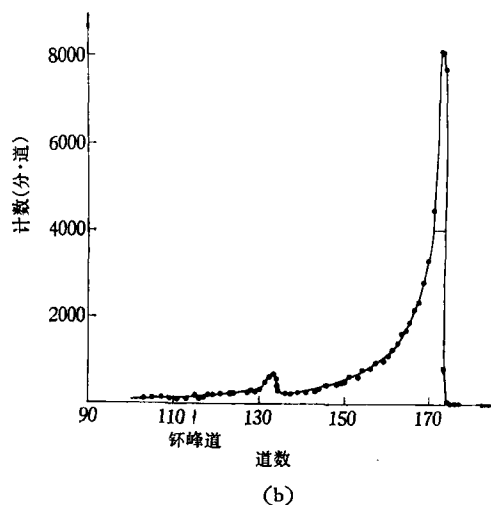
表1 各种品种孔径的滤纸特性实验测定值

测定值		FWHM	分辨率	尾峰比	流量为14升/分·厘米 ² 时阻力(厘米汞)
品种	孔径(微米)	(道)	(%)	(%)	
微孔滤纸正面	0.8	1.9	1.2	0.06	60.0
	3.0	3.5	2.1	1.2	25.7
	5.0	3.2	1.9	2.3	11.8
	7.0	2.6	1.5	4.1	8.0
	9.0	2.5	1.5	5.0	4.7
	12	2.5	1.4	6.6	4.2
	15	2.2	1.3	6.2	3.2
	21	2.1	1.2	7.1	1.6
微孔滤纸反面	0.8	5.4	3.2	1.8	57.0
	3.0	3.4	2.0	1.6	24.4
	5.0	3.3	2.0	3.7	10.4
	7.0	3.7	2.1	4.6	7.5
	9.0	2.8	1.7	5.9	4.7
	12	2.6	1.5	4.6	5.2
	15	2.3	1.4	7.0	3.2
	21	2.4	1.4	7.3	1.6
超细玻璃纤维滤纸		4.0	2.4	2.5	8.0
2号微滤纸		2.2	1.3	5.8	3.1
合成纤维滤纸		7.3	4.3	4.2	1.4

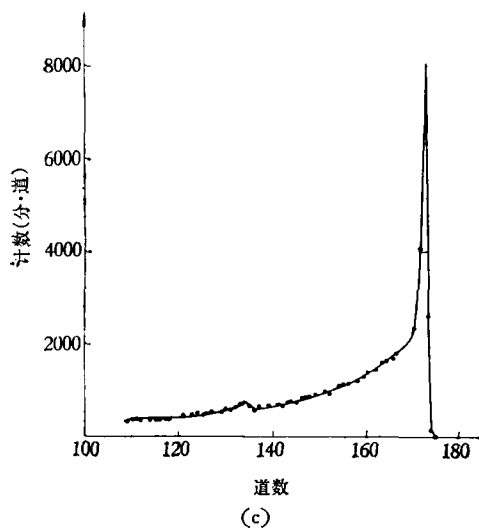
说明：1. 表内数据一般均为5—6个数据的平均值；
 2. FWHM(道)：每道相当45.2千电子伏；
 3. 正面：系指滤膜贴玻璃板那一面，比较光滑；
 4. 反面：系指制滤膜过程中的挥发面



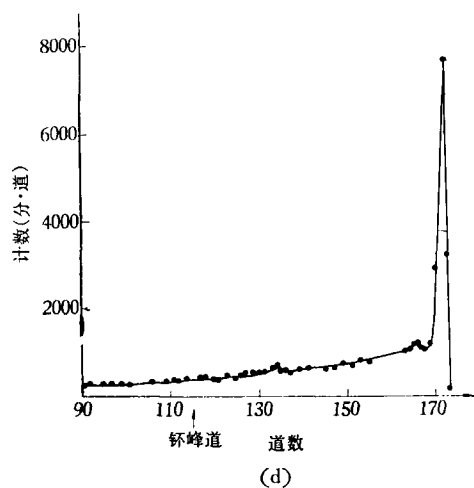
0.8 微米; FWHM 2 道; 分辨率 1.17%;
尾峰比 $3/8049 = 0.037\%$



5 微米; FWHM 2.8 道; 分辨率 1.64%;
尾峰比 $146/8136 = 1.8\%$



15 微米; FWHM 2 道; 分辨率 1.16%;
尾峰比 $363/8093 = 4.36\%$



22 微米; FWHM 2 道; 分辨率 1.17%;
尾峰比 $397/7666 = 5.2\%$

图 4 几种孔径滤纸的氡子体能谱

能量的吸收而形成能谱的连续“尾巴”，显然，FWHM 的大小适于反映前一部分按高斯分布的展宽，而不能反映后一种吸收对能谱退化的影响。

对不同孔径的微孔滤纸以及其它几种滤纸，测定 α 脉冲谱的特性，结果见表 1。从实验结果看出，微孔滤纸的 FWHM，并不随着孔径的增大而增大；孔径很大时反而比中等孔径的小。从图 4 可以看出，0.8 微米的滤纸，由于 α 粒子基本上留存在滤纸表面，故其谱峰较窄，其“尾巴”很快压得极低。而 15 微米和 22 微米的大孔径滤纸其主峰也很窄，但其峰尾过渡不平滑，而且其“尾巴”压低极慢。而中等孔径（5 微米）的滤纸

则其谱峰比上述两种为宽，但其峰尾过渡却较平滑，“尾巴”压低稍快些。这可能由于大孔滤纸使得微尘进入孔内较深，斜射 α 粒子被纸吸收，准直作用好；而微尘在中等孔径滤纸中埋藏不深，造成对斜射 α 粒子的一个连续吸收过程，使得峰尾过渡平滑且谱峰变宽。表 1 中我们引入了“尾峰比”这个参数，它等于天然本底在铯峰道（如 114 道）内的计数率与 RaC' 峰道（如 170 道）内计数率之比，显然“尾峰比”的大小可以用来判别天然本底对铯道干扰的大小。实验结果表明，“尾峰比”随着孔径的增大而增大。虽然资料[4]认为 5 微米孔径比较合适，但实验结果表明：对我们自制的孔径

为3微米的微孔滤纸,其“尾峰比”和超细玻璃纤维纸相近,而其阻力却比超细玻璃纤维纸大,可见孔径在3微米以上的微孔滤纸已不显示其优越性,因此,最好采用2微米左右孔径的滤纸。如果抽气泵能容许较大的阻力时,采用1微米左右的微孔滤纸还可得到更高的监测灵敏度。

我们的微孔滤纸是在玻璃板上挥发而成的。由表1可知,正面(贴玻璃板的一面)取样其表面收集特性要比反面(溶剂挥发的那面)好。

(2) 非放射性灰尘量对脉冲幅度谱的影响 实验中我们对积尘量的影响作了粗略测定。结果表明,当3微米孔径滤纸上的灰尘厚度在0.17毫克/厘米²以下时,其“尾峰比”仍小于1%,且“尾峰比”随灰尘量的增加而增长的速度较慢;当灰尘量较大时,“尾峰比”几乎和灰尘量成正比增大。但灰尘量小于1毫克/厘米²时,其谱峰道址不变,假若要求滤纸上灰尘量不超过0.17毫克/厘米²,取样体积为4立方米,则相应要求空气中含尘量不超过0.3毫克/米³,这个要求一般实验室是很容易满足的。

(3) 自制微孔滤纸过滤效率测定 用两层直径为5厘米的滤纸串联取样,然后用两台 α 闪烁探测器同时测量。结果表明,当空气流速在(5—12.5)升/分·厘米²范围内,3微米孔径的滤纸过滤效率为98%,10微米孔径的过滤效率在80%左右。

2. 灵敏度计算和测量结果比较

根据(4)式监测仪灵敏度为:

$$S = 3 \frac{\bar{K}/n_2}{(1 + \bar{K})P} [(\sigma_{N_1}/N_1)^2 + (\sigma_{N_2}/N_2)^2 + (\sigma_K/\bar{K})^2]^{1/2}$$

式中 $\bar{K}$ 是由实验预先测定的。实验表明对某一定的滤纸和实验条件可确定一个平均 $\bar{K}$ 值。 $\bar{K}$ 主要和滤纸的表面收集特性、探测器的分辨率、甄别阈和道宽以及取样、测量的时间分配和氡氡子体平衡等条件有关。根据测定电镀参考源钚²³⁹的能谱,选定甄别阈为3.0伏,道宽0.7伏(对钚的道内计数百分比为95%),当等待时间为15分钟时,测定了不同孔径的滤纸的 $\bar{K}$ 值,并计算了 $\sigma_K/\bar{K}$ 。

表2中数据皆为5个测量结果的平均值,所用的每种孔径滤纸不是取自同一大张膜。结果表明 $\bar{K}$ 值随孔径而增加。 $\bar{K}$ 的相对涨落 $\sigma_K/\bar{K}$ 从11%到45%变化大而无规律。用取自同一大张膜的各种孔径滤纸进行同样测量其 $\sigma_K/\bar{K}$ 不超过10%。由此可见,尽管用鼓泡法测出的滤纸孔径是相同的,但由于所用滤纸是试制样品,其配方和成膜条件不同,所以滤纸表面结构可能不同,加之孔径测量误差影响,所以表2中的 $\sigma_K/\bar{K}$ 涨落较大,而用同一大张膜上的相同孔径取样滤纸所得 $\sigma_K/\bar{K}$ 值涨落较小,所以 $\sigma_K/\bar{K}$ 值主要决定于滤纸本身的特性以及测孔误差。

表2 各种孔径滤纸的 $\bar{K}$ 及 $\sigma_K/\bar{K}$

孔 径 (微米)	$\bar{K}(\%)$	$\sigma_K/\bar{K}(\%)$
0.4	0.9	22
0.7	0.5	42
1.5	0.7	16
2.0	1.5	9
2.4	1.7	7
3.1	3.5	45
5.0	5.6	31
7.1	7.7	11
9.1	12.7	15
12	15.0	32
15	15.0	23
20	21.0	11

用孔径1.5微米的滤纸、超细玻璃纤维滤纸和2号微滤纸,在地下室取氡氡子体放射性测 $\bar{K}$ 值,每一种滤纸皆测定10个以上数据。根据公式(4)计算了当天天然本底为 3×10^{-13} 居里/升,取样、等待和测量时间皆为15分钟,抽气流量分别为100升/分,200升/分时监测空气中钚²³⁹ α 气溶胶可达到的灵敏度列于表3。结果表明选择 $\bar{K}$ 值小的表面结构均匀的滤纸是有利的。

表3 三种取样滤纸的 $\bar{K}$ 值及灵敏度

滤 纸	$\bar{K}(\%)$	$\sigma_K/\bar{K}(\%)$	灵敏度 (最大容许浓度·小时)	
			流 量 100升/分	流 量 200升/分
孔径1.5微米滤膜	0.7	±16	0.7	0.6
超细玻璃纤维滤纸	6.5	±23	6.0	5.0
2号微滤纸	15.3	±12	7.0	6.5

用上述三种滤纸在操作 α 放射性同位素手套箱中取样,三天后测量其 α 放射性,然后在地下室内,在已取人工 α 放射性的滤纸上再取上氡氡子体放射性,等待15分钟后测量,其结果与三天后的结果对照(见表4、表5和表6),表明用能谱法测量结果与三天后测量结果比较一致,与用灵敏度计算公式的计算结果亦符合较好。

五、结 语

用自制1.5微米孔径的硝酸纤维滤纸取样,这台监测仪测量钚²³⁹ α 放射性气溶胶的灵敏度约为1—2最大容许浓度·小时(当氡氡本底浓度约为 3×10^{-13} 居里/升时)。仪器的原理和结构比较简单,可简化成便携式仪表。连续监测仪采用能量甄别法亦可使设备简便,灵敏度提高。

取样滤纸根据需要可采用国产二号微滤纸,超细玻璃纤维滤纸和孔径为2微米以下的微孔滤纸。我们

表 4 用孔径 1.5 微米滤膜取样测量结果

编号	本底浓度* (居里/升)	能谱法测量 结果 N' (最大 容许浓度)	三天后测量 结果 N (最大 容许浓度)	$ N-N' $
1	7.6×10^{-13}	0.9	0.9	0
2	17.0×10^{-13}	0.9	1.2	0.3
3	16.0×10^{-13}	-0.5	0.7	1.2
4	18.0×10^{-13}	2.7	1.4	1.3
5	15.0×10^{-13}	-0.6	0.6	1.2
6	15.0×10^{-13}	6.0	5.5	0.5
7	5.3×10^{-13}	5.2	4.6	0.6
8	1.5×10^{-13}	3.0	2.5	0.5
9	3.0×10^{-13}	2.0	3.0	1.0
10	4.2×10^{-13}	0.3	0.9	0.6
11	3.5×10^{-13}	6.2	5.6	0.6
12	2.6×10^{-13}	5.5	5.8	0.3
13	2.0×10^{-13}	1.9	2.7	0.8
14	5.0×10^{-13}	4.6	6.2	1.6
15	4.5×10^{-13}	1.4	2.3	0.9
16	6.5×10^{-13}	1.6	2.4	0.8

* 表内数值乘以 $1/f$ 为取样时空气中氡子体浓度，以下同。

表 5 用玻璃纤维滤纸取样测量结果

编号	本底浓度 (居里/升)	能谱法测量 结果 N' (最大 容许浓度)	三天后测量 结果 N (最大 容许浓度)	$ N-N' $
1	0.3×10^{-13}	0.3	0.3	0
2	0.3×10^{-13}	0.2	0.1	0.1
3	0.4×10^{-13}	14	12	2.0
4	2.0×10^{-13}	36	33	3.0
5	1.5×10^{-13}	21	18	3.0
6	2.0×10^{-13}	32	36	4.0
7	1.5×10^{-13}	2.5	4	1.5
8	1.0×10^{-13}	4.8	4.6	0.2
9	2.0×10^{-13}	6.2	5	1.2
10	1.0×10^{-13}	3.1	4	0.9
11	1.0×10^{-13}	3.1	5	1.9
12	0.5×10^{-13}	3.8	5	1.2
13	0.5×10^{-13}	3.1	5	1.9
14	0.5×10^{-13}	4.8	5	0.2
15	0.5×10^{-13}	5.6	4.8	0.8
16	1.0×10^{-13}	5.5	4.5	1.0
17	1.0×10^{-12}	6.8	1	5.8

认为，监测放射性气溶胶取样用的滤纸特性用“尾峰比”表示较用分辨率表示^[4]更为合理。

实验表明用微孔滤纸取样测得的补偿系数 K 值随孔径而增加，是影响监测灵敏度的重要因素， K 值的涨落对灵敏度也有影响，涨落主要与滤纸本身的特性以及滤纸孔径测量误差有关，也与测量系统的稳定性有

表 6 用 2 号微滤纸取样测量结果

编号	本底浓度 (居里/升)	能谱法测量 结果 N' (最大 容许浓度)	三天后测量 结果 N (最大 容许浓度)	$ N-N' $
1	0.2×10^{-13}	0.8	0	0.8
2	0.2×10^{-13}	1.1	0.6	0.5
3	0.1×10^{-13}	26.5	23.0	3.5
4	2.0×10^{-13}	4.4	2.5	1.9
5	1.5×10^{-13}	-3.1	1.9	5.0
6	1.5×10^{-13}	-0.6	3.1	3.7
7	1.5×10^{-13}	13.0	15.0	2.0
8	1.5×10^{-13}	21.0	19.0	2.0
9	2.0×10^{-13}	10.0	11.0	1.0
10	2.0×10^{-13}	5.6	12.5	6.9
11	2.5×10^{-13}	11.0	8.7	2.3
12	2.5×10^{-13}	8.0	12.0	4.0
13	0.5×10^{-13}	11.0	11.0	0
14	2.0×10^{-13}	14.0	12.0	2.0
15	2.0×10^{-13}	5.6	4.0	1.6
16	1.0×10^{-13}	14.0	12.0	2.0

关。

由于对取样、等待时间和测量时间的选定和分配，决定取样量的多少、计数的统计误差、镭 A 的相对影响，所以它与监测仪的积分灵敏度有关。我们曾假定某些条件，用电子计算机进行初步运算表明：取样、等待和测量总时间在 30 分钟左右似乎有利。使用者可根据现场实际需要情况选定和分配时间，但改变时间条件与改变所用探测器和取样滤纸，同样需要重新测定补偿系数 K 值。

由于水平和条件所限，监测仪本身不论在机械设计或电子学单元方面都有许多尚待改进之处。整机尚须进一步在现场考验。

参加本工作的还有：清华大学工农兵学员姚树新、习国军；复旦大学工农兵学员马晓林、裴永法等同志。

李德平同志对本工作多次提出宝贵意见，对此我们表示感谢。

参 考 资 料

- [1] AEI Air Monitor, *Nuclear Engineering*, 1, 36, 1963.
- [2] Phillips, W. A. et al., Plutonium Alpha Air Monitor Using a Solid State Detector, *Health Physics*, 9, 299, 1963.
- [3] Lister, B. A. J. et al., Development of Air Sampling Technology by the Atomic Energy Research Establishment, Harwell, *Assessment of Airborne Radioactivity Proceedings of a Symposium*, Vienna, 3-7, July, 1967.
- [4] Lindeken, C. L. et al., *Health Physics*, 10, 495, 1964.

[本文于 1975 年 4 月 4 日收到]