

氡子体未结合态份额的变化规律研究

郭璐¹, 张磊², 郭秋菊^{1,*}

(1. 北京大学 物理学院 核物理与核技术国家重点实验室, 北京 100871;

2. 中国人民解放军防化研究院 第二研究所, 北京 102205)

摘要:氡及其子体对公众的辐射照射占天然辐射照射的一半以上, 而室内氡子体未结合态份额是影响氡子体剂量转换系数的重要参数。为探究氡子体未结合态份额的变化及受室内外环境因素的影响规律, 本研究采用自行开发的累积式氡子体未结合态份额采样装置, 在北京大学技物楼室内外环境中开展了氡子体未结合态份额的年变化测量, 并利用商用连续式氡子体测量仪测量了室内氡子体未结合态份额的日变化。实测结果表明: 在室内和室外不同环境中, 氡子体未结合态份额的年平均值分别为 8.8% (6.4%~12.5%) 和 9.7% (4.9%~12.8%); 室内环境中氡子体未结合态份额相对稳定; 室外环境中氡子体未结合态份额受环境因素影响大, 波动较大; 关于日变化, 虽然室内平衡当量氡子体浓度呈现出明显的上午高下午低的日变化规律, 但没有观察到未结合态份额有规律性的日变化。

关键词:氡子体; 未结合态份额; 年变化; 日变化

中图分类号: TL72; TL815

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2016)09-1717-04

doi: 10.7538/yzk.2016.50.09.1717

Study on Variation of Unattached Fraction of Radon Progeny

GUO Lu¹, ZHANG Lei², GUO Qiu-ju^{1,*}

(1. State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China; 2. Solid Dosimetric Detector and Method Laboratory, Beijing 102205, China)

Abstract: Radon and its progeny contribute half of all radiation exposure of the public received from natural radiation, while the unattached fraction of radon progeny plays an important role on its dose conversion factor. To understand better on the variation of the unattached fraction of radon progeny and how environmental factors work on it, both 24 h integrated monitor and real-time continuous monitor were adopted by this study for the observation on annual variation and diurnal variation as well. The results of monthly field measurement show that the annual average of the unattached fraction of radon progeny is 8.8% (6.4%-12.5%) and 9.7% (4.9%-12.8%) for indoor and outdoor, respectively. In indoor environments, the unattached fraction of radon progeny is more stable compared with that of outdoors since indoor environmental factors are more stable. For diurnal variation, even though radon equilibrium equivalent concentration

收稿日期: 2015-10-12; 修回日期: 2016-02-11

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11475009)

作者简介: 郭璐(1989—), 女, 四川绵阳人, 博士研究生, 辐射防护与环境保护专业

* 通信作者: 郭秋菊, E-mail: qjguo@pku.edu.cn

has a disciplinary variation, higher in the morning and lower in the afternoon, the variation of the unattached fraction of radon progeny does not show any regularity.

Key words: radon progeny; unattached fraction; annual variation; diurnal variation

氡及其子体对人体的辐射照射剂量贡献占人体所受天然辐射的一半以上^[1],而与氡相关的辐射剂量主要来自于氡的短寿命子体。氡子体在空气中以两种形式存在:一部分与空气中的气溶胶结合,称为结合态氡子体,另一部分以单个粒子形态存在,粒径在 5.0 nm 以下,称为未结合态氡子体。研究^[2-3]表明,未结合态氡子体由于粒径小、扩散系数大,其剂量转换系数为结合态氡子体的 25 倍。氡子体未结合态份额(f_p)的定义是未结合态氡子体的 α 潜能浓度与氡子体总 α 潜能浓度之比,它是估算人体受氡子体所致辐射剂量的重要参数。所以研究氡子体未结合态份额及其环境影响因素对于评价氡子体剂量具有重要意义。

氡子体未结合态份额测量的关键在于未结合态氡子体的采集与探测。对于未结合态氡子体的采集,早期多采用平行板和圆桶扩散组,后来随着丝网扩散法的完善,单层丝网法成为采集未结合态氡子体的主流方法^[4]。未结合态份额测量装置主要为 α 谱仪或 α 计数器,它们能给出环境中结合态与未结合态氡子体的实时放射性浓度,属于连续式氡子体测量装置。由于未结合态子体浓度易受环境因素影响,数值波动较大,对于评价辐射剂量,一段时间内的累积值更有意义和代表性,且连续式氡子体测量装置体积庞大,不便于现场实测。本实验室开发了便携式的累积式氡子体未结合态份额采样装置^[5],能有效地对未结合态子体开展累积性测量。

为把握和理解氡子体未结合态份额受环境因素的影响规律,本研究利用累积式氡子体未结合态份额采样探头对北京大学技物楼三楼会议室室内外氡子体未结合态份额进行为期 1 a 的定期测量,以观察年变化规律;同时利用连续式氡子体测量仪测量研究室内氡子体未结合态份额的日变化规律。

1 材料与方 法

1.1 氡子体未结合态份额的累积测量

为观察氡子体未结合态份额的年变化规律,

分别在室内和室外环境中开展了为期 1 a 的定期测量。每月中旬最少选择不连续的 2 d,分别进行 24 h 以上的累积测量,2 次测量的平均值代表该月份的测量数值。室内测量点选择北京大学技物楼三楼会议室,测量过程中该房间气溶胶浓度为 10 000~36 000 cm^{-3} ,室内温度为 15~28 $^{\circ}\text{C}$,相对湿度为 16%~76%,测量时保持室内自然通风,且无人干扰。室外氡子体未结合态份额的测量在同地点室外平台上进行,实验过程中温度为 -2~30 $^{\circ}\text{C}$,湿度为 26%~74%。

采用北京大学物理学院辐射防护与环境保护实验室开发的累积式氡子体未结合态份额采样探头进行测量。该装置通过与德国 SARAD 公司生产的 EQF3120 型氡子体未结合态份额测量仪和德国 TRACERLAB 公司生产的 BWLM-PLUS-2S 型氡子体测量仪进行对比实验验证装置的实用性^[6];该采样装置对结合态氡子体和未结合态氡子体的探测下限分别为 0.12 Bq/m^3 和 0.03 Bq/m^3 。同时,使用日本 SIBATA 便携式数字化空气采样泵进行准确空气采样;TSI3781 气溶胶浓度测量仪测量气溶胶浓度;ACCLR 空气温/湿度计进行空气温/湿度测量。

测量操作过程如下:连接 SIBATA 便携式空气采样泵和累积式氡子体未结合态份额采样探头,采样 24 h。期间,气流经过 100 目单层丝网时,扩散系数较大的未结合态氡子体被丝网采集,剩余的结合态氡子体被探头末端的滤膜采集,进而未结合态与结合态氡子体衰变产生的 α 粒子被不同位置的探测元件 CR-39 记录。采样同时测量并记录环境气溶胶浓度及温/湿度。采样结束后,将探头密封 3 d,待 ^{220}Rn 的子体 ^{212}Bi 衰变 5 个半衰期以上,将探头中的 CR-39 取出,在 75 $^{\circ}\text{C}$ 、7.5 mol/L 的 NaOH 溶液中蚀刻 8 h,在显微镜下读出 CR-39 的径迹密度,分别通过式(1)、(2)计算结合态和未结合态氡子体的平衡当量氡浓度 $\text{EEC}_{\text{Rn}}^{\text{a}}$ 和 $\text{EEC}_{\text{Rn}}^{\text{u}}$:

$$\text{EEC}_{\text{Rn}}^{\text{a}} = 0.162 \ 7D_{\text{Rn}}^{\text{a}}/t \quad (1)$$

$$\text{EEC}_{\text{Rn}}^{\text{u}} = 0.039 \ 3D_{\text{Rn}}^{\text{u}}/t \quad (2)$$

其中: D_{Rn}^a 、 D_{Rn}^u 分别为结合态和未结合态氡子体在 CR-39 上的径迹密度; t 为采样时间。未结合态份额 f_p 为 EEC_{Rn}^u 与 $EEC_{Rn}^a + EEC_{Rn}^u$ 的比值。

1.2 氡子体未结合态份额的实时连续测量

为观察室内氡子体浓度的日变化规律, 采用 BWLM-PLUS-2S 型氡子体测量仪对室内环境进行长期连续监测, 测量时门窗关闭, 无人干扰。BWLM-PLUS-2S 型氡子体测量仪是双通道连续式氡子体测量仪, 其中一个通道用滤膜采集氡子体, 另一个通道用丝网采集未结合态氡子体, 并用 α 谱仪进行测量。本研究使用该仪器的 Continuous 模式, 周期为 60 min 时的探测下限为 0.1 Bq/m³。

2 结果与讨论

2.1 室内外氡子体未结合态份额年变化

全年室内氡子体未结合态份额测量结果列于表 1。氡子体未结合态份额最高值为 12.5%、出现在 2 月, 最低值为 6.4%、出现在 6 月, 全年平均值为 8.8%。氡子体平衡当量氡浓度 EEC_{Rn} 的范围为 3.0~9.9 Bq/m³, 未结合态氡子体平衡当量氡浓度的范围为 0.28~0.77 Bq/m³。

表 1 室内氡子体平衡当量氡浓度及未结合态份额测量结果

Table 1 Indoor monthly measurement results of EEC_{Rn} and f_p

月份	$EEC_{Rn}/$ (Bq · m ⁻³)	$EEC_{Rn}^u/$ (Bq · m ⁻³)	$f_p/\%$
1	9.1±0.3	0.77±0.03	8.4±0.5
2	3.0±0.1	0.38±0.01	12.5±0.8
3	3.4±0.1	0.33±0.01	9.7±0.4
4	3.6±0.2	0.34±0.02	9.7±0.5
5	3.0±0.2	0.28±0.01	9.4±0.6
6	7.8±0.3	0.50±0.02	6.4±0.3
7	6.3±0.3	0.44±0.03	7.1±0.5
8	5.2±0.3	0.40±0.01	7.6±0.5
9	4.8±0.1	0.47±0.02	9.7±0.5
10	6.0±0.2	0.56±0.03	9.4±0.5
11	9.6±0.6	0.69±0.03	7.2±0.5
12	9.9±0.2	0.77±0.03	7.8±0.5

全年室外氡子体未结合态份额测量结果列于表 2。由表 2 可见, 氡子体未结合态份额最高值为 12.8%、出现在 3 月, 最低值为 4.9%、出现在 5 月, 室外年平均值为 9.7%。氡子体平衡当量氡浓度范围为 3.1~9.3 Bq/m³, 未结

合态氡子体平衡当量氡浓度范围为 0.24~0.94 Bq/m³。

表 2 室外氡子体平衡当量氡浓度及未结合态份额测量结果

Table 2 Outdoor monthly measurement results of EEC_{Rn} and f_p

月份	$EEC_{Rn}/$ (Bq · m ⁻³)	$EEC_{Rn}^u/$ (Bq · m ⁻³)	$f_p/\%$
1	7.5±0.3	0.72±0.05	9.6±0.6
2	7.7±0.3	0.88±0.04	11.5±0.9
3	3.4±0.2	0.44±0.02	12.8±1.0
4	5.9±0.6	0.48±0.03	8.2±1.0
5	5.0±0.3	0.24±0.03	4.9±0.5
6	6.7±0.2	0.79±0.03	11.9±0.5
7	3.1±0.2	0.29±0.03	9.4±1.1
8	4.8±0.3	0.35±0.03	7.2±0.8
9	4.2±0.2	0.46±0.03	10.9±0.8
10	7.4±0.2	0.75±0.03	10.2±0.5
11	8.8±0.3	0.94±0.03	10.7±0.5
12	9.3±0.5	0.81±0.03	8.7±0.5

由表 1、2 可见, 室内氡子体未结合态份额在夏季(6、7、8 月)与其他季节相比偏低。在北方, 一年之中, 夏季是高温最湿的季节, 较高的湿度在物理机制上更易导致颗粒小的未结合态粒子凝聚, 从而降低未结合态份额; 而室外氡子体未结合态份额受外部环境因素影响剧烈, 波动较大, 未观察到明显的变化规律。但全年最低值出现在 5 月, 本研究室开展室外氡浓度连续监测多年, 全年月平均氡浓度最低值也出现在 5 月^[7], 5 月是北方大气安定度最低的月份, 平均风力最大、小粒子相对易扩散, 导致未结合态份额偏低。

总体上比较, 大多数月份室内氡子体未结合态份额较室外低, 且全年室内氡子体未结合态份额平均值低于室外。由于室内气溶胶浓度大, 且人为产生的气溶胶粒径较室外由光化合作用产生的气溶胶粒径大, 所以导致室内氡子体未结合态份额偏小。

2.2 室内氡子体未结合态份额日变化规律

在对室内氡子体平衡当量氡浓度和未结合态份额连续测量的结果中选取任意 4 d 的结果, 如图 1 所示。实验结果表明, 在 1 d 之中, 室内氡子体平衡当量氡浓度随光照、温度、换气等环境因素影响, 呈现出规律的波动, 经过一夜的累积, 在 8~10 点之间达到最大值, 随后逐渐减小, 在傍晚时降到最低。

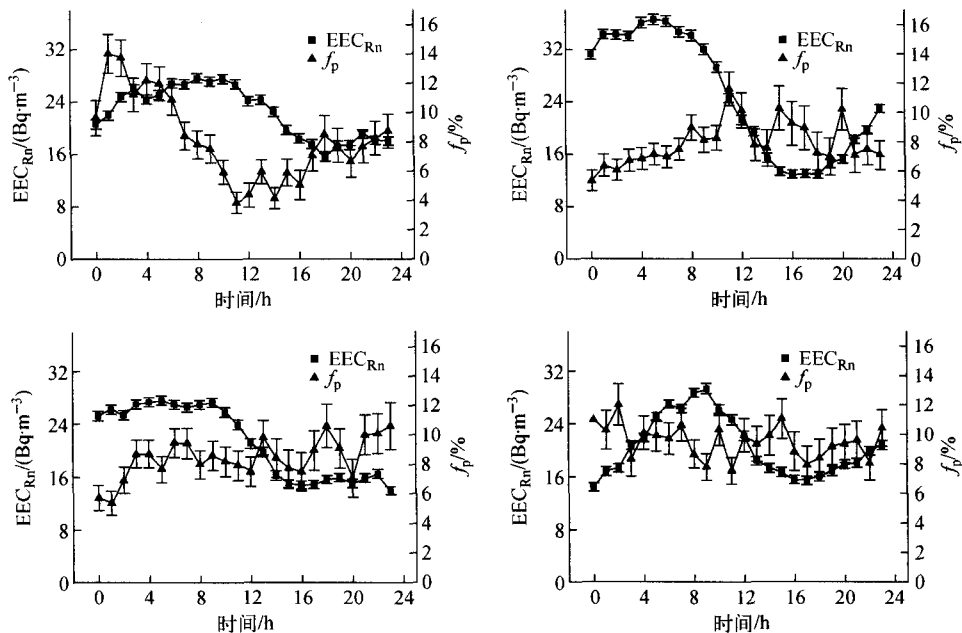


图1 室内氡子体平衡当量氡浓度和未结合态份额连续测量结果

Fig. 1 Indoor diurnal measurement results of EEC_{Rn} and f_p

由图1可见,1 d内氡子体未结合态份额在较大范围(3.9%~14.0%)内变动,尽管氡子体平衡当量氡浓度有较明显的日变化规律,但氡子体未结合态份额并没有随氡子体浓度的变化而呈现规律变化,这是由于未结合态份额容易受到室内气溶胶浓度、粒径分布、温湿度等更多环境因素的影响,很难呈现规律性波动。

3 结论

通过累积式氡子体未结合态份额采样装置对北京大学物楼室内外氡子体未结合态份额开展了为期1 a的定期测量,实测结果初步表明:室内氡子体未结合态份额的范围为6.4%~12.5%、均值为8.8%,室外氡子体未结合态份额范围为4.9%~12.8%、均值为9.7%;室内氡子体未结合态份额较室外偏低,且夏季室内未结合态份额较其他季节偏低;室外氡子体未结合态份额受环境因素影响大,波动大,大气安定度最低的5月份未结合态份额也最低,未观察到显著的年变化规律。

利用BWLM-PLUS-2S连续式氡子体测量仪对室内结合态与未结合态氡子体的平衡当量氡浓度开展了连续测量以观察日变化规律。观察到虽然室内氡子体平衡当量氡浓度在1 d内呈正弦曲线变化,但没有观察到氡子体未结合

态份额有规律性变化。

参考文献:

- [1] UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation[R]. Sweden: UNSCEAR, 2000.
- [2] National Research Council. Comparative dosimetry of radon in mines and homes[M]. Washington D. C.: National Academy Press, 1991.
- [3] WAIOLEK P T, JAMES A C. Unattached fraction measuring technique and radon lung dose[J]. J Environ Radioact, 2000, 51: 137-151.
- [4] REINEKING A, PORSTENDÖRFER J. Unattached fraction of short-lived Rn decay products in indoor and outdoor environments: An improved single-screen method and results[J]. Health Physics, 1990, 58(6): 715-727.
- [5] ZHANG Lei, ZHUO Weihai, GUO Qiuju, et al. An instrument for measuring the unattached fraction of radon progeny with etched track detectors[J]. J Radiol Prot, 2010, 30: 607-612.
- [6] TRACERLAB G H. Tracerlab: Radon presentation[EB/OL]. [2015-10-12]. <http://www.tracerlab.de/cataloge/index.htm>.
- [7] ZHANG Liang, ZHANG Liguu, GUO Qiuju. Long-term investigation of atmospheric radon concentration in Beijing, China[J]. J Radiol Prot, 2009, 29: 263-268.