



# 北京大学辐射防护科研组环境放射性核素研究进展

郭秋菊<sup>1,2</sup>

1. 北京大学物理学院技术物理系, 北京 100871;
2. 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

E-mail: qjguo@pku.edu.cn

2022-11-01 收稿, 2023-02-03 修回, 2023-02-10 接受, 2023-02-13 网络版发表

国家自然科学基金(项目号10175007, 10475006, 10775007, 11075009, 11275015, 11475009, 11775009, 12075009, 12275008)资助

**摘要** 展示了北京大学技术物理系辐射防护科研组自成立以来在环境放射性核素研究领域的发展历程, 介绍了部分代表性工作. 其中, 针对天然辐射照射中剂量最大的贡献者——氡及其子体相关领域, 开展了以剂量评价和探究其环境行为为目的的一系列测量方法和技术研究, 特别是对大气氡、水体氡和土壤氡活度浓度的在线连续测量成果进行了重点阐述, 建立的便携式测量技术使氡子体连续测量和放射性气溶胶粒径分布现场测量成为可能. 在与核军工和核电反应堆密切相关的人工放射性核素方面, 着重介绍了围绕环境中以痕量水平存在的钚核素开展的同位素精准测量和迁移行为研究工作. 作为现场测量与评价研究, 本文还介绍了针对我国唯一的重水堆核电基地外围环境开展的<sup>14</sup>C测量、水平分布和剂量贡献的研究成果.

**关键词** 辐射防护, 氡及氡子体, 辐射测量, 剂量评价, 钚核素, <sup>14</sup>C

辐射防护与环境保护从诞生时起, 其学科的天然属性就是为核能及核技术应用发展“保驾护航”. 面向伴随电离辐射照射的不同实践场景, 确保人员与环境的辐射安全是本领域科学研究的最终目的. 关注环境中存在的放射性核素, 认识放射性核素在环境介质中的水平和行为规律, 估算评价放射性核素所致公众或职业人员的辐射剂量, 是该领域研究内容中重要的组成部分.

北京大学技术物理系辐射防护科研组研究重心聚焦在与一般公众的辐射安全关系最为密切的天然放射性核素氡及其子体相关内容, 研究建立了以研究氡及其子体环境行为及剂量估算为目的的完整的测量体系, 实现了对氡剂量转换系数相关核心参数的现场实测, 发表的氡子体未结合态份额参数和粒径分布数据被本领域国际辐射单位和测量委员会(International Com-

mission of Radiation Units and Measurements, ICRU)作为中国数据引用. 同时, 对来源于20世纪大气层核爆实验的人工放射性核素钚同位素及我国重水反应堆核电基地外环境中<sup>14</sup>C, 从痕量水平测量方法建立到分布规律进行了细致描述.

## 1 氡及子体

铀系衰变链中唯一的气体核素氡(<sup>222</sup>Rn)及其短寿命子体(<sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi和<sup>214</sup>Po)是公众所受天然本底辐射照射中剂量最大的贡献者, 占天然辐射照射总剂量50%以上<sup>[1]</sup>. 与其他放射性核素所致辐射照射的防护相比, 氡辐射照射在辐射防护体系中一直被单独对待, 国际放射防护委员会(International Committee on Radiological Protection, ICRP)关于“以单独的方式处理氡问题”给出的解释是“氡有特殊的剂量学问题和流行病学

引用格式: 郭秋菊. 北京大学辐射防护科研组环境放射性核素研究进展. 科学通报, 2023, 68

Guo Q J. Research progress on environmental radionuclides by the Radiation Protection Research Group, Peking University (in Chinese). Chin Sci Bull, 2023, 68, doi: 10.1360/TB-2022-1118

问题”<sup>[2]</sup>. 至今关于氡的辐射健康影响有明确结论, 世界卫生组织(World Health Organization, WHO)指出, 氡辐射照射是可原发性导致肺癌的物理诱因, 是仅次于吸烟的第二大致公众肺癌诱因<sup>[3]</sup>. 然而, 氡及其子体因衰变形式的复杂多样, 是构成低层大气天然辐射本底的主要成分, 在环境辐射监测中, 又是人工核素测量的重要干扰因素, 因此研究及理解氡及子体的环境行为, 在辐射危险评价和环境辐射监测上均有重要的学术意义和实际应用价值. 氡是放射性惰性气体, 因其适中的半衰期(3.825 d)是理想的示踪剂, 近年来在大气科学、水文学、地质学以及地震火山活动预报等多领域有着日益广泛的应用<sup>[4]</sup>.

氡及子体相关研究涉及领域广泛, 须面向实际应用, 解决回答不同的问题. 以下分别从氡气和放射性气溶胶氡子体两个方面, 论述辐射防护科研组开展的主要工作.

### 1.1 氡活度浓度连续测量研究

氡(<sup>222</sup>Rn)来源于自然界中无处不在的<sup>226</sup>Ra核素的衰变, 其活度浓度水平在不同场所分布非常不同. 依据联合国原子辐射效应科学委员会(United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR)<sup>[1]</sup>, 氡浓度在低层室外空气中可降至1 Bq/m<sup>3</sup>左右, 室内空气中平均水平为40 Bq/m<sup>3</sup>, 在通风状态不好的地下空间则为10<sup>3</sup>~10<sup>4</sup> Bq/m<sup>3</sup>, 土壤中氡浓度通常在10<sup>4</sup>~10<sup>5</sup> Bq/m<sup>3</sup>, 而锦屏地下实验室中国暗物

质实验组需要探测的氡浓度是μBq水平. 可以看出, 氡浓度在不同环境或介质中, 如空气、土壤或水体, 其水平会相差数个数量级. 为满足不同场景、不同领域的实际需求, 我们研发了基于静电采集结合硅片半导体(Si-PIN)α能谱测量的系列连续测量装置, 实现了野外无人值守条件下大气、土壤和水体中氡浓度在线自动连续测量<sup>[5-7]</sup>. 我国生态环境部颁布的《环境空气中氡的测量方法》(HJ 1212-2021)是氡测量领域的重要文件, 该标准推荐了四种测量技术, 我们采用的静电采集法是其中之一.

图1~3分别是大气<sup>[5]</sup>、土壤<sup>[6]</sup>和水体<sup>[7]</sup>氡浓度在线连续测量装置的原理结构图. 需要说明的是, 关于水体氡连续测量, 如果水流速稳定, 可以让水体直接经流底部脱气系统, 水流不稳定时则需采用外置水泵以确保稳定的脱气率.

辐射防护科研组针对不同需求研发的在线氡浓度连续测量装置被多个单位在不同环境中开展了现场长期在线连续测量, 检验了测量装置的环境适应性, 近年来已经逐渐在国内辐射环境监测系统, 如三门和阳江核电基地辐射环境监测前沿站、北京辐射监测中心, 以及国家地震预报系统等得到实际应用, 开展无人值守的野外长期连续监测.

### 1.2 放射性气溶胶氡子体相关测量研究

氡相关辐射危害主要贡献者不是氡气, 而是以放射性气溶胶形式存在的氡子体, 估算其辐射剂量的核

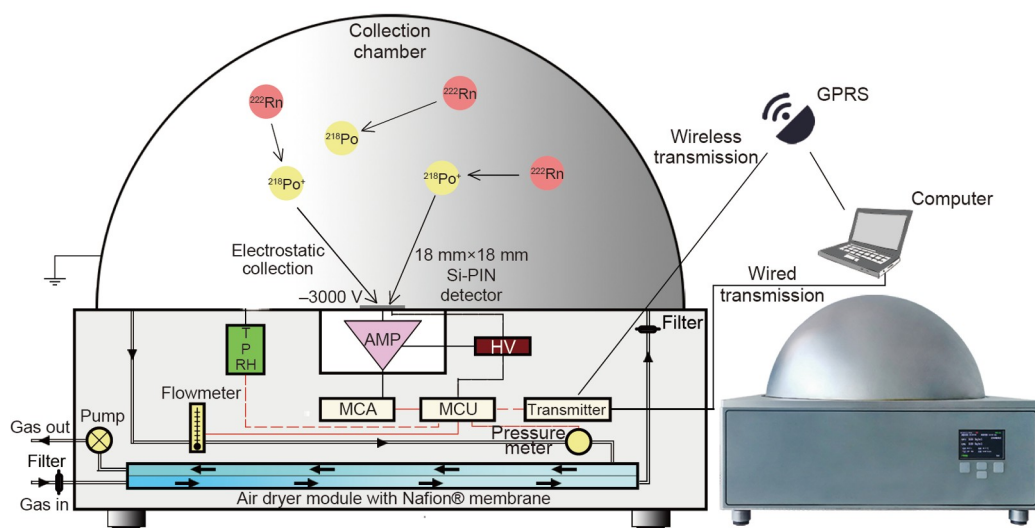


图1 大气氡浓度在线连续测量装置原理及结构示意图<sup>[5]</sup>

Figure 1 Schematic diagram and photo of the in site atmospheric radon monitor<sup>[5]</sup>

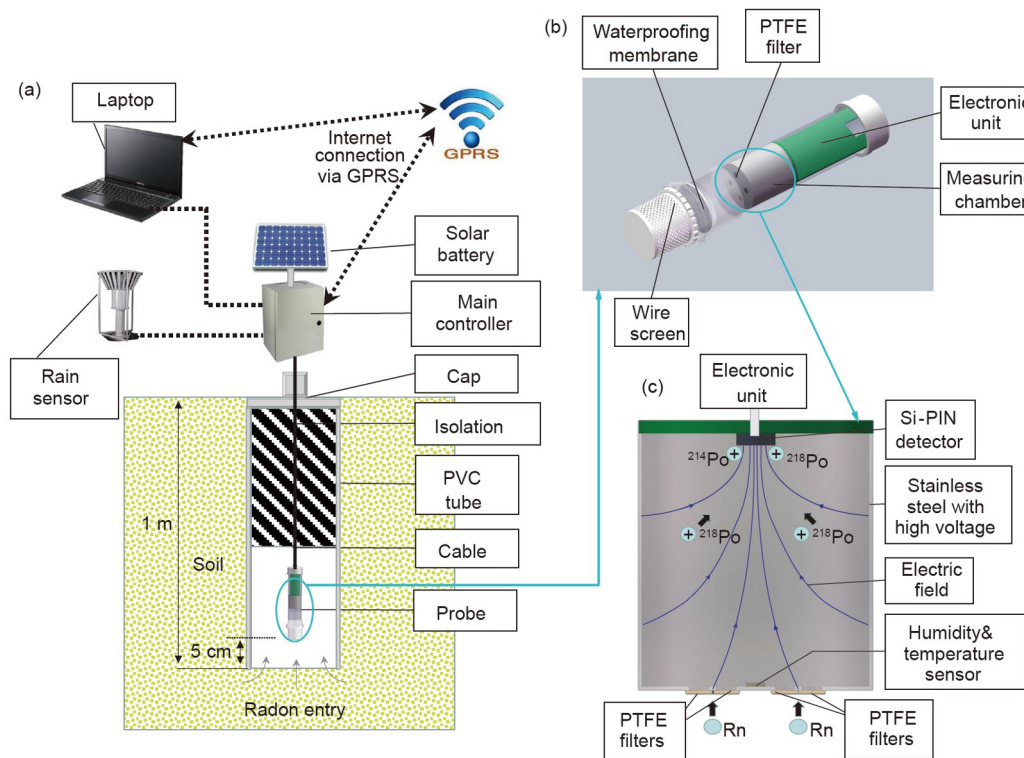


图2 土壤氡浓度在线连续测量装置原理及结构示意图<sup>[6]</sup>。(a) 土壤氡测量系统示意图；(b) 氡探测器结构图；(c) 静电采集腔示意图  
 Figure 2 Principle and structure diagram of the continuous on-line measuring device for soil radon concentration<sup>[6]</sup>。(a) Schematic graph of the radon-in-soil measurement system. (b) Structure chart of the radon probe. (c) Schematic map of the electrostatic collection chamber

心参数是剂量转换系数(dose conversion factor, DCF), 即由暴露量换算成有效剂量的参数( $mSv/(Bq \cdot h \cdot m^{-3})$ )。关于该核心参数的获得, 国际放射防护委员会于2010年明确指出, 氡剂量转换系数, 应该同其他放射性核素一样, 采用剂量学模式估算, 并依据不同环境中氡子体物理特征参数计算典型场所的剂量转换系数<sup>[8]</sup>。这里的

氡子体特征参数主要包括未结合态份额、气溶胶粒径分布和子体比值等描述环境空气中放射性气溶胶状态的物理参数。相比于氡气体测量, 氡子体测量更具有挑战性, 特别是现场真实环境中这些特征参数的测量, 因方法学限制, 至今我国现场实测开展有限, 在估算剂量时多采用国际组织的推荐值。

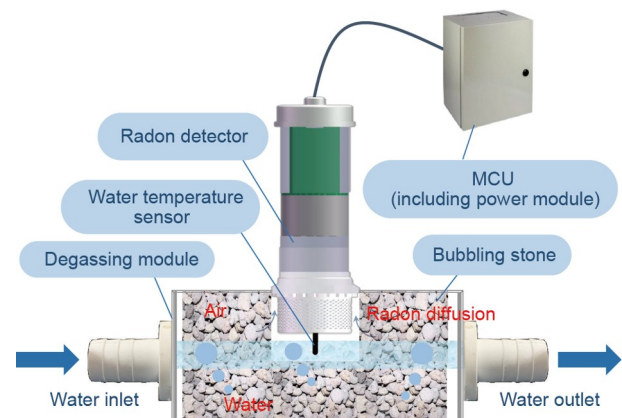


图3 水体中氡浓度在线连续测量装置示意图<sup>[7]</sup>  
 Figure 3 Schematic diagram of the system for continuous measurements of radon in-water<sup>[7]</sup>

毋庸置疑, 开展现场长期连续监测对研究氡子体环境行为规律有绝对优势, 为此辐射防护科研组研发了步进走纸式氡子体测量仪<sup>[9,10]</sup>, 实现了野外环境中对氡子体浓度在线自动连续监测, 其原理结构图及照片见图4<sup>[11]</sup>。为验证仪器环境适应性, 在生态环境部辐射环境监测项目资助下开展了为期一年的现场实测, 图5是部分测量结果<sup>[11]</sup>, 在国内实现了大气氡子体浓度长期连续观察。如果把北京地区大气测量结果当作我国北方典型环境代表值, 如图5(a)结果所示, 氡子体浓度为 $4.9 \pm 2.7 Bq/m^3$ , 与UNSCEAR推荐值的世界均值 $5 Bq/m^3$ 非常吻合。

作为空气中的颗粒物, 放射性气溶胶粒径大小决定其吸入体内后在呼吸道的沉积位置, 因此粒径分布是剂量转换系数估算最重要的参数。鉴于测量方法和

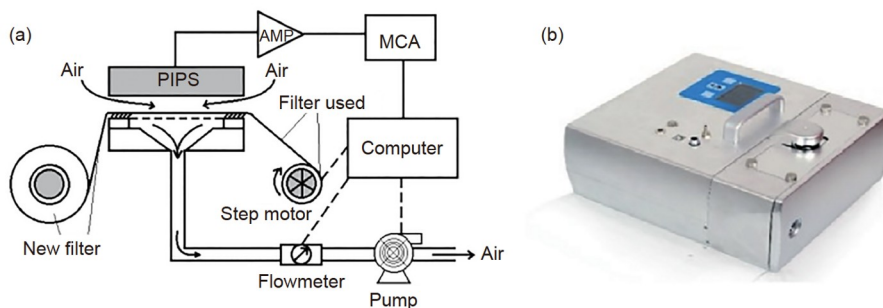


图 4 步进走纸式氡子体连续测量装置原理结构示意图(a)及照片(b)<sup>[11]</sup>  
 Figure 4 The sketch (a) and the photo (b) of the step-advanced filter monitor for radon progeny continuous measurements<sup>[11]</sup>

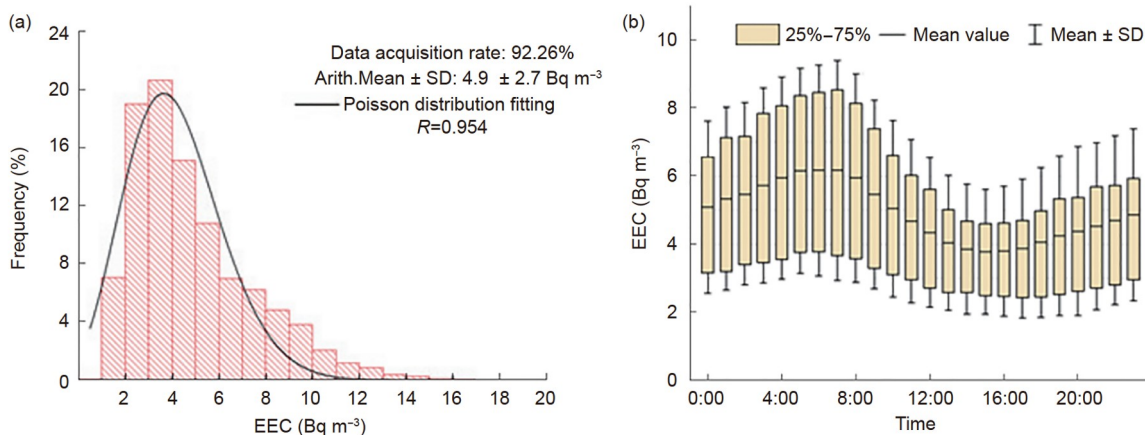


图 5 氡子体浓度分布(a)及其日变化规律(b)(2018年10月~2019年9月, 北京)<sup>[11]</sup>  
 Figure 5 The frequency distribution of Rn progeny (a) and its diurnal variation (b) from October 2018 to September 2019, Beijing<sup>[11]</sup>

技术上的挑战, 长期以来通过对放射性粒子直接测量, 计算得到室内空气中氡子体粒径分布的工作开展得非常有限. 辐射防护科研组研究建立了基于丝网扩散组法的8通道新型测量系统, 可同时对未结合态份额 (<5nm)、粒径大于2.5 μm份额、活度粒径分布及各子体活度浓度进行测量, 原理结构图和照片见图6<sup>[12]</sup>. 这是国内首台可同时获取估算剂量转换系数相关多个参数的测量装置, 该装置便携可移动, 有望为今后我国室内空气环境中氡剂量的准确评价做出贡献.

## 2 钚核素

环境中重要人工核素测量及其迁移行为规律研究是辐射安全评价的基础. 钚是与核军工和核电反应堆密切相关的超铀元素. 我国西北地区表层土壤中存在的钚的来源, 既包括大气层核爆实验产生的全球沉降的放射性落下灰, 主要是<sup>239+240</sup>Pu, 也可能包括我国20世纪后叶在西北地区进行不同当量大气层核爆实验导

致的局部沉降. 核爆当量不同或反应堆运行时间不同, 会导致<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比值不同. 该比值可以用来甄别判断环境中钚可能的来源, 因此被称为“核指纹”, 这使得钚测量具有重要的应用价值. 2011年3月日本福岛核事故发生后, 依据土壤中<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比值, 判断了放射性核素主要来自哪个反应堆的堆芯释放. 早期研究使用的α能谱测量不能分辨这两个关键核素, 只能给出它们的总活度浓度. 近年来, 质谱测量技术的发展不仅使得探测下限更低, 让<sup>240</sup>Pu和<sup>239</sup>Pu这两个关键核素的甄别测量也成为可能<sup>[13]</sup>.

辐射防护科研组在国内最早实现了基于电感耦合等离子体质谱法(inductively coupled plasma-mass spectrometry, ICP-MS)的痕量水平钚核素测量, 并围绕西北和西南地区进行土壤表层和纵向采样, 开展了系统研究, 从实测数据中获得了认识我国环境中钚这个与核军工和核能利用密切相关的锕系元素有重要意义的结果<sup>[14-16]</sup>. 例如, 图7显示酒泉地区土壤中<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原

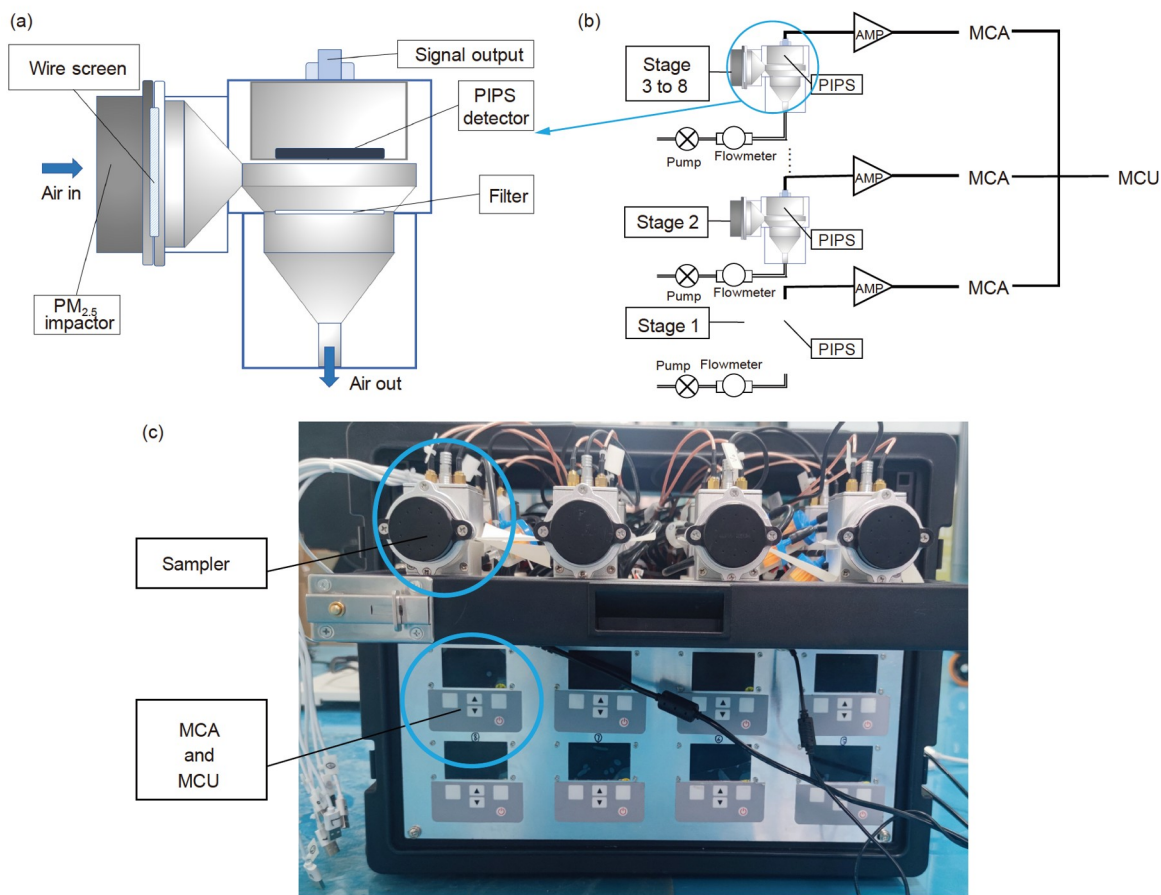


图 6 氡子体粒径测量装置<sup>[12]</sup>. (a) 采样系统; (b) 测量系统; (c) 装置外貌  
 Figure 6 The measurement device for particle sizes of radon progeny<sup>[12]</sup>. (a) Sampler part; (b) measurement system; (c) device appearance

子比明显低于全球沉降比值, 说明该地区可能有来自我国核试验场的区域性贡献<sup>[17]</sup>. 同时, 还对我国西南地

区土壤中钚迁移行为进行预测, 得到了如下重要结论: 钚垂直扩散迁移速率非常缓慢, 来自全球沉降的钚, 50年后绝大部分仍然在上层10 cm土壤中, 而500年后会到达约半米深处<sup>[18]</sup>. 所有这些结果无疑会为高放废物地质处置的安全评价提供科学依据.

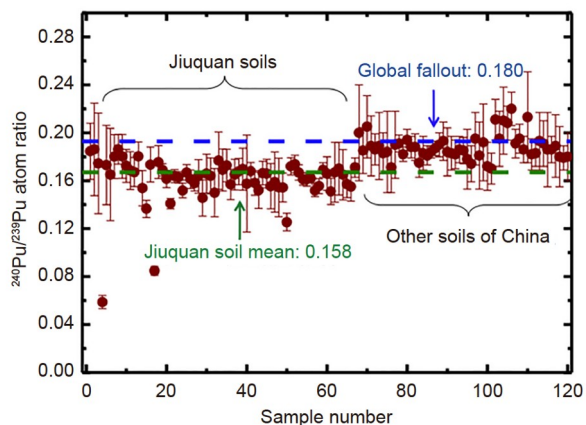


图 7 酒泉地区和其他地区土壤中<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比分布<sup>[17]</sup>  
 Figure 7 <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu atom ratios in Jiuquan soil samples and other soil samples<sup>[17]</sup>

### 3 核电基地外围的<sup>14</sup>C

<sup>14</sup>C是核电反应堆正常运行时对公众辐射剂量贡献最大的核素, 是辐射环境安全评价中最重要的核素之一. 核电基地外围环境中<sup>14</sup>C测量, 是公众剂量评价的基础, 是辐射环境监管中的常规测量项目. 秦山核电基地是我国核电领域唯一的重水堆核电基地, 相比轻水堆, 重水堆<sup>14</sup>C产率更高. 为研究重水堆运行30年后外围环境中<sup>14</sup>C水平变化和分布规律, 辐射防护科研组借助北京大学重离子物理研究所小型<sup>14</sup>C样品测量加速器质谱仪, 将采集的环境样品, 包括代表性植物、空气、

食物和地表水等,通过氧化还原等复杂制样过程制成石墨,压入加速器测量用靶盘进行测量。

相比液闪等常规测量手段,加速器质谱(accelerator mass spectrometry, AMS)方法可达到极低的探测水平,这一更加灵敏的探测手段帮助我们观察到了常规手段观测不到的新现象<sup>[19-21]</sup>。其中,对重水堆气体排放口下风向地区30年树龄的树轮中<sup>14</sup>C水平测量结果见图8<sup>[19]</sup>,这不仅在较长时间尺度上表征了我国空气中<sup>14</sup>C水平的变化规律,也验证了对核设施<sup>14</sup>C排放开展回溯性测量评价的可行性。

#### 4 总结与展望

在今天确保能源安全以及实现“双碳”目标的国家发展战略导向下,核能与核技术应用发展势头强劲。辐射防护科研组多年来结合国内本领域现状,在我国土壤中重要超铀核素钚、核电基地外围环境中<sup>14</sup>C,特别是围绕室内外环境中氡及子体,在精准测量方法实现和这些重要放射性核素水平及环境行为规律上开展了深入系统研究。氡及子体测量相关技术转变成了有良好环境适应性的测量仪器,逐渐被应用在实践中。

关于室内环境中氡辐射防护问题,世界卫生组织在2009年底明确指出室内氡暴露是导致公众肺癌的第二大致癌诱因的同时,建议各国政府相关机构开展旨在降低全民及个人氡暴露危险的国家氡行动计划(Na-

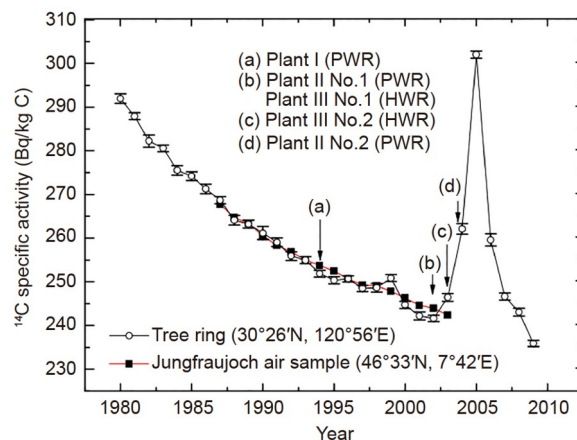


图8 样品树树轮中<sup>14</sup>C活度与北半球<sup>14</sup>C本底值比较<sup>[19]</sup>  
Figure 8 The <sup>14</sup>C-specific activity of pine tree rings compared with <sup>14</sup>C activity in the air of the northern hemisphere<sup>[19]</sup>

tional Radon Action Plan)<sup>[3]</sup>。国际放射防护委员会<sup>[22]</sup>以及国际原子能机构(International Atomic Energy Agency, IAEA)<sup>[23]</sup>均积极响应,呼吁各国政府采取行动,对氡辐射危险开展测量调查和评价测量。辐射防护科研组计划采用自己研发建立的氡及子体相关测量技术,针对剂量转换系数估算的核心参数,在我国典型环境中开展测量,给出具有我国室内环境特点的氡子体重要物理参数,为我国氡暴露剂量的准确评价做出自己的贡献。

#### 参考文献

- 1 United Nations Committee on the Effects of Atomic Radiation. UNSCEAR 2006 Report to the General Assembly, with Scientific Annex E: Sources-to-effects assessment for radon in homes and workplaces. New York, 2006
- 2 International Committee of Radiological Protection. Lung Cancer Risk from Radon and Progeny and Statement on Radon. ICRP Publication 115, 2010
- 3 World Health Organization. Who handbook on indoor radon: A public health perspective. France, 2009
- 4 Baskaran M. Radon: A Tracer for Geological, Geophysical and Geochemical Studies. Cham: Springer, 2016. 63–80
- 5 Zhang L, Mao Y, Wang H, et al. Upgrade of a highly sensitive monitor for atmospheric radon measurement. *Atmosphere*, 2021, 12: 1257
- 6 Wang H, Zhang L, Wang Y, et al. New-designed in-situ measurement system for radon concentration in soil air and its application in vertical profile observation. *J Nucl Sci Tech*, 2022, 59: 222–229
- 7 He C, Zeng Z, Zhang L, et al. A new-designed system for continuous measurement of radon in water. *Appl Radiat Isotopes*, 2022, 187: 110320
- 8 International Committee of Radiological Protection. Occupational Intakes of Radionuclides: Part 3. ICRP Publication 137, 2017
- 9 Yang J, Zhang L, Abdumomin K, et al. Study on peak shape fitting method in radon progeny measurement. *Radiat Prot Dosim*, 2015, 167: 115–120
- 10 Zhang L, Wang Y, Guo Q, et al. New development of radon progeny measurement method based on alpha-beta spectrometry. *Radiat Prot Dosim*, 2019, 184: 453–456
- 11 Zhang L, Wang Y, Guo Q. One-year continuous measurement of outdoor radon progeny concentration in Beijing area. *J Radiat Prot Res*, 2020, 45: 95–100
- 12 Wang H, Yang J, Sun C, et al. Newly designed measurement system for the radon progeny activity size distribution based on screen diffusion battery. *Radiat Meas*, 2022, 159: 106865

- 13 Dong W. Plutonium isotopes in the environment: Distributions and behaviors (in Chinese). Doctor Dissertation. Beijing: Peking University, 2010 [董微. 放射性同位素钚在环境中的分布与行为研究. 博士学位论文. 北京: 北京大学, 2010]
- 14 Dong W, Tims S G, Fifield L K, et al. Concentration and characterization of plutonium in soils of Hubei in central China. *J Environ Radioact*, 2010, 101: 29–32
- 15 Ni Y, Wang Z, Guo Q, et al. Distinctive distributions and migrations of  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  in Chinese forest, grassland and desert soils. *Chemosphere*, 2018, 212: 1002–1009
- 16 Li S, Ni Y, Guo Q. Sources and variability of plutonium in Chinese soils: A statistical perspective with moving average. *Atmosphere*, 2022, 13: 769
- 17 Bu W, Ni Y, Guo Q, et al. Pu isotopes in soils collected downwind from Lop Nor: Regional fallout vs. global fallout. *Sci Rep*, 2015, 5: 12262
- 18 Bu W, Zheng J, Guo Q, et al. Vertical distribution and migration of global fallout Pu in forest soils in southwestern China. *J Environ Radioact*, 2014, 136: 174–180
- 19 Wang Z, Xiang Y, Guo Q.  $^{14}\text{C}$  levels in tree rings located near Qinshan Nuclear Power Plant, China. *Radiocarbon*, 2012, 54: 195–202
- 20 Wang Z, Hu D, Xu H, et al.  $^{14}\text{C}$  distribution in atmospheric and aquatic environments around Qinshan Nuclear Power Plant, China. *Radiocarbon*, 2014, 56: 1107–1114
- 21 Wang Z, Xiang Y, Guo Q. Terrestrial distribution of  $^{14}\text{C}$  in the vicinity of Qinshan Nuclear Power Plant, China. *Radiocarbon*, 2013, 55: 59–66
- 22 International Committee of Radiological Protection. Radiological Protection against Radon Exposure. ICRP Publication 126, 2014
- 23 International Atomic Energy Agency. Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards. Vienna, 2014

Summary for “北京大学辐射防护科研组环境放射性核素研究进展”

## Research progress on environmental radionuclides by the Radiation Protection Research Group, Peking University

Qiuju Guo<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Department of Technical Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China;

<sup>2</sup> State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China

E-mail: [qjguo@pku.edu.cn](mailto:qjguo@pku.edu.cn)

This paper presents a simple review of the progress and primary achievements of the radiation protection laboratory over its two decades of research. The main research subjects of the laboratory are naturally occurring radionuclides, their environmental behaviors, and the dose evaluation of radon exposure to the public. We developed several precise measurement methods for real environmental surveys and investigations on radon and its progeny. Furthermore, to support related research fields that use radon as a radioactive tracer, in situ continuous measurement techniques for radon in the atmosphere, soil, and water bodies were established. A one-year continuous measurement provided the typical year average ( $4.9 \pm 2.7 \text{ Bq/m}^3$ ) of radon progeny concentration in Beijing, which is consistent with the world average ( $5 \text{ Bq/m}^3$ ) recommended by UNSCEAR. Furthermore, for artificial radionuclides, we conducted wide research on Pu isotopes in Chinese environments. Our study focused on the development of analytical methods for the analysis of Pu in various environmental samples based on ICP-MS. Moreover, we investigated Pu distribution in the downwind area of the Lop Nor nuclear test site and assessed the vertical distributions and migration of Pu in the soil in Southwest China. In the Jiuquan region, we collected surface and core soil samples and determined the  $^{239+240}\text{Pu}$  activities and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in these to assess the level of Pu contamination and the sources of Pu in this region. Using Pu isotopes from the Chinese nuclear tests, we found that in most Jiuquan soil samples, the  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios were below the global fallout value, suggesting this area was contaminated by Pu isotopes from the Chinese nuclear test sites. The average  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratio in the soil samples was  $\sim 0.16$ . Besides plutonium,  $^{14}\text{C}$  is another artificial radionuclide we investigated.  $^{14}\text{C}$  is a radioisotope produced as a byproduct in various nuclear facilities and released in the environment under normal operation; it is considered the main dose contributor to the public, making it one of the most important radioisotopes in environmental radiation evaluation. The  $^{14}\text{C}$  analysis of the tree ring samples collected 2 km away from Qinshan NPP revealed that the enhanced values were primarily owing to  $^{14}\text{C}$  discharged from two heavy reactors of Plant III. Moreover, a good correlation existed between the  $^{14}\text{C}$  discharged from Plant III in the growing season and the increased concentration of  $^{14}\text{C}$ . We found that almost all  $^{14}\text{C}$  released from Qinshan NPP was deposited within a radius of 6.5 km in 2010, and the maximal  $^{14}\text{C}$  specific activity of most samples is  $265.6 \text{ Bq/kg C}$ , which is  $41.8 \text{ Bq/kg C}$  higher than that of the background. For dose contribution to the public, the effective dose resulting from the  $^{14}\text{C}$  discharged from Qinshan NPP was estimated to be  $0.5 \mu\text{Sv}$  in 2010, which is negligible compared with the annual dose limit for the public ( $0.25 \text{ mSv}$ ).

**radiation protection, radon and its progeny, radiation measurement, dose evaluation, plutonium,  $^{14}\text{C}$**

doi: [10.1360/TB-2022-1118](https://doi.org/10.1360/TB-2022-1118)