

肖德涛 著

氡的被动积分测量

和 剂量估算

原子能出版社

氫的被动积分测量和剂量估算

肖德涛 著

原子能出版社

图书在版编目(CIP)数据

氡的被动积分测量和剂量估算/肖德涛著. —北京: 原子能出版社, 2002.12
ISBN 7-5022-2728-8

I. 氡… II. 肖… III. 氡-积分剂量-测量 IV. R144.1

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2002)第 039241 号

内 容 简 介

发展被动积分测 ^{220}Rn 方法及 ^{220}Rn 子体所致有效剂量方法,对弥补环境 ^{220}Rn 及其子体评价方法研究的不足,满足环境评价对监测方法测量结果的代表性、可靠性等技术要求,保护生态环境,保障公众健康具有十分重要的意义。本书可供从事辐射防护及环境保护专业的科技人员、大专院校有关专业师生参考。

氡的被动积分测量和剂量估算

出版发行 原子能出版社(北京市海淀区阜成路 43 号 100037)

责任编辑 周 欣

责任校对 李建慧

责任印制 刘芳燕

印 刷 中国文联印刷厂

开 本 850 mm×1168 mm 1/32

字 数 103 千字

印 张 4.125

版 次 2002 年 12 月第 1 版 2002 年 12 月第 1 次印刷

书 号 ISBN 7-5022-2728-8

印 数 1—300 定 价 10.50 元

版权所有 侵权必究

前 言

近年来, ^{220}Rn 的测量已引起国内外新的关注,有关环境 ^{220}Rn 水平调查的兴趣呈现明显上升趋势。发展被动积分测 ^{220}Rn 方法及 ^{220}Rn 子体所致有效剂量估算方法,对弥补环境 ^{220}Rn 及其子体评价方法研究的不足,满足环境评价对监测方法测量结果的代表性、可比性、可靠性等的技术要求,进行环境 ^{220}Rn 水平经常性监测与评价,保护生态环境,保障公众健康具有十分重要的意义。

本书共分七章。第一章,介绍了开展环境 ^{220}Rn 水平监测与评价研究的背景和意义。在第二章 ^{220}Rn 及其子体的来源、描述及特性中,介绍了环境空气中 ^{220}Rn 的主要来源、描述 ^{220}Rn 及其子体的一些基本物理量、 ^{220}Rn 及其子体的行为等。第三章至第六章介绍了研究的用于被动积分测 ^{220}Rn 剂量计刻度的简易 ^{220}Rn 室及其性能、平行测氦 ^{220}Rn 方法、吸收体测 ^{220}Rn 方法、驻极体灵敏测 ^{220}Rn 方法、用 ^{220}Rn 暴露量估算 ^{220}Rn 子体所致有效剂量方法以及它们的初步应用。第七章,总结了已取得的主要研究成果,分析了存在的主要问题,提出了以后的主要研究方向。

本书总结了作者近年来取得的主要研究成果。作者在做博士课题和此书的写作过程中,得到了恩师潘自强院士、凌球教授、董柳灿教授的悉心指导,部分研究工作得到了国家自然科学基金委经费支持,还得到了中国科学院原子能研究院保健物理部夏益华教授的支持和鼓励,香港大学物理系梁干庄博士的支持与帮助。在此,谨向以上诸位表示诚挚的谢意!

本书可供从事辐射防护及环境保护专业的科技人员、大专院校有关专业师生参考。

由于作者水平有限,书中可能存在不少缺点和错误,恳请读者批评指正。

肖德涛

2002年6月于南华大学

目 录

第一章 引言	(1)
1.1 人类所受到的天然辐射照射现状	(1)
1.2 人们对氡和 ^{220}Rn 的防护认识	(3)
1.3 ^{220}Rn 及其子体测量方法的发展现状	(6)
1.4 ^{220}Rn 的被动积分测量与剂量估算方法研究的 意义	(7)
第二章 ^{220}Rn 及其子体的来源、描述及特性	(10)
2.1 ^{220}Rn 及其子体的来源	(10)
2.2 ^{220}Rn 及其子体的描述	(16)
2.3 ^{220}Rn 及其子体的特性	(18)
第三章 简易 ^{220}Rn 室的研究	(24)
3.1 简易 ^{220}Rn 室的组成	(24)
3.2 闪烁室测 ^{220}Rn 浓度的刻度系数 K_{Th} 的 确定方法	(26)
3.3 ^{220}Rn 室参考 ^{220}Rn 浓度的标定方法	(33)
3.4 简易 ^{220}Rn 室的性能	(35)
3.5 讨论	(36)
第四章 被动积分测 ^{220}Rn 方法的研究	(40)
4.1 氡、 ^{220}Rn 剂量计	(41)
4.2 平行测量氡、 ^{220}Rn 的方法	(42)
4.3 加吸收体测 ^{220}Rn 的方法	(47)
4.4 驻极体灵敏积分测 ^{220}Rn 方法	(51)
4.5 剂量计的刻度	(54)

4.6	剂量计的探测下限	(56)
4.7	讨论	(57)
第五章	由 ^{220}Rn 暴露量估算 ^{220}Rn 子体所致有效剂量方法的研究	(63)
5.1	室内 ^{220}Rn 及其子体的分布规律	(67)
5.2	由 ^{220}Rn 暴露量 $I_E(z)$ 估算 ^{220}Rn 子体所致有效剂量 E	(75)
5.3	剂量估算方法相关问题的讨论	(76)
第六章	被动积分测 ^{220}Rn 方法的初步应用	(82)
6.1	环境 ^{220}Rn 水平的初步调查	(83)
6.2	用吸收体法测 ^{220}Rn 剂量计进行介质表面 ^{220}Rn 析出率的测量	(88)
6.3	室内外无空气交换时 ^{220}Rn 及其子体分布的测量	(94)
第七章	总结与展望	(96)
7.1	总结	(96)
7.2	展望	(98)
参考文献		(99)
附录 I	五段法计算 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 子体浓度及其潜能浓度的计算程序	(107)
附录 II	^{220}Rn 对氡析出率测量的影响	(114)
附录 III	墙体表面 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 析出率的理论模拟	(125)

第一章 引言

1.1 人类所受到的天然辐射照射现状

UNSCEAR 在其 1993 年报告《电离辐射源与效应》中对人类受到的各种电离辐射所致剂量进行了估算,结果列于表 1.1。

表 1.1 在 50 年期间内连续照射或 1945 年到 1992 年发生的事件使世界人口接受的集体剂量^[1]

辐射源	基 础	集体有效剂量 $10^6 \text{ 人} \cdot \text{Sv}$
天然辐射源	50 年的现实比率	650
医疗照射	50 年的现实比率	
诊断		90
治疗		75
大气核武器实验	已完成的实践所产生的负担	30
核动力	迄今为止所产生的负担	0.4
	50 年的现实比率	2
严重事故	迄今为止各种事件产生的负担	0.6
职业照射	50 年的现实比率	
医疗		0.05
核动力		0.12
工业用途		0.03
防务活动		0.01
非铀采矿		0.4
总计(所有职业)		0.6

从表 1.1 可知,在人类所受到的各种辐射照射中,天然辐射是主要的,其产生的辐射照射集体剂量占总集体剂量的 76.6%。由于自古以来人类就受到天然辐射源的照射,已习以为常,故对天然辐射源照射的防护考虑较少(与对人工辐射源照射的防护考虑比较)。但就辐射对人体的作用看,天然辐射与人工辐射并无本质上的差别。可见研究天然辐射源的防护是有必要的。

文献[2]从辐射防护的观点出发,将天然辐射分为不可控制的、难控制的和可控制的三部分,它们所产生的天然辐射有效剂量当量及相应的百分比列于表 1.2。

表 1.2 公众所受天然辐射有效剂量($\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$)及相应的百分比

性 质	射线源	世界		中国	
		有效剂 量当量	百分比	有效剂 量当量	百分比
不可控制的	宇宙射线(外照射)	0.38	16.1	0.317	13.8
	^{40}K (内照射)	0.17	7.2	0.17	7.4
难控制的	除 ^{40}K 外的其他核素 (内照射)	0.075	3.2	0.17	7.4
可控制的	陆地 γ 辐射(外照射)	0.46	19.5	0.54	23.5
	氦及短寿命子体(内照 射)	1.2	51	0.916	39.9
	^{220}Rn 及短寿命子体 (内照射)	0.07	3.0	0.185	8

从表 1.2 可知,人类所受到的天然辐射有效剂量的大部分是可控制的,像陆地 γ 辐射、氦 ^{220}Rn 及其短寿命子体,它们所产生的有效剂量占了七成多,其中氦 ^{220}Rn 及其子体所产生的有效剂量占了约五成。由此可见,对天然辐射源氦、 ^{220}Rn 及其短寿命子体的防护研究是很重要的。

1.2 人们对氡和 ^{220}Rn 的防护认识

尽管氡射气(氡-222, ^{222}Rn)和钍射气(钍-220, 又称氡)同为氡(Radon)的重要同位素,但钍射气的半衰期($T_{1/2, \text{Th}} = 55.6 \text{ s}$)比氡的半衰期($T_{1/2, \text{Rn}} = 3.823 \text{ d}$)短得多,它在介质中迁移的有效距离较氡的短得多,因此 ^{220}Rn 较容易阻挡。正因为如此,砖混结构的建筑物若内墙表面用内墙漆进行涂装,墙体中的 ^{220}Rn 很难扩散进入室内,室内 ^{220}Rn 水平一般较低,所以 UNSCEAR1993 年报告中给出的 ^{220}Rn 及其子体产生的有效剂量仅为氡及其子体的 6%^[1]。再加上在 ICRP 第 39 号出版物《限制公众遭受天然辐射源照射的原则》中,提出了室内氡的行动水平($\text{EEC} = 200 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)^[3],在 ICRP 第 65 号出版物《住宅和工作场所氡-222 的防护》中也仅提出了住宅中氡的行动水平为 $200 \sim 600 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ ^[4],所以人们往往忽略了对 ^{220}Rn 及其子体防护的研究。在上述因素影响下,人们认为在进行环境辐射照射水平监测时,没有必要考虑对 ^{220}Rn 及其子体的监测,只考虑氡及其子体的监测就足够了。这对人类了解天然辐射照射水平,采取最优化的防护措施保障人身健康,造成了不利甚至是严重的后果。主要表现在以下几方面:

1. ^{220}Rn 及其子体的监测方法远没有达到氡及其子体的多种多样;

2. 以利用的 ^{220}Rn 及其子体的监测数据少得可怜;

3. 可能过高估算了氡及其子体的照射水平(由于 ^{220}Rn 及其子体的干扰);

4. 可能发现不了生存于高天然辐射水平环境中的人群(由于测量方法的限制,比如环境氡的监测常采用累积测量方法,其剂量计采用塑料滤膜,对 ^{220}Rn 的响应极低,但若测量环境中 ^{220}Rn 水平特高且为主时,就可能被判定为低辐射水平环境)。

从现有的一些文献资料看,不同国家测得的²²⁰Rn 及²²⁰Rn 子体水平存在较大的差异,例如,德国、英国、瑞典和美国的²²⁰Rn 及其子体产生的有效剂量约为氡及其子体的 5% 左右,但我国、日本、捷克要高得多。表 1.3 给出了上述国家²²⁰Rn 子体的浓度。

表 1.3 一些国家²²⁰Rn 子体的浓度及其照射剂量

国家	²²⁰ Rn 子体平均浓度/Bq·m ⁻³	年剂量 *
德国 ^[5]	0.5(室内)	5 %
捷克 ^[6]	1(室内)	16 % (205 μSv)
	0.2(室外)	
英国 ^[7]	0.3(室内)	100 μSv
瑞典 ^[8]	0.3(室内)	
美国 ^[9]	0.3(²¹² Pb)(室内)	
日本 ^[10]	0.72(室内)	
中国 ^[11]	0.8(室内)	20 % (185 μSv)
	0.4(室外)	

* 百分比表示²²⁰Rn 及其子体产生的年有效剂量相对于该国氡及其子体产生的年有效剂量的百分比,其后括号中给出的是原文献中按其所用剂量转换系数所算出的(室内 + 室外)的总年有效剂量。

近年来,有关环境²²⁰Rn 水平调查的兴趣呈明显上升趋势,发现环境中高²²⁰Rn 浓度存在的调查结果较多。与世界均值比较,我国土壤中²³²Th 的含量明显高些,表 1.4 给出了我国和世界土壤中²³²Th 的含量。我国居室中钍射气浓度也较世界均值高,表 1.5 给出了我国部分居室中平衡当量²²⁰Rn 浓度和世界均值。文献[17]报道了广东省不同类型住宅中的氡、²²⁰Rn 浓度(见表 1.6),从表 1.6 可以看出,²²⁰Rn 的浓度比氡的浓度还高。

表 1.4 我国和世界土壤中²³²Th 的含量

国家(或地区)	²³² Th 含量的平均值	²³² Th 含量的范围
	Bqkg ⁻¹	Bqkg ⁻¹
中国(除台湾和下列两地)	49	1.0~438
福建 ^[13]	96.3	19.5~260
香港 ^[14]	146	
世界 ^[15]	30	11~64

表 1.5 我国和世界部分居室中平衡当量²²⁰Rn 浓度

国家(或地区)	平衡当量 ²²⁰ Rn 浓度/Bq·m ⁻³	
	算术平均值	最大值
中国(除台湾和下列两地)	0.8	3.6
香港 ^[15]	0.75	
世界 ^[15]	0.3	12

表 1.6 广东省不同类型住宅中氡、²²⁰Rn 浓度的比较^[17]

住宅类型	样品数	²²² Rn/Bq·m ⁻³	²²⁰ Rn/Bq·m ⁻³	²²⁰ Rn/ ²²² Rn
石灰岩石结构	18	5.8	20.6	3.6
石灰墙结构	10	15.5	39.6	2.6
砖墙结构				
马赛克地面	13	15	23.6	1.6
水泥地面	43	15.5	31.2	2.0
红砖地面	60	21.7	42.3	1.9
泥土地面	36	24.0	51.4	2.1
泥土墙结构	30	19.7	104.0	5.3
花岗岩石墙结构	10	31.5	64.5	2.0

在我国阳江高本底地区, ^{220}Rn 的平均浓度高达 $1.6 \times 10^2 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ ^[18], 珠海市室内和甘肃东部地区居民窑洞中的 ^{220}Rn 水平也很高^[19, 20]。我国人口占世界人口的比例较大(约 1/5), 我国的天然辐射水平对世界天然辐射照射产生的集体剂量的贡献也较大。因此, 在我国开展 ^{220}Rn 及其子体对居民产生的照射剂量的研究是很有必要的^[21]。

1.3 ^{220}Rn 及其子体测量方法的发展现状

由于 ^{220}Rn 的半衰期很短, 很难建立一个稳定均匀的 ^{220}Rn 水平环境, 再加上以前人们对 ^{220}Rn 及其子体的危害不够重视^[21, 22], 所以 ^{220}Rn 及其子体的测量技术远没有氡的发展的那么方便和完善。

在国外, ^{220}Rn 及其子体的测量一般采用抓样法^[8~11, 23~25]。抓样法测量 ^{220}Rn 浓度主要采用的是双滤膜法^[26], 测量 ^{220}Rn 子体浓度采用的是五段法^[27, 28], 测氦、 ^{220}Rn 子体 α 潜能浓度除了可以用五段法外, 又发展了一种二段法^[29, 30]。Rock^[29]提出一种测氦、 ^{220}Rn 子体工作水平(WL)的方法, 该方法测 ^{222}Rn 子体 WL 需要修正, 修正大小与 ^{220}Rn 子体 WL 和取样后等待时间有关, 但其能较好地确定 ^{220}Rn 子体 WL。Rolle^[31]提出了一种快速测定氦子体 WL 的方法。Atika Khan 等综合 Rock 和 Rolle 的方法可以避免采用修正就可以同时测定氦、 ^{220}Rn 子体 WL^[30]。美国研究了一种被动累积式测 ^{220}Rn 方法^[32], 该方法利用两个对氦、 ^{220}Rn 具有不同响应的剂量计在测量点同时布样测量, 实现环境氦、 ^{220}Rn 暴露量的同时测量。日本研制了一种积分氦、 ^{220}Rn 测量仪^[33]和一种氦、 ^{220}Rn 子体测量仪^[34], 前者采用 CR-39 SSNTD 固体径迹探测器, 分为两个半球, 一个半球测氦、 ^{220}Rn , 另一个半球仅测氦, 适合于一个月以上的长期监测, 虽然它可以同时测量氦、 ^{220}Rn 水平, 但测量灵敏度受空气扰动的影响^[35, 36]。

在国内, ^{220}Rn 及其子体的测量大都采用抓样法^[17, 37~40], 也有用文献[33]介绍的氡、 ^{220}Rn 积分测量仪测量环境中 ^{220}Rn 水平的报道^[19, 41, 42]。最近北大和清华合作研究了一种 ^{220}Rn 子体积分测量仪^[43], 该种测量仪与文献[34]介绍的测量仪类似, 后者通过在 CR-39 SSNTD 上添加不同厚度铝铂来甄别氡、 ^{220}Rn 子体。因它带有电泵, 测量周期受到限制, 现场采样可靠性有待实践考验, 而且该仪器的刻度较难。

综上所述, 一方面我国环境 ^{220}Rn 的监测方法较少, 难于满足大规模研究工作的需要, 必须研究方便实用、经济可靠的监测方法, 以提高我国环境 ^{220}Rn 监测与评价水平; 另一方面我国 ^{220}Rn 水平较高, 对国民剂量的贡献不可忽略, 我国人口占世界人口近五分之一, 对全世界集体剂量的贡献份额大, 有必要对我国环境 ^{220}Rn 的剂量水平作深入的研究。

1.4 ^{220}Rn 的被动积分测量与剂量估算方法研究的意义

在人类所受到的辐射照射中, 天然辐射是主要的。联合国原子辐射效应科学委员会(UNSCEAR)1993 年报告书指出: 天然辐射产生的辐射照射集体剂量占总集体剂量的 76.6%。同时, 随着社会发展和科学技术的进步, 天然辐射照射所致公众剂量还有增高的趋势。就辐射对人体的效应看, 天然辐射与人工辐射并无本质差别。因此, 从辐射防护的立场出发, 有必要对天然辐射进行调查、评价和控制, 这一点国际辐射防护界达成了共识。

根据 UNSCEAR1993 年报告的估算, 人类受到的天然辐射一半以上来自氡及其子体的贡献, 所以半个世纪以来氡及其子体一直是天然辐射领域研究的热点。虽然 ^{220}Rn 是氡的同位素, 它及其子体的特性也与氡的相似, 由于 ^{220}Rn 的半衰期短(55.6s), 环境中

浓度较低,所以人们一般认为 ^{220}Rn 及其子体所致剂量可以忽略。加上 ^{220}Rn 及其子体浓度的测量较难,以至于对环境中的 ^{220}Rn 及其子体剂量评价研究很少。

有关环境 ^{220}Rn 水平调查的兴趣呈现明显上升趋势,发现环境中高 ^{220}Rn 浓度存在的调查结果较多。正因为如此,UNSCEAR2000年报告书中指出: ^{220}Rn 及其子体所致剂量已占氡及其子体所致剂量的20.5%^[15]。在中国,土壤和建材中的 ^{220}Rn 的母体钍(^{232}Th)的含量较高,再加上我国房屋结构大多是砖木、砖混和泥土房结构,居住窑洞在某些地区也占有相当比例,所以,我国 ^{220}Rn 及其子体所致国民剂量有可能高于世界平均值。

要对环境 ^{220}Rn 及其子体的污染水平进行监测与评价,方便实用、经济可靠的监测方法是必不可少的。从2.3节的讨论中可知,环境中 ^{220}Rn 及其子体水平随时间是变化的。因此,若要求测量结果能反映被测环境的真实情况,积分测量方法是首选;若采用主动采样法实现积分测量,存在测量周期较短、成本较高、可靠性保证较难的缺点。被动积分测量方法既能满足测量结果具有良好代表性的技术要求,又能克服主动采样法的缺点。

对氡及其子体而言,对人的危害主要来自氡子体,氡本身的危害可忽略不计;又由于室内氡及其子体分布较均匀,可用平均平衡因数来描述它们之间的平衡关系,即用氡水平的测量结果来估算 ^{220}Rn 子体水平。所以,环境氡污染水平的评价基本上都采用被动积分测氡暴露量的方法。

对 ^{220}Rn 及 ^{220}Rn 子体而言,无论是它们的分布规律,还是它们对人的危害的相对贡献,都跟氡及其子体的不一样。在有些场所, ^{220}Rn 比 ^{220}Rn 子体高数百倍, ^{220}Rn 本身对人的危害不能忽略; ^{220}Rn 及 ^{220}Rn 子体的分布规律存在明显的差异,不能用平均平衡因数来描述它们之间的平衡关系,很难根据 ^{220}Rn 水平的测量结果估算 ^{220}Rn 子体水平。为了可靠评价环境 ^{220}Rn 污染水平,需要对

^{220}Rn 及其子体都进行累积测量。 ^{220}Rn 容易实现被动积分测量, 但 ^{220}Rn 子体只能采用主动积分测量。因此, 若能够找到由 ^{220}Rn 水平估算 ^{220}Rn 子体水平的可靠方法, 就可以避开 ^{220}Rn 子体不能实现被动积分测量的难题, 并根据 ^{220}Rn 水平的测量结果同时估算 ^{220}Rn 及其子体所致有效剂量。

过去, 人们对氡及其子体的危害给予了高度重视, 氡剂量学的研究开展得非常广泛, 因此, 环境氡污染水平的评价, 不论是监测方法, 还是剂量学评价方法, 都有很好的质量保证。但对于 ^{220}Rn 及其子体而言, 人们的关注相对较少, 加之 ^{220}Rn 的半衰期短, 对 ^{220}Rn 的研究要比对氡的研究困难得多, 所以 ^{220}Rn 剂量学远没有氡剂量学研究得深入。

发展被动积分测 ^{220}Rn 技术及 ^{220}Rn 子体所致有效剂量估算方法, 对弥补 ^{220}Rn 及其子体所致剂量评价方法研究的不足, 满足环境评价对测量结果的代表性、可比性、可靠性等的技术要求, 进行环境中氡、 ^{220}Rn 水平经常性监测与评价, 保护生态环境、保障公众健康具有十分重要的意义。

第二章 ^{220}Rn 及其子体的来源、描述及特性

2.1 ^{220}Rn 及其子体的来源

^{220}Rn 是 ^{232}Th ($T_{1/2} = 1.41 \times 10^{10}\text{a}$) 的第五代子体。它是一种惰性气体, 无色无味, 半衰期仅为 55.6s。 ^{220}Rn 的衰变子体为固体颗粒, 除少数子体以自由态形式存在外, 大部分子体与空气中的气溶胶粒子结合, 以结合态的形式存在。图 2.1 描述了 ^{220}Rn 及其子体的来源, 即钍衰变链。

^{220}Rn 及其子体来源于 ^{232}Th (钍), ^{232}Th 广泛存在于土壤、各种矿物、各种建材及食物中, 表 2.1 给出了一些经济矿物中钍和铀的典型浓度值^[52], 表 2.2 给出了我国部分建筑材料中天然放射性物质 ^{232}Th 的含量^[16], 表 2.3 给出了我国食品中放射性核素 ^{232}Th 的衰变子体 ^{228}Ra 的含量^[53]。

表 2.1 具有经济价值的某些矿物中典型的铀钍浓度

矿 物	化学公式	浓度 $\times 10^{-6}\text{①}$	
		钍	铀
斜锆石	ZrO_2	50~300	300~1000
氟碳铈矿	$[\text{Ce}, \text{La}, \text{NaI}]\text{FCO}_3$	200~2000	
钛铁矿	FeOTiO_2	50~500	10~30
独居石	$[\text{Ce}, \text{La}, \text{Nd}, \text{Th}]\text{PO}_4$	3%~9%	0.1%~0.5%
钽 Ta/铌 Nb 矿石 ^②		<50~300	<30