

^{220}Rn 子体结合态放射性气溶胶 粒径分布实验研究

张磊¹, 卓维海², 郭秋菊¹

(1. 北京大学 物理学院 技术物理系, 北京 100871; 2. 复旦大学 放射医学研究所, 上海 200032)

摘要:放射性气溶胶粒径分布是评价环境中 Rn、Tn 子体所致呼吸道内照射剂量的重要参数。采用 CR-39 作探测器, ThB 作示踪粒子, 反推计算得到了 Tn 子体结合态气溶胶的中位径 (CMD) 和方差 (GSD)。在广东省阳江市 (高本底地区) 进行的现场测量结果表明, CMD 分布为 30~130 nm, GSD 分布为 1.9~3.3。与北京大学技术物理楼的实验结果相比较可知, 潮湿的农村的 CMD 较小, 且环境越潮湿, CMD 一般会越小。另外, 通风对气溶胶粒径的影响也很明显, 砖房在通风状况好的情况下有较大的 CMD。砖房的 CMD 普遍比水泥房间的小。

关键词:粒径分布; 放射性气溶胶; 丝网扩散组; Rn、Tn 子体

中图分类号: TL72

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2008)S0-0344-05

Measurement of Size Distribution for ^{220}Rn Progeny Attached Aerosols

ZHANG Lei¹, ZHUO Wei-hai², GUO Qiu-ju¹

(1. *Department of Technical Physics, Peking University, Beijing 100871, China;*

2. *Institute of Radiation Medicine, Fudan University, Shanghai 200032, China*)

Abstract: The size distribution of radioactive aerosols is a very important factor for evaluating the inner exposure dose contributed by radon and thoron progeny in environments. In order to measure the size distribution of thoron progeny attached radioactive aerosols, a device was developed using wire screens. The count median diameter (CMD) and the geometric standard deviation (GSD) of attached radioactive aerosols were calculated by collecting ThB and using CR-39 as detector. Field measurement results at Yangjiang City in Guangdong Province show that the CMDs distribute between 30 and 130 nm, and the GSDs are between 1.9 and 3.3. It also shows that the more humid country, the smaller CMDs, and the ventilation has great influence on the size distribution of aerosols. The CMDs of adobe house are smaller than that of the concrete houses.

Key words: size distribution; radioactive aerosols; screen-type diffusion battery; Rn, Tn progeny

根据联合国原子辐射效应科学委员会 (UNSCEAR) 2000 年报告^[1], 在人类受到的天然辐射源照射中, Rn、Tn 及其子体的剂量贡献约占天然辐射源总剂量的一半。准确评价 Rn、Tn 剂量是估算公共天然辐射剂量的基础。

Rn、Tn 子体是金属原子, 极易吸附在大气气溶胶上。Rn、Tn 及其子体被吸入人体后, 气体状态的氡可通过呼气排出体外, 但附着在气溶胶上的 Rn、Tn 子体将沉积在呼吸道不同部位。沉积的 Rn、Tn 子体将不断发射出 α 粒子而造成呼吸系统损伤。因此, 了解 Rn、Tn 子体在呼吸道不同部位的沉积分布和沉积量大小极为重要。目前还难以实现 Rn、Tn 子体在人体呼吸道上的沉积的直接测定, 只能通过对吸入 Rn、Tn 子体的粒度和放射性活度进行测定, 并根据相关理论和呼吸道模型进行估算。因此, Rn、Tn 子体附着放射性气溶胶粒径的测量成为剂量评价的首要任务。

气溶胶粒子的直径从原子线度的 1 nm 跨越到超过 100 μm 。从剂量学角度看, 空气中天然放射性气溶胶粒子的粒径大致为 1 ~ 500 nm。丝网扩散法能够测量小粒径气溶胶粒子的粒径分布, 对天然放射性气溶胶的测量非常有效^[2]。该方法体积小, 操作简单, 适合于现场测量。

本文系统介绍研制的结合态放射性气溶胶粒径分布测量方法及装置, 并给出为验证该方法进行的现场测量的一些实验结果。

1 测量方法

1.1 结合态放射性气溶胶分布

一般情况下, 不同气溶胶发生源的气溶胶粒径分布不同。对于单气溶胶发生源, 其粒径分布通常能用某种参数下的对数正态分布来拟合^[3]。而实际的气溶胶, 考虑到粒径跨越的量级 (5~6 量级), 也可近似用某种参数的对数正态分布描述。

通常, 结合态放射性气溶胶呈单峰的对数正态分布, 分布函数为:

$$f(d_p) = \frac{1}{\sqrt{2\pi \ln \sigma_g}} \cdot \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln d_p - \ln d_g}{\ln \sigma_g}\right)^2\right) \quad (1)$$

其中: d_p 为粒子直径; σ_g 为几何标准偏差 (GSD); d_g 为几何平均直径 (CMD), 简称中位径。

1.2 丝网采集效率模型

气流穿过滤丝时, 粒子与滤丝之间主要发生下列相互作用使粒子沉积到丝表面: 1) 拦截作用; 2) 惯性沉降作用; 3) 扩散作用; 4) 重力沉降作用; 5) 静电效应。在结合态放射性气溶胶粒子不带电荷和带少量电荷的假设下, 静电效应可忽略。气溶胶粒子质量基本上都很小, 重力沉降作用相对于前几种相互作用而言小几个量级。因此, 在丝网采集效率模型中只考虑拦截作用、惯性沉降作用和扩散作用。

拦截作用依赖于参数 R (拦截因子), $R = d_p/d_f$, 其效率^[4] $E_R = (1 - \alpha)R^2/K_u(1 + R)$ 。其中: K_u 为 Kuwabara 动力学因子, 用来描述金属丝的存在造成的气体流线弯曲的影响; d_f 为丝的直径。

惯性沉降作用依赖于斯托克斯 (Stokes) 数, $St = \tau U_0/d_f = \rho_p d_p^2 C_c U_0 / 18 \eta d_f$, 其效率^[5] $E_I = St J / 2K_u^2$ 。其中: τ 、 U_0 、 ρ_p 、 C_c 、 η 分别为弛豫时间、面速度、气溶胶粒子密度、滑动修正因子、粘质系数。

扩散作用依赖于 Peclet 数, $Pe = d_i U_0 / D$, 其效率^[6] $E_D = 2Pe^{-2/3}$, 其中, D 为粒子扩散系数。

若已知各种机制的单丝采集效率, 则丝网总的采集效率 E 可表示为:

$$E = 1 - \exp[-4\alpha(E_R + E_I + E_D)t/\pi d_f] \quad (2)$$

其中: α 为丝网多孔度; t 为丝网厚度。

不同结构的丝网对不同粒径气溶胶粒子的采集效率不同, 总的采集效率与气流速度有关, 一般随气流速度的增大而减小。

放射性粒子附着在气溶胶上, 且放射性粒子数目远小于非放射性气溶胶粒子数目, 因此, 不妨假设放射性气溶胶粒径分布和非放射性气溶胶粒径分布相同, 于是, 测量了放射性气溶胶粒径分布也就获得了非放射性气溶胶粒径分布。

1.3 丝网组合最优化

基于前面的理论, 对现有几种丝网计算了单层丝网在不同粒径处的采集效率, 计算结果如图 1 所示。

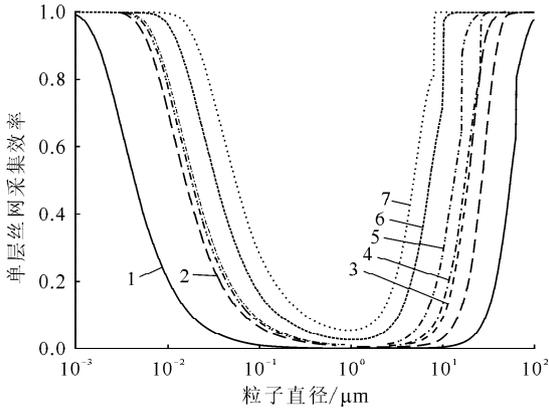


图1 单层丝网在不同粒径处的采集效率

Fig. 1 Single layer collection efficiency at different particle sizes

1——30目;2——60目;3——100目;
4——135目;5——200目;6——400目;7——635目

从图1可看出,不同结构丝网对气溶胶粒子的采集效率变化规律大致相同,但数值上有很大的不同,尤其在最关心的粒径段(10~500 nm),且该段上采集效率下降很快。

从利于实验测量和减小数据反推误差出发,考虑如下丝网最优化的原则:1)不同粒径的气溶胶尽可能分层采集;2)不同丝网上的数据尽可能有差别,且均不太小。

因ThB附着放射性气溶胶基本上均为结合态,因此,选择400目丝网、635目丝网和滤纸的组合来分层采集气溶胶粒子。组合装置如图2所示。

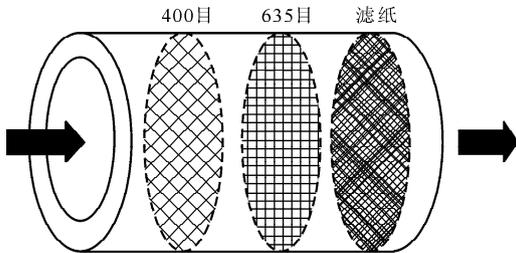


图2 ThB结合态放射性气溶胶采样装置

Fig. 2 Collection device of ThB attached radioactive aerosols

装置采用独立配件,丝网大小为20 mm,可取出测量,气密性由丝网边缘紧贴的橡皮圈来保证。采样装置右边接微型抽气泵,抽气后气溶胶粒子被分层收集。

1.4 测量方案

基于前面的测量装置,合理地设计了实验方案,实现了ThB附着放射性气溶胶粒径分布的测量。

1) 采样

气体流速对丝网采集到的放射性粒子数量有双重影响,随着气体流速的增大,单层丝网的采集效率会下降,但单位时间内通过的放射性粒子数目增大,因此,有一个最优化的气体流速使总的采集到的气体粒子数目最多。结合实际采用的采样仪器,选用气体流速为3 L/min。采样时间为3 h。

2) 测量

使用CR-39固体径迹探测器进行测量。为排出²²²Rn衰变子体及ThC带来的影响,采样完成后等待6 h。然后取下丝网和滤纸,分别贴上CR-39。测量时间至少为3 d,然后进行实验室腐蚀、读数。

3) 数据反推

实验测量得到的是各层丝网和滤纸上的径迹面密度,经理论反推得到ThB附着放射性气溶胶粒子粒径分布。采用检索法反推算法,并在反推过程中加入各参数收敛的误差自调节。

2 实验结果

为测试实验方案及装置,分别用两套探头在北京大学技术物理楼和广东省阳江市高本底地区进行了实验。

2.1 北京大学技术物理楼

本组实验采用两组探头在同一个房间进行实验,两组实验采样时间相差3 h。该房间通风状况良好。实验结果列于表1。

同时测得土房Tn子体EEC浓度约为0.57 Bq/cm³,理论上的径迹数密度和实验结果吻合很好。通过收敛的误差可看出,CMD和GSD的收敛性很好,说明程序中反推方法设计较好。两组实验CMD吻合较好,而GSD有一定偏差,分析其原因,可能是良好的通风部分改变了气溶胶的粒径分布。

2.2 广东省阳江市高本底地区

广东省阳江市是我国现发现的面积较大的一块高本底地区。以往的调查资料^[7]表明:阳江高本底地区地质上属于火成岩,土壤中²³²Th

表 1 北京大学技术物理楼的实验结果

Table 1 Measurement results in building of technical physics for Peking University

探头	径迹密度/ cm^{-1}			CMD/nm	GSD	CMD 收敛结果 偏差/%	GSD 收敛结果 偏差/%
	400 目丝网上	635 目丝网上	滤纸上				
采样头一	21	43	750	160	2.2	0.1	0.5
采样头二	20	31	776	150	1.7	0.1	0.2

表 2 广东省阳江市高本底地区实验结果

Table 2 Measurement results in Yangjiang City

实验组 标号	采样 流量/L	径迹密度/ cm^{-1}			CMD/nm	GSD	CMD 收敛结果 偏差/%	GSD 收敛结果 偏差/%
		400 目丝网	635 目丝网	滤纸				
1	514.5	2 838	522	12 234	40	2.7	1	50
2	388.5	947	320	2 858	30	2.55	1	30
3	540.5	1 298	300	7 813	40	1.9	0.04	1
4	535.5	3 041	2 066	14 347	50	3.3	1	10
5	539.8	1 949	452	15 595	60	2.5	0.1	20
6	524.2	491	211	9 283	130	2.7	0.01	5
7	545.9	869	238	6 597	70	3.0	1	15
8	540.3	2 043	694	22 827	90	2.9	0.01	10

含量较高,总平均值为 (206 ± 92) Bq/kg。该地区的土房中, ^{220}Rn 子体的平衡当量浓度平均值^[8]能达到 $12.6 \text{ Bq}/\text{cm}^3$ 。

2006 年 6 月,在广东省阳江市阳西县罗山村集中进行了实验,结果列于表 2。

从实验初步结果可很清楚地看到,广东省阳江市高本底地区的径迹密度远高于在北大技术物理楼的结果,约大 20 倍,这与陈波等^[8]在阳江对 ^{220}Rn 子体浓度的测量结果相符。测量得到,ThB 附着放射性气溶胶的 CMD 分布为 $30 \sim 130 \text{ nm}$,GSD 分布为 $1.9 \sim 3.3$ 。考虑到农村较干净,气溶胶粒子粒径分布的 CMD 相对干燥的城市肯定会很小,这一范围分布同 Y. Yamada 等^[9]在甘肃测量的结果较吻合。

根据当地的建筑特点,将所调查的房屋按通风状况初步分为通风状况好(包括只有 3 面有墙、1 面没墙的大厅和无门无窗的厨房)、通风状况良好(主要是门窗常开的卧室)、通风状况差(主要是封闭的卧室和储物间)。把所调查的房屋按其构成分为土房(裸露地面、裸露墙面)、砖房(裸露地面、石灰粉刷墙面)、水泥房(半石头半土砖、水泥地板)3 类。本实验组的

环境调查结果列于表 3。

表 3 调查房屋时的天气情况、房屋的材料构成及通风状况

Table 3 Weather, materials and ventilation of selected rooms

实验组 编号	天气 情况	房屋 构成	通风 状况	CMD/nm	GSD
1	暴雨	土房	差	40	2.7
2	暴雨	土房	良	30	2.55
3	暴雨	土房	良	40	1.9
4	多云	砖房	良	50	3.3
5	多云	砖房	好	60	2.5
6	多云	水泥房	良	130	2.7
7	暴雨	水泥房	好	70	3.0
8	暴雨	砖房	良	90	2.9

通过对比暴雨天和多云天气的实验结果可知,潮湿的雨天,气溶胶粒径分布偏小,且环境越潮湿,粒径分布越小。原因可能是潮湿天气使得气溶胶粒子容易凝结沉降,而地表和墙壁潮湿又减弱了气溶胶粒子的再悬浮。

对比不同通风状况下的气溶胶粒径分布可知,对于土房,通风状况越好,气溶胶粒径越大。可能原因是由于通风好,大粒径气溶胶粒子容易再悬浮。但好的通风同时降低了放射性核素浓度。控制照射剂量时,控制通风需折中考虑。

从不同材料房间的气溶胶粒径分布观察到,水泥房同土房相比,粒径明显要大。可能原因是相同条件下粗糙表面对气溶胶粒子的吸附性较强,减小了气溶胶粒径。

上述结果提示,装修房间时,粗糙墙面有助于减小气溶胶粒径,保持环境湿度也能减小污染物颗粒大小,对通风的选择也很重要。

3 结语

通过计算筛选,选用“400目+635目+滤纸”的丝网最优化组合方式,组合出1套分级采样单峰分布结合态气溶胶粒子的装置。并通过合理的实验方案设计,用CR-39作探测器,实现了ThB附着放射性气溶胶粒径分布的测量。

为测试该套装置,于2006年6月在阳江高本底地区进行了实地测量。结果显示:潮湿、干净农村的CMD分布为30~130 nm,GSD分布为1.9~3.3;潮湿的雨天气溶胶粒径分布比晴天小;土房通风越好,气溶胶粒径越大;相同条件下,土房气溶胶粒径分布比水泥房小。

该装置价格低廉,简单易行,便于进行大规模的现场调查。

如果要考虑其他更多因素对气溶胶粒径分布的影响,需进行更多量的现场调查。细致的结论有待进一步的实验结果来说明。

参考文献:

- [1] UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation[R]. Sweden: UNSCEAR, 2000.
- [2] SODERHOLM S C. Analysis of diffusion battery data[J]. J Aerosol Sci, 1979, 10: 163-175.
- [3] HINDS W C. Aerosol technology: Properties behavior and measurement of airborne particles [M]. New York: A Wiley-Inter-Science Publication, 1998.
- [4] LEE K W, RAMMAMUTHI M. Aerosol Measurement: Principle, techniques, and applications [M]. New York: Wiley Inter Science, 1993.
- [5] YEH H C, LIU B Y H. Aerosol filtration by fibrous filters[J]. J Aerosol Sci, 1974, 5: 191-217.
- [6] KIRSCH A A, FUCHS N A. Studies of fibrous filter: III. Diffusional deposition of aerosols in fibrous filters[J]. Ann Occup Hyg, 1968, 11: 299-304.
- [7] 袁镛龄. 空气中²²²Rn、²²⁰Th及其子体致居民内照射剂量[M]//中国阳江高本底辐射研究. 北京: 原子能出版社, 1996.
- [8] 陈波,郭秋菊,孙全富,等. 阳江高本底地区室内空气²²²Rn、²²⁰Rn子体水平的一些调查和分析[J]. 辐射防护, 2006, 26(1): 61-66.
CHEN Bo, GUO Qiuju, SUN Quanfu, et al. A survey of the level of ²²²Rn, ²²⁰Rn progenies in Yangjiang, Guangdong Province [J]. Radiation Protection, 2006, 26(1): 61-66(in Chinese).
- [9] YAMADA Y, SUN Quanfu. Randon-thoron discriminative measurements in Gansu Province, China, and their implication for dose estimates [J]. Journal of Toxicology and Environmental Health, Part A, 2006, 69: 723-734.