

⑧

放射性气溶胶监测与内照射剂量估算

48-54

卢正永

R144.1

摘要 本文概括介绍了放射性气溶胶监测在内照射剂量估算中的作用,介绍了放射性气溶胶监测中在个人空气取样和粒度分布测量方面中辐院历年来所做的研究和实际工作。最后介绍了气溶胶样品长寿命 α 活度快速测量的方法。

关键词 放射性, 气溶胶, 个人空气取样, 粒度分布, 内照射剂量

放射性气溶胶, 监测, 内照射剂量学
一、引言

放射性物质通常由吸入、食入、皮肤或伤口侵入等三条途径进入人体,经历沉积、滞留、转移、排出等过程,对人体产生内照射。其中放射性气溶胶通过吸入途径进入人体是产生内照射的主要原因,一般内照射剂量估算都以这种情况为主。例如ICRP 54号出版物给出的计算内照射剂量的具体原则、模式及参数等,都是按吸入情况考虑的。

为进行内照射剂量评估所进行的个人监测方法有活体测量、排泄物中放射性物质的分析测量和个人空气取样。放射性气溶胶个人空气取样在内照射剂量监测中有其特殊的意义,特别在操作铀、钍、镭、钚及其它超铀元素的情况下,直接的活体测量与排泄物分析法,用现有的探测技术很难测到足够的活度水平。因而,ICRP历次与内照射剂量有关的出版物始终推荐个人气溶胶取样监测法。

在用放射性气溶胶取样监测法估算内照射剂量时的一个重要的测量参数为 $AMAD$ (或 $MMAD$)和 σ_g , $AMAD$ 为放射性中位空气动力学直径($MMAD$ 为质量中位空气动力学直径),是表征放射性气溶胶粒度分布的粒谱参数,决定了放射性核素的体内沉积分数, σ_g 为几何标准偏差。ICRP所建议的各种极限值以及由此而建立的各种放射性核素的导出空气浓度 DAC ,都是假定 $AMAD = 1\mu m$, $\sigma_g \leq 4.5$;若实际测得 $AMAD$ 不是这个数值,则相应放射性核素在体内的沉积份数和导出空气浓度都要依据内照射剂量估算模式进行修正。

二、气溶胶的个人空气取样

1. 个人空气取样的代表性

个人空气取样,就是由工作人员直接佩带气溶胶个人采样器,采集在工作场所停留的时间中呼吸带部位的气溶胶样品,再测量其放射性活度(或质量)。这种采样,在位置上靠近工作人员呼吸带,时间上采用整个工班内实时采样,因此所采集的气溶胶样品较定点、短时采样有更好的代表性。但是个人空气取样的采样流量低(通常为 $2.0 l/min$),收集到的气溶胶量有限,统计误差较大;解决较大统计误差的有效办法是实行累

积采样，把样品按一周、一月或更长时间累积后再进行活度测量。

2. 可吸入标准曲线

放射性气溶胶的可吸入标准曲线，最早在1966年由ICRP的肺动力学工作小组提出的^[1]。该小组认为，人在呼吸中，真正能沉积在呼吸系统肺区内的气溶胶粒子危害最大，而沉积的份额与粒子大小（用空气动力学直径 D_{ae} 表示）有关，其关系见表1和图1中 $I(a)$ 。

表1 ICRP肺动力学小组提出的肺区可吸入标准

粒径 D_{ae} , μm	0.2	0.6	1.0	2.0	3.0	4.0	6.0	10.0
沉积份额, %	32.4	21.5	24.2	32.8	25.0	15.0	3.3	0
可吸入份额, %	100	66.6	75.0	100	77.5	46.5	10.2	0

人们在设计模拟肺沉积曲线的粒子分离装置时遇到了困难^[2]，同时为了便于同其它可吸入标准曲线（如图1中的曲线A和B）进行比较，把沉积份额曲线的各数据分别乘以3.1的调整因子^[3]，（见表1），可得ICRP的可吸入标准曲线（见图1）。

可吸入标准曲线，是指人在呼吸含有气溶胶粒子的空气时，气溶胶粒子从鼻咽区经过气管、支气管，到达肺区的过程中，由于粒子相互撞击等动力学特性，粒子越大被阻滞的可能性越大，到达肺区的可能性越小（见图1中 $I(b)$ ）。在呼气过程中，又将按上述规律呼出一部分粒子，于是在一次呼吸过程中真正沉积在肺区的粒子份额如图1中 $I(a)$ 所示。

目前，个人采样器的粒子收集装置可以模拟标准曲线（应指明何种可吸入标准曲线），有将气溶胶粒子按粒径大小进行分类采样或选择采样的功能，所得数据对内照射剂量的估算更有意义。

3. 个人空气取样的实际应用

中辐院于1985年研制出用向心式气溶胶粒度分离装置作粒子收集器的个人空气取样器^[4,5]，它能按两种标准曲线把气溶胶粒子的可吸入部分区分出来，即以2.5L/min采样时模拟ICRP可吸入标准曲线，而以2.0L/min采样时模拟BMRC可吸入标准曲线。这种采样器重量轻、尺寸小，适合于工作人员佩戴。

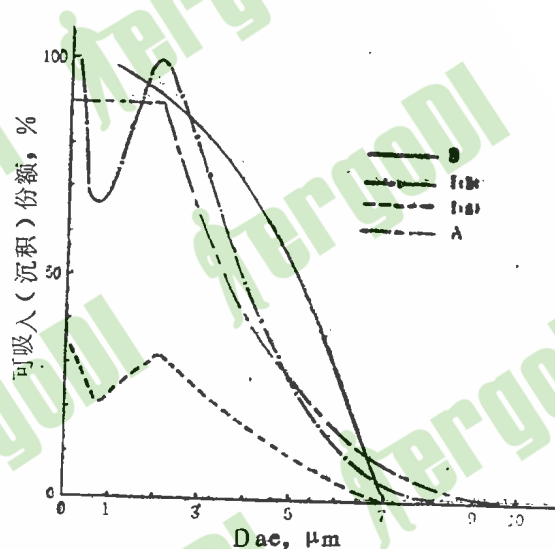


图1 国际上通用的可吸入标准曲线

A 在美国原子能委员会（AEC）的曲线基础上稍加修改后的美国工业卫生管理协会（ACGIH）的曲线，

B 英国医学研究委员会（BMRC）的曲线

$I(a)$ ：ICRP 1966年沉积份额曲线

$I(b)$ ：ICRP可吸入标准曲线

此采样器曾在核工业系统的铀矿山、水冶厂及核燃料元件生产厂进行个人内照射剂量监测时采用^[6,7]。目前这种个人空气取样器在非放射性气溶胶监测中,也受到极大重视。例如在国家劳动部1991年开展的呼吸性粉尘个体监测试点中,收到较好的效果^[8]。

三、气溶胶的粒度分级取样

1. 粒度分布测量

放射性气溶胶的粒度分布测量,是指将气溶胶粒子按粒径大小分段采样,测出其活度或质量数,再计算不同粒径的气溶胶粒子的放射性活度或质量数所占百分数,即为气溶胶粒度分布。这种分布通常服从对数正态分布,从中可以得出AMAD(MMAD)和 σ_g 。

早在1966年,ICRP的肺动力学工作小组在其专门报告中^[1]即已提出气溶胶粒子在呼吸系统沉积、转移、廓清等过程中的有关模式,后经完善和修改,成为ICRP第30号出版物中的隔室模式。ICRP的第35号和54号出版物中,都明确规定了吸入放射性气溶胶所造成的内照射剂量的估算及数据解释,应以隔室模式为准。在ICRP第60号出版物中重申了这一规定。

根据吸入放射性气溶胶隔室模式,吸入的气溶胶粒子因其粒度分布不同,在呼吸系统三个区域的沉积份额也不同,转移到体内各器官或组织中的份额也不同。由图2和表2可见,AMAD越小,在肺区的沉积份额越高;AMAD越大,被鼻咽区阻滞的份额越大,进入肺区的份额越小。

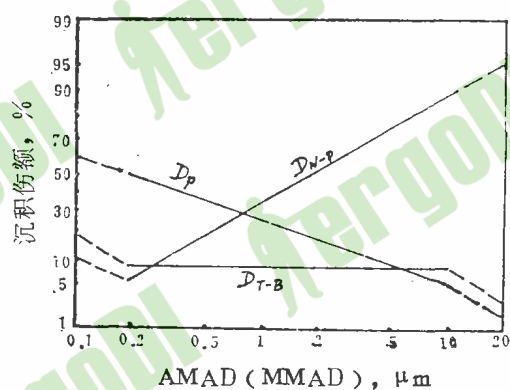


图2 气溶胶粒度分布参数与呼吸系统沉积份额的关系

D_p : 肺区的沉积份额

D_{n-p} : 鼻咽区沉积份额

D_{t-b} : 气管—支气管区的沉积份额

表2 气溶胶粒子沉积份额

AMAD(MMAD), μm	0.2	0.5	0.7	1	2	5	7	10
D_p , %	50.0	35.0	29.9	24.9	16.7	9.1	6.7	5.0
D_{t-b} , %	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0
D_{n-p} , %	5.0	16.1	22.7	31.0	50.0	74.4	81.4	87.5

导出各种放射性核素的导出空气浓度(DAC)、年摄入量限值(ALI)和约定剂量当量(H_{50})的AMAD为 $1\mu\text{m}$ 。当实际的AMAD不是 $1\mu\text{m}$ 时,ICRP第30号出版物规定用下式进行修正:

$$\frac{H_{50}(AMAD)}{H_{50}(1\mu\text{m})} = f_{n-p} \frac{D_{n-p}(AMAD)}{D_{n-p}(1\mu\text{m})} + f_{t-b} \frac{D_{t-b}(AMAD)}{D_{t-b}(1\mu\text{m})}$$

$$+ f_p \frac{D_p(AMAD)}{D_p(1\mu m)}$$

式中, $H_{50}(AMAD)$ 、 $D_{N-P}(AMAD)$ 、 $D_{T-B}(AMAD)$ 、 $D_P(AMAD)$ 是当实际的粒度分布参数为 $AMAD$ 时的 H_{50} 、 D_{N-P} 、 D_{T-B} 和 D_P ; f_{N-P} 、 f_{T-B} 、 f_P 分别为气溶胶粒子在 $N-P$ 区、 $T-B$ 区、 P 区沉积后, 对组织造成的约定剂量当量所占的份额。每种核素的 f 值可在 ICRP 第 30 号出版物的附录中查到, 表 3 为几种典型的长寿命核素的 f 值。

表3 几种核素的 f 值

核素	D			W			Y		
	f_{N-P}	f_{T-B}	f_P	f_{N-P}	f_{T-B}	f_P	f_{N-P}	f_{T-B}	f_P
^{238}U	0.03	0.02	0.95	0	0	1.00	0	0	1.00
^{235}U	0.03	0.02	0.95	0	0	1.00	0	0	1.00
^{239}U	/	/	/	/	/	/	0	0	1.00

注: D、W、Y 分别为相应核素在体内廓清特征的天类物质、周类物质、年类物质。

2. 粒度分级采样器

在粒度分布测量中, 主要难点在于粒度分级采样。实现粒度分级采样的方法很多, 主要为撞击分离、向心分离、旋风分离和由此演变出的各种方法。

串级撞击分离取样器在 1978 年即已研制成功并在核工业系统投入使用^[9]。随后, 出现了向心式四级粒度分级采样器^[10], 这种装置按 ICRP 的呼吸系统沉积模式, 将被监测气溶胶分为 $\geq 13.5\mu\text{m}$ ($10\mu\text{m}$)、 $13.5-4.0\mu\text{m}$ ($10-5\mu\text{m}$)、 $4.0-1.4\mu\text{m}$ ($5-2\mu\text{m}$)、 $<1.4\mu\text{m}$ ($2\mu\text{m}$) 四个粒子段 (括号内数值为另一种分段方式), 能够分别估算出沉积在 $N-P$ 区、 $T-B$ 区和 P 区的气溶胶量。为了适应非放气溶胶环境监测的需要, 对向心式四级粒度分级采样器作了改进, 扩大了它的适用范围, 并作为正式产品投入使用。在撞击和向心分离原理相结合的基础上, 研制出了 ZX-01 型撞击—向心式粒度分级采样器^[11], 将气溶胶粒子分 6 级采样, 给出的 $AMAD$ (或 $MMAD$) 更为可靠。旋风式分级采样器从仪器设计到实验刻度均有独到之处, 适合于现场使用^[12]。

对气溶胶粒度分级采样装置的分离性能, 即表征各级分离特性收集效率曲线的检验刻度, 是一项重要的工作。中辐院在研制这类仪器的早期, 使用多分散度的非标准粒子刻度的方法, 后来购置了标准粒子产生系统, 实现了方便、准确、可靠的实验刻度^[13]。

中辐院在研制气溶胶粒度分级采样装置的同时, 还用了相当长的时间和相当大的人力对核工业系统从铀矿开采到核燃料元件制造的整个生产过程中的一些典型生产场所, 进行了气溶胶粒度分布监测^[6], 为估算内照射剂量提供了重要的参考数据。

3. 粒度分级采样器在非放气溶胶监测中的应用

放射性气溶胶的粒度分级采样装置在非放气溶胶的监测 (特别是环境监测) 中, 得到了广泛的应用^[14]。

利用粒度分级采样器研究了大气微尘中致癌物质苯并芘 (a) 与空气中悬浮微粒大小的关系^[15], 发现这种致癌物质绝大部分附着在粒径 $<3.5\mu\text{m}$ 的粒子上, 也就是说附

着在能深入到肺区的粒子上。

利用粒度分级采样器对太原市城区大气环境中长寿命 α 气溶胶的调查表明^[16]，这种由铀、钍、镭等微量放射性元素形成的长寿命 α 微尘，主要集中在能深入到人体肺区的小粒子上。尽管大气中 α 放射性浓度很低，但几乎全部都对内照射剂量有贡献。

粒度分级测量还表明，氡子体也集中在小粒径粒子上，从而加重了其危害程度。

由此可见，环境中一些人们最关心的有害物质都集中在“可吸入”的小粒径粒子上。分级测量方法比测定环境中总悬浮微粒更科学。

四、放射性气溶胶样品的测量

1. 测量中存在的问题

无论是个人空气取样还是粒度分级取样，作为内照射剂量估算的依据，主要要测量气溶胶样品中的长寿命 α 放射性活度。但在取样时，不能排除天然氡子体的短寿命 α 粒子，而这种短寿命 α 粒子的浓度往往是长寿命 α 粒子浓度的上千倍。如何把短寿命 α 粒子的贡献消除、扣去或甄别掉，是气溶胶样品测量中的一个主要问题。

2. 消除短寿命 α 粒子贡献的方法^[17]

消除短寿命氡子体 α 放射性干扰的方法很多，最简单的方法是衰变法。将取得的样品搁置3—4天甚至更长时间，使短寿命的氡子体 α 放射性衰变到可以忽略时，再进行测量。这种方法测得的结果只反映几天以前的情况，不适用于即时评价和现场监测。

即时测量样品中长寿命 α 放射性活度，需要利用氡子体的衰变特性，在探测装置和电子学线路上采取措施。例如 α — β 比值法、 α — γ 比值法、 α — β 假符合法等，这些方法利用了氡（钍）衰变链中不同子体的衰变类型、半衰期等不同物理特性。利用不同子体的衰变粒子能量不同，设计出各种能量鉴别法，较常用的有能谱剥离法和能量补偿法，能量补偿法中有单道能量补偿法和双道能量补偿法。

在六、七十年代，中辐院对 α — β 假符合法和双道能量补偿法作了深入研究，研制出适合现场使用、当时属先进水平的测量装置。

3. 双道能量补偿法

双道能量补偿法是在单道能量补偿法基础上的改进^[18]。利用放射性气溶胶中铀、钍等元素形成的长寿命 α 粒子能量与氡子体衰变形成的短寿命 α 粒子能量的不同（见表4），用能量甄别的方法将监测对象区分出来，用专门的计数道计数；把另一类 α 粒子甄别掉（或用另外计数道计数），这在电子学上用若干个甄别阈即能解决。

表4 监测对象与氡子体的粒子能量

监测对象	α 粒子能量, MeV	天然本底, 氡子体	α 粒子能量, MeV
^{238}U	4.18	RaA (^{218}Po)	6.00
^{235}U	4.58	RaC' (^{214}Po)	7.68
^{234}U	4.76	ThC (^{212}Bi)	6.05
^{239}Pu	5.15	ThC' (^{213}Po)	8.78

但是,两种 α 粒子的能谱由于探测器分辨率和气溶胶粒子收集介质自吸收等因素的影响会展宽,形成交叠(如图3所示)。这样,为了设法扣除天然短寿命 α 粒子的影响,采取了许多补偿办法。

最早,采用的是单道补偿法(或道上补偿法),如图3(a)所示。设置一个单道,在无人工长寿命 α 污染的场所采集氡(氡)子体的本底气溶胶样,测出单道计数 N (单道,本底)和道上计数 N (道上,本底),计算它们的比值,确定天然本底对单道的干扰份额,称为补偿因子 F ;

$$F = N(\text{单道, 本底}) / N(\text{道上, 本底})$$

在有人工污染的场所采样,测出单道计数 N (单道,总)。显然,监测对象的单道计数 $N(\text{单道, 对象}) = N(\text{单道, 总}) - N(\text{单道, 本底}) = N(\text{单道, 总}) - FN(\text{道上, 本底})$ 。

补偿系数 F 的涨落程度 $F \pm \Delta F$ 直接关系到快速测量方法的灵敏度,它与阈值的漂移有关。

双道能量补偿法(如图3(b)所示)^[10],就是在下阈与上阈之间加一个中阈,下阈与中阈之间为计数道,中阈与上阈之间为补偿道,补偿因子 F 定义为:

$$F = N(\text{计数, 本底}) / N(\text{补偿, 本底})$$

这样计数道与补偿道同处于本底谱的下坡脚(主要是 RaC' 谱)。当甄别阈发生漂移时,计数 N 大致成正比关系变化,对 F 值影响不大。

双道能量补偿与单道(道上)补偿没有本质的区别,只是改变了补偿因子 F 的定义方法,使 F 值的稳定性得到提高,提高了监测灵敏度^[10]。中辐院利用双道能量补偿法,在抽气流量为150L/min,用玻璃纤维滤纸作收集介质的条件下,从取样到得出结果用50min(20min取样,等待10min使 RaA 衰变,10min测量),结果可以测出当时的1(MPC)_{P_a}(即一个钚的最大允许浓度,相当于现在 ^{239}Pu 的0.25DAC)。这在当时国内外居于先进行列。

五、结 束 语

对于放射性气溶胶的监测,我院在测量方法、取样方法和数据处理等方面先后都做了大量工作,基本上形成了一整套完整的技术体系。今后,还需要在个人空气取样和气溶胶粒度分布测定两个方面加强实际应用工作,以期在内照剂量估算方面得到有关部门和专家的理解与支持。

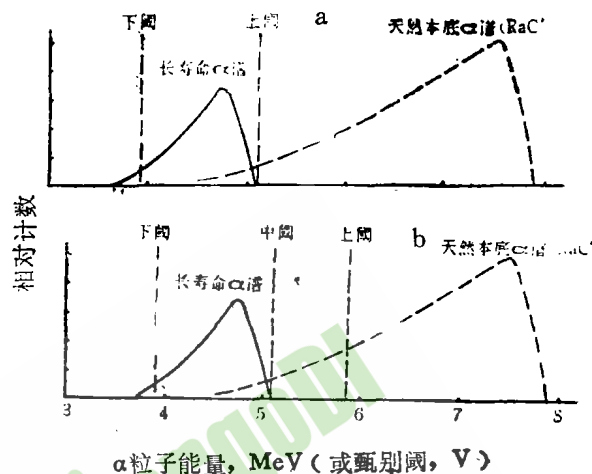


图3 能量补偿法示意图

参 考 文 献

- [1] Committsee I Task Group on Lung Dynamics of ICRP, Health Physics, 12 (12), 173 (1966) .
- [2] Stevens D.C. et al., Aerosol Science, 3 (1), 15 (1972) .
- [3] Mercer T.T. et al., Health Physics, 33 (3), 259 (1977) .
- [4] 卢正永等, 辐射防护, 6 (2), 101 (1986) .
- [5] 卢正永, 辐射防护, 10 (3), 223 (1990) .
- [6] 卢正永等, 辐射防护, 11 (3), 193 (1991) .
- [7] 卢正永等, 放射卫生, 3 (3), 129 (1990) .
- [8] 中国辐射防护研究院, CXF—2F防爆式可吸入粉尘个人采样器试点使用总结报告, 矿山个体粉尘监测试点工作总结会议 (厦门), 1991, 12.
- [9] 王玉民等, 核防护, 5 (2), 32 (1979) .
- [10] 梁鸿富等, 辐射防护, 3 (4), 276 (1983) .
- [11] 卢正永等, ZX—01型撞击—向心式气溶胶多级采样器的研制 (内部资料), 1988.
- [12] 石志侠等, 辐射防护通讯, (6) 20 (1985) .
- [13] 李爱武等, 标准粒子产生系统的调试、运行及一些实际经验 (内部资料), 1991.
- [14] 卢正永, 气溶胶粒度分布采样器在环境监测中的应用, 见: 核技术在环境保护中的应用 (中国环境学会、中国核学会等), P330, 1989.
- [15] 赵 宏等, 环保通讯, (1), 25 (1988) .
- [16] 汪佳明等, 辐射防护通讯, (2), 15 (1984) .
- [17] 辉 群, 核防护 (专辑), 3 (1—2), 1 (1977) .
- [18] 郑仁圻等, 核防护, 5 (2), 46 (1979) .
- [19] 郑仁圻等, 核防护, 5 (2), 52 (1979) .

~~~~~

(上接第47页)

认为EPA并没有低水平氡诱发肺癌特别是非吸烟人群肺癌的可靠证据, EPA是在利用靠不住的科学对美国公众进行恐吓。Schiager的发言代表另一方面的意见: 对多数居民氡的危害是微小的, 对少数居民却是值得注意的。看来社会上对氡的认识分歧还会持续一段时间, 这对开展居民氡致肺癌的流行病学研究是一个促进。

## 参 考 文 献

- [1] Samet JM, J Natl Cancer Inst, 81, 745-757 (1989) .
- [2] Lubin JH and Boice Jr ID, Health Physics, 57, 417-427 (1989) .
- [3] Blot WJ et al., J Natl Cancer Inst, 82, 1025-1030 (1990) .
- [4] Schoenberg JB et al., Cancer Res, 50, 6520-6524 (1990) .
- [5] Pershagen G et al., Health Physics, 63, 170-186 (1992) .
- (6) Severson C et al., Cancer Res, 49, 1861-1865 (1989) .
- (7) Nero AV et al., Science, 234, 992-997 (1986) .