

DOI:10.13491/j.issn.1004-714x.2019.05.011

• 辐射监测/论著 •

北京市大气气溶胶总 α 、总 β 放射性测量与分析

孔玉侠, 崔力萌, 王欢, 孟庆华, 马永忠

北京市疾病预防控制中心, 北京市预防医学研究中心, 北京 100013

摘要: **目的** 了解 2016—2017 年北京市大气气溶胶总 α 、总 β 放射性浓度与雾霾的相关性。**方法** 对北京市大气中气溶胶开展了大流量采样, 利用 BH1217 型低本底 α 、 β 测量仪对采集到的气溶胶样品进行总放射性测量。**结果** 2016 年 32 个监测日大气气溶胶总 α 、总 β 放射性浓度范围分别为 0.36 ~ 9.02 mBq/m³、0.06 ~ 3.75 mBq/m³; 2017 年 47 个监测日大气气溶胶总 α 、总 β 放射性浓度范围分别为 0.01 ~ 4.31 mBq/m³ 和 0.02 ~ 2.61 mBq/m³。**结论** 大气中总 α 、总 β 放射性浓度与季节有关, 与 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 浓度之间不存在明显的相关性。

关键词: 气溶胶; 总 α 放射性; 总 β 放射性

中图分类号: X837 文献标识码: A 文章编号: 1004-714X(2019)05-0513-04

Measurement and analysis of gross alpha and beta radioactivity of atmospheric aerosols in Beijing

KONG Yuxia, CUI Limeng, WANG Huan, MENG Qinghua, MA Yongzhong

Beijing Center for Disease Control and Prevention, Preventive Medicine Research Center of Beijing, Beijing 100013 China

Abstract: **Objective** To understand the correlation between gross alpha and beta radioactivity concentration in atmospheric aerosols and haze in Beijing from 2016 to 2017. **Methods** Large-flow aerosol sampling in Beijing was carried out, and radioactivity aerosol samples were measured by a BH1217 low background alpha-beta measuring instrument. **Results** Radioactive concentrations of gross alpha and beta in 32 monitoring days in 2016 were 0.36 ~ 9.02 mBq/m³ and 0.06 ~ 3.75 mBq/m³ respectively. The ranges of gross alpha and beta radioactivity concentration of atmospheric aerosols in 47 monitoring days in 2017 were 0.01 ~ 4.31 mBq/m³ and 0.02 ~ 2.61 mBq/m³ respectively. **Conclusion** Gross alpha and beta radioactivity concentrations in the atmosphere are seasonally related, however there is no significant correlation between them and PM_{2.5} or PM₁₀ concentrations.

Key words: Aerosols; Gross Alpha Radioactivity; Gross Beta Radioactivity

Corresponding author: MA Yongzhong, E-mail: myz0905@126.com

大气气溶胶中的放射性核素来源于天然放射性核素和人工放射性核素。有研究调查结果发现北京地区气溶胶样品中有原生放射性核素²³⁸U、²³²Th、²²⁸Ra、²²⁶Ra、²¹⁰Pb、⁴⁰K, 宇生放射性核素⁷Be 和人工放射性核素¹³⁷Cs 等^[1]。这些被释放在空气中的放射性核素附着在尘埃或水珠上进而形成的放射性气溶胶, 可能对大气造成污染并危害人体的健康。因此, 监测空气气溶胶中的放射性应成为大气环境监测的一项重要工作, 而监测气溶胶中总 α 和总 β 放射性可以更直接反映大气放射性污染情况。而且空气中雾霾一直受到人们关注, 特别是涉及雾霾形成的可吸入颗粒物(PM₁₀)和细颗粒物(PM_{2.5})^[2-3], 大气中放射性气溶胶可能会随着形成雾霾颗粒物的增多而对人体健康造成更大的

危害。通过选取北京地区 2016—2017 年 79 个典型监测日, 使用大流量空气采样器获取空气中颗粒物和沉降物进行总 α 和总 β 放射性分析, 结合采样当日空气质量指数(AQI)、PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的数值, 基本反映了北京地区大气气溶胶中总 α 、总 β 放射性浓度水平及其随气象条件、季节性特征变化趋势, 为环境空气质量的科学分析提供技术依据。PM_{2.5} 的一个特点是它在空气中停留的时间长, 漂浮的距离远, 因此本文中主要分析大气气溶胶总放射性水平与 PM_{2.5} 的关系。

1 材料与方法

1.1 样品采集 样品来源于室外空气, 空气采样点设置于北京 CDC 北院防病楼的 5 层楼顶。使用 Snow

White 型大流量空气采样器, 流量大于 $700 \text{ m}^3/\text{h}$, 每个样品采样时间为连续 $20 \sim 24 \text{ h}$, 采集的数据为 1 组/天。选用美国 3M 空气采样过滤膜, 该滤膜对小于 $10 \mu\text{m}$ 微粒的采样效率大于 95% ^[4]。滤膜采样截面积即空气中颗粒样品收集区域为 $53.5 \text{ cm} \times 42 \text{ cm}$ 。将收集足量体积空气后的滤膜移入实验室, 在滤膜的采样均匀区剪取小块样品作为总放测量分析用。

1.2 样品处理 统一取滤膜的 $2 \text{ cm} \times 2 \text{ cm}$ 方形区域制作成样品测量源, 同时剪取同样几何形状和大小的若干个空白滤膜样品, 一个作为本底对照样品, 其余的分别制作成不同质量已知比活度的系列标准源绘制标准源效率曲线。每个样品测量前均固定于统一的圆形不锈钢测量盘中 ($\varphi = 4 \text{ cm}$)。为了使总 α 和总 β 放射性达到比较稳定的数值, 每个样品经过 4 d 的平衡时间后, 使样品上的氡、钍子体会达到衰变平衡后再进行测量。

1.3 测量仪器 用于总放射性测量的仪器为 BH1217 型低本底 α 、 β 测量仪 (北京核仪器厂, 金硅面垒探测器), 事先对每个样品使用 FS2004 电子天平 (上海舜宇恒平科学仪器, $d = 0.1 \text{ mg}$) 进行测量并记录。测量仪器由中国计量科学研究院检定, 并定期进行本底测量和效率刻度; 使用的 α 标准源为纯铀粉末 (比活度 26.6 Bq/g), β 标准源为氯化钾粉末 (比活度 14.4 Bq/g)。每次测量样品前, 将 BH1217 型低本底 α 、 β 测量仪稳定性检测后, 将清洁的空白滤膜放入样品盘 (面积为 12.56 cm^2 , $\varphi = 4 \text{ cm}$) 连续测量本底, 每次测量时间不少于 400 min 。本底 α 、 β 计数率分别为 0.083 cpm 和 0.901 cpm 。

1.4 样品检测方法

1.4.1 标准源测量 将制作成的不同比活度滤膜标准源在红外灯下烘干, 置于干燥器中冷却至室温后, 放入低本底 α 、 β 测量仪进行测量。要求测量标准源时总计数达到 10 000 以上, 选用的 α 标准源和 β 标准源测量时间和次数均为 50 min , 6 次, 对单次探测效率结果取平均值作为样品测量时的探测效率。同时将不同质量的标准源探测效率与计数率绘制成 α 、 β 标准源效率刻度曲线, 以便进行不同质量的样品源比活度计算时从效率曲线上查询, 其中质量为 0.015 g 滤膜 α 标准源和 β 标准源探测效率分别为 8.72% 和 29.2% 。

1.4.2 样品测量 目前对气溶胶总 α 、总 β 测量没有国家标准, 所以本实验室参考《生活饮用水标准检验方法 放射性指标》GB/T 5750.13—2006^[5], 将收集制成的每个滤膜样品与标准源在相同的几何条件下进行

总 α 、总 β 放射性水平测量。为了减少统计误差, 样品的测量时间不宜过短, 通过初测样品总 α 和总 β 的计数确定合适的测量时间^[6]。已知样品的计数率 n_x 和本底计数率 n_b , 要求控制的相对标准偏差 E (本实验室一般取 5%), 样品的测量时间 t_x 按下式计算:

$$t_x = \frac{n_x + \sqrt{n_x n_b}}{E^2 (n_x - n_b)^2} \quad (1)$$

1.5 数据处理 由标准源测量得到仪器的探测效率 ε 为:

$$\varepsilon = \frac{n_x - n_b}{A_s m} \quad (2)$$

式中, n_x 、 n_b 分别表示标准源计数率 (cps) 和本底计数率 (cps); A_s 表示标准源粉末放射性比活度 (Bq/g); m 表示测量所用质量 (g)。

每个气溶胶滤膜样品总 α 或总 β 放射性体积活度 A 及由统计计数误差引起的标准偏差 σ 用下式计算:

$$A = \frac{(n_x - n_b) W}{\varepsilon m V} \quad (3)$$

$$\sigma = \frac{A}{n_x - n_b} \sqrt{\frac{n_x}{t_x} + \frac{n_b}{t_b}} \quad (4)$$

式中, n_x 、 n_b 分别表示样品计数率 (cps) 和本底计数率 (cps); t_x 和 t_b 分别表示样品测量时间 (s) 和本底测量时间 (s); W 、 m 分别表示当日滤膜样品总质量 (g) 和测量的滤膜样品质量 (g); ε 表示探测效率; V 表示当日采集的空气总样品体积 (L)。公式中 m 为当日测量的滤膜质量 (含颗粒物) 扣除本底滤膜质量 0.009 g ; 当日滤膜样品总质量 W 为当日收集气体压制成的饼状样品质量加上测量的当日滤膜样品质量, 再扣除采样当日气体所用空白滤膜的质量 6.37 g 和一个条码的质量 0.154 g 。

1.6 统计分析 用 SPSS 20.0 进行数据分析。采用直线相关进行相关分析, 检验的显著性水平为 0.05 (双侧)。

2 结果

2.1 2016 年 32 个大气气溶胶滤膜样品总放射性水平及其与 $\text{PM}_{2.5}$ 的关系 图 1 为 2016 年大气雾霾颗粒物总放射性浓度及其与 $\text{PM}_{2.5}$ 的变化关系曲线。

32 个监测日大气样品总 α 放射性水平范围值为 $0.36 \sim 9.02 \text{ mBq/m}^3$, 平均值为 2.075 mBq/m^3 , 总 α 最高值对应的 $\text{PM}_{2.5}$ 为 $280 \mu\text{g/m}^3$, 总 α 最低值对应的 $\text{PM}_{2.5}$ 为 $22 \mu\text{g/m}^3$, $\text{PM}_{2.5}$ 最高值对应的总 α 也为最高值, $\text{PM}_{2.5}$ 最低值对应的总 α 为 0.43 mBq/m^3 。总 β 放

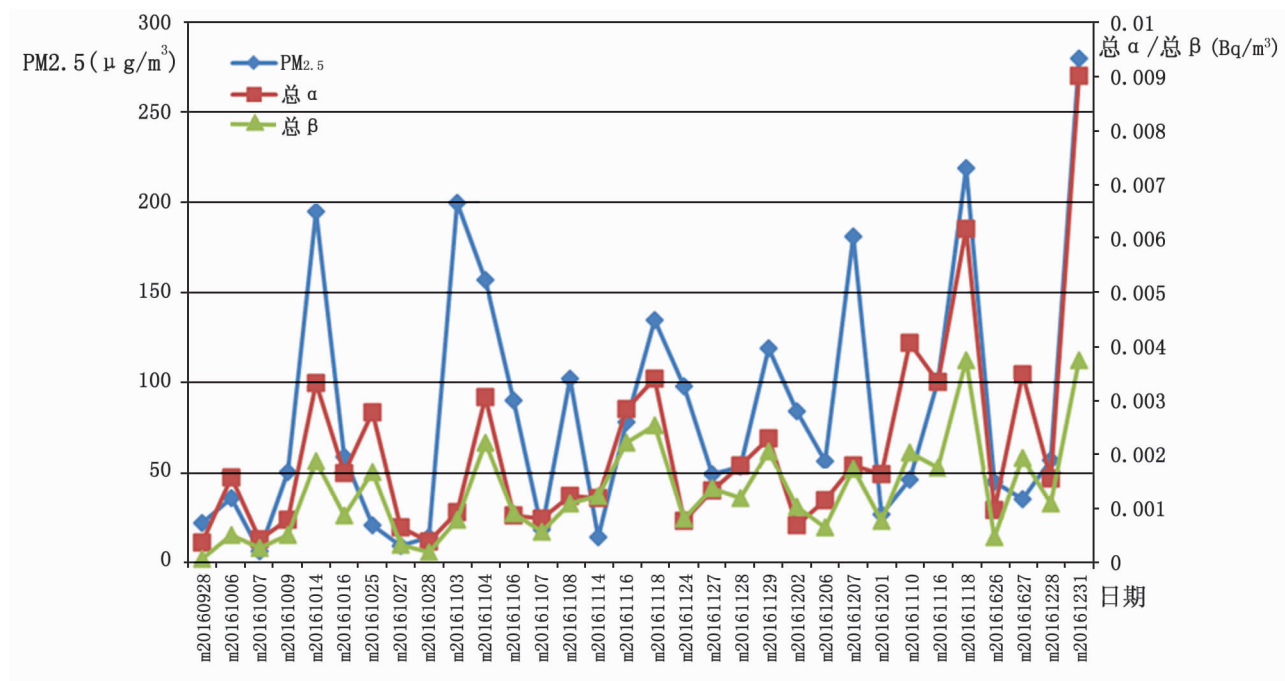


图1 2016 年大气雾霾颗粒物总放射性浓度及其与 $PM_{2.5}$ 的变化关系曲线

射性水平范围值为 $0.06 \sim 3.75 \text{ mBq/m}^3$, 平均值为 1.319 mBq/m^3 , 总 β 最高值对应的 $PM_{2.5}$ 为 $219 \mu\text{g/m}^3$, 总 β 最低值对应的 $PM_{2.5}$ 为 $22 \mu\text{g/m}^3$, $PM_{2.5}$ 最高值对应的总 β 为 3.74 mBq/m^3 , $PM_{2.5}$ 最低值对应的总 β 为 0.26 mBq/m^3 。统计分析结果, 2016 年 $PM_{2.5}$ 与气溶胶总 α 、总 β 放射性浓度均呈正相关 ($P < 0.05$), 相关系数分别是 0.670 和 0.719; 相关系数绝对值均在 0.5 ~ 0.8 之间, 且显著性均小于 0.01,

说明 $PM_{2.5}$ 与气溶胶总 α 、总 β 放射性浓度在 0.01 水平 (双侧) 上均中度相关。

2.2 2017 年 47 个大气样品总放射性水平及其与 $PM_{2.5}$ 的关系 2017 年 47 个样品中, 能探测出总 α 、总 β 放射性的样品只有 42 个。图 2 描述了 2017 年 42 个有效样品中大气雾霾颗粒物总放射性浓度及其与 $PM_{2.5}$ 的变化关系曲线。

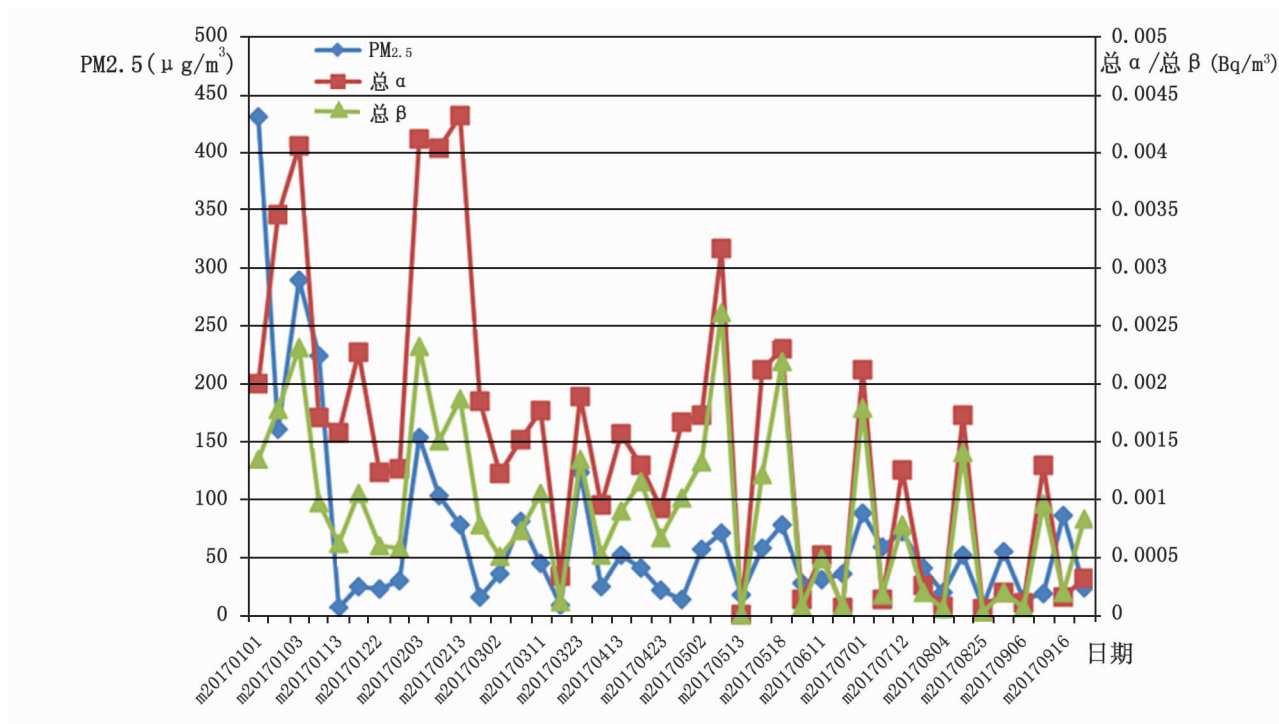


图2 2017 年大气雾霾颗粒物总放射性浓度及其与 $PM_{2.5}$ 的变化关系曲线

42 个有效监测日大气样品总 α 放射性水平范围值为 $0.01 \sim 4.31 \text{ mBq/m}^3$, 平均值为 1.50 mBq/m^3 , 总 α 最

高值对应的 $PM_{2.5}$ 为 $79 \mu\text{g/m}^3$, 总 α 最低值对应的 $PM_{2.5}$ 为 $18 \mu\text{g/m}^3$, $PM_{2.5}$ 最高值对应的总 α 为 2.00 mBq/m^3 ,

PM_{2.5}最低值的对应的总 α 为 1.58 mBq/m³。总 β 放射性水平范围值为 (0.02 ~ 2.61) mBq/m³, 平均值为 0.920 mBq/m³, 总 β 最高值对应的 PM_{2.5} 为 72 μg/m³, 总 β 最低值对应的 PM_{2.5} 为 18 μg/m³, PM_{2.5} 最高值对应的总 β 为 1.35 mBq/m³, PM_{2.5} 最低值对应的总 β 为 0.62 mBq/m³。统计分析表明, 2017 年 PM_{2.5} 与气溶胶总 α、总 β 放射性浓度均呈正相关 ($P < 0.05$), 相关系数分别是 0.484 和 0.492; 相关系数绝对值均在 0.3 ~ 0.5 之间, 且显著性均小于 0.01, 说明 PM_{2.5} 与气溶胶总 α、总 β 放射性浓度在 0.01 水平 (双侧) 上均低度相关。

2.3 2016—2017 年大气样品总 α、总 β 放射性浓度季度变化规律 74 个有效样品不同季度气溶胶总 α、总 β 放射性浓度见表 1。采用单因素方差分析, 比较一季度和三季度的气溶胶总 α 放射性比活度, 差异有统计学意义 ($P = 0.026 < 0.05$); 三季度和四季度的气溶胶总 α 放射性比活度, 差异有统计学意义 ($P = 0.022 < 0.05$); 三季度和四季度的气溶胶总 β 放射性比活度, 差异有统计学意义 ($P = 0.020 < 0.05$)。二季度与其它季度之间统计分析均无显著差异 ($P > 0.05$)。全年变化呈现第一、四季度较高, 第三季度较低的趋势, 同文献^[7]报道的采集 2014 年、2015 年山西省内大同、太原、临汾 4 个监测点的大气气溶胶样品一、四季度的总 α、总 β 放射性浓度高于二、三季度一致。

表 1 不同季度气溶胶总 α、总 β 放射性浓度

单位: mBq/m³

季度	总 α		总 β	
	浓度范围	均值	浓度范围	均值
一季度	0.35 ~ 4.31	2.27	0.13 ~ 2.32	1.15
二季度	0.01 ~ 3.16	1.27	0.01 ~ 2.61	0.94
三季度	0.07 ~ 2.12	0.62	0.04 ~ 1.79	0.52
四季度	0.39 ~ 9.02	2.13	0.20 ~ 3.75	1.36

3 讨论

从监测结果看, 2016 年气溶胶总 α、总 β 平均放射性浓度均高于 2017 年, 初步分析年度间总放射性浓度存在的差异, 可能与监测日所在的不同季节有关, 2016 年采样时间集中在 9 ~ 12 月, 此季节风沙、尘土以及雾霾相对较大, 采集大气样品时收集的沉降物相对较多, 这些沉降物作为核素的载体体从而对总放射性水平可能有一定的贡献。而 2017 年采样集中在 1 ~ 9 月, 大气采样情形有所不同, 空气中沉降物核素载体含量相对低一些。再对比苏州市气溶胶样品中总 α 和总 β 放射性水平分别为 160 ~ 1 800 μBq/m³、

212 ~ 3 063 μBq/m³^[8], 田湾核电站厂区及周围环境大气气溶胶总 α 和总 β 放射性浓度范围分别为 0.023 ~ 0.296 mBq/m³、0.240 ~ 2.460 mBq/m³^[9], 北京市大气气溶胶总 α、总 β 放射性浓度最高值均高于苏州市和田湾核电站厂区, 主要原因是北京市位于中国北方地区, 风沙、尘土以及雾霾相对苏州和田湾南方地区较大一些, 采集空气样品时收集的沉降物相对较多一些, 另一个原因是北京市采样使用的 Snow White 型大流量空气采样器也占一定的优势, 可以在 24 h 内收集足量的大气进行分析。

2017 年 47 个监测日的大气样品中若考虑将其中未探测出总放射性的 5 个样品进行整体估算, 相关系数分别为 0.503 和 0.496, 仍不能充分显示出总 α、总 β 放射性浓度与 PM_{2.5} 的相关性。相比于 2016 年气溶胶总 α、总 β 放射性浓度与 PM_{2.5} 分析结果, 两个年度之间有明显差异, 由此说明 2016 年存在相关性的情形并非必然。分析表明气溶胶总 α、总 β 放射性浓度与 PM_{2.5} 浓度之间并无明显的相关性, 与庄家毅^[10]报道的雾霾天气下气溶胶总 α、总 β 放射性水平较常规天气并无显著变化结论是一致的。

综上所述, 大气气溶胶总 α、总 β 放射性浓度与季节有关, 与 PM_{2.5} 不存在明显的相关性。

参考文献

- [1] 武伟伟, 曾志, 马豪. 北京市气溶胶放射性核素分析 (2013—2016) [J]. 辐射防护, 2018, 38(3): 197-205.
- [2] 中华人民共和国环境保护部. HJ 633—2012 环境空气质量指数 (AQI) 技术规定 (试行) [S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2012.
- [3] 中华人民共和国环境保护部. GB 3095—2012 环境空气质量标准 [S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2012.
- [4] 王文海, 孟庆华, 娄云, 等. 大气放射性气溶胶连续监测大流量空气采样 [J]. 中国辐射卫生, 2010, 19(4): 484-486.
- [5] 中华人民共和国卫生部. GB/T 5750. 13—2006 生活饮用水标准检验方法放射性指标 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2006.
- [6] 孔玉侠, 孙亚茹, 王宏芳, 等. 2009—2014 年水中总放射性测量比对结果与分析 [J]. 中国辐射卫生, 2016, 25(1): 83-85.
- [7] 耿霞, 卢慧斌. 气溶胶中总 α、总 β 测量方法研究及山西省气溶胶放射性水平监测分析 [J]. 辐射防护, 2017, 37(6): 459-464.
- [8] 宋彬, 许圆, 许哲, 等. 苏州市环境样品中总 α 和总 β 放射性水平调查 [J]. 江苏预防医学, 2018, 29(2): 208-211.
- [9] 陈亮. 田湾核电站厂区及周围环境大气气溶胶中总 α 和总 β 放射性水平监测 [J]. 环境监测管理与技术, 2015, 27(4): 44-47.
- [10] 庄家毅, 姚志扬, 陶易, 等. 雾霾天气下气溶胶总 α、总 β 放射性水平分析 [J]. 中国辐射卫生, 2018, 27(5): 490-491, 495.

收稿日期: 2019-04-23