

# 最小二乘原理计算氡氡子体浓度

张纯祥 罗达玲

(物理学系)

环境辐射研究和空气中放射性的调查,常要求同时测定氡氡子体浓度。Harley<sup>(1)</sup>为了估算氡子体给肺组织的辐射剂量,曾用采样60分钟,采样后(2,5),(6,20),(21,30),(200,300)和(1440,2440)分钟五段时间测滤膜上 $\alpha$ 计数,并通过解联立方程算出RaA、RaB、RaC、ThB和ThC的浓度。1975年广东阳江高本底调查中<sup>(2)</sup>,为了在10小时内做完测量工作,将采样时间定为30分钟,采样后(2,5),(6,20),(21,30),(200,300)和(360,560)分钟进行五段计数。因氡氡子体半衰期长短不同,采样和测量时间的不同选择都给各子体测量误差带来影响。延长采样时间可提高测量ThB, ThC, RaB,和RaC的精确度,但亦使RaA的误差增大;此外,上述采样和测量时间并不是根据使五个子体的测量误差最小所作的计算而选定的。为了充分利用实验数据的统计性,Raabe<sup>(3)</sup>曾提出采样后不同时刻多次测定滤膜上 $\alpha$ 计数率,将所测数据用加权最小二乘法处理,从而计算氡子体浓度。但因采样后测量,RaA测量误差较大的问题仍然存在,此外,没有考虑氡子体测量。为了提高混合氡氡子体浓度测量的精确性,本文讨论了加权最小二乘原理处理采样时和采样后测量混合氡氡子体浓度数据,并与联立方程计算方法作了比较;其次,编制了一多用途计算机程序,可计算和处理多种方法测定的氡氡子体浓度。

## 一、公式推导

假定采样开始时刻( $\theta = 0$ ),滤膜上不存在氡氡子体,即 $N_i(0) = 0$ ,则采样期间滤膜上第 $i$ 种核素的积聚和衰变的规律由下列方程表示:

$$\frac{dN_i(\theta)}{d\theta} = \lambda_{i-1}N_{i-1}(\theta) - \lambda_i N_i(\theta) + Q_i fV. \quad (1)$$

这里, $i = 1, 2, 3$ 分别表示RaA, RaB和RaC。

$$\frac{dN_4(\theta)}{d\theta} = -\lambda_4 N_4(\theta) + Q_4 fV, \quad (2)$$

$$\frac{dN_5(\theta)}{d\theta} = -\lambda_5 N_5(\theta) + \lambda_4 N_4(\theta) + Q_5 fV. \quad (3)$$

这里, $i = 4$ 和 $5$ 分别表示ThB和ThC; $N_i(\theta)$ 是采样开始后 $\theta$ 分钟时,滤膜上收集到的第 $i$ 种核素的原子数; $Q_i$ 是每升待测空气中第 $i$ 种核素的原子数[原子数/升]; $\lambda_i$ 是第

$i$  种核素的衰变常数〔分<sup>-1</sup>〕;  $f$  为滤膜的过滤效率;  $V$  为采样流速〔升/分〕。

方程(1)–(3)的解为,

$$N_1(\theta) = \frac{Q_1 Vf}{\lambda_1} [1 - e^{-\lambda_1 \theta}], \tag{4}$$

$$N_2(\theta) = Q_1 Vf \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_2 \theta}}{\lambda_2} + \frac{e^{-\lambda_2 \theta} - e^{-\lambda_1 \theta}}{\lambda_2 - \lambda_1} \right] + Q_2 Vf \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_2 \theta}}{\lambda_2} \right], \tag{5}$$

$$N_3(\theta) = Q_1 Vf \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_3 \theta}}{\lambda_3} + \frac{e^{-\lambda_3 \theta} - e^{-\lambda_2 \theta}}{\lambda_3 - \lambda_2} - \frac{\lambda_2 (e^{-\lambda_3 \theta} - e^{-\lambda_2 \theta})}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_2 - \lambda_1)} \right. \\ \left. + \frac{\lambda_2 (e^{-\lambda_3 \theta} - e^{-\lambda_1 \theta})}{(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_2 - \lambda_1)} \right] + Q_2 Vf \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_3 \theta}}{\lambda_3} + \frac{e^{-\lambda_3 \theta} - e^{-\lambda_2 \theta}}{\lambda_3 - \lambda_2} \right] \\ + Q_3 Vf \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_3 \theta}}{\lambda_3} \right] \tag{6}$$

$$N_4(\theta) = Q_4 Vf \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_4 \theta}}{\lambda_4} \right], \tag{7}$$

$$N_5(\theta) = Q_4 Vf \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_4 \theta}}{\lambda_5 - \lambda_4} - \frac{\lambda_4 (1 - e^{-\lambda_5 \theta})}{\lambda_5 (\lambda_5 - \lambda_4)} \right] + Q_5 Vf \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_5 \theta}}{\lambda_5} \right]. \tag{8}$$

设采样时间为  $T$ , 即采样结束时  $\theta = T$ , 采样后的时间  $t$ , 那么采样结束时  $t$  应为 0, 采样结束后滤膜上氡子体的变化规律可用下列方式表示,

$$\frac{dn_i(t)}{dt} = \lambda_{i-1} n(t) - \lambda_i n_i(t). \tag{9}$$

这里,  $i = 1, 2, 3$  表示 RaA、RaB 和 RaC

$$\frac{dn_4(t)}{dt} = -\lambda_4 n_4(t), \tag{10}$$

$$\frac{dn_5(t)}{dt} = -\lambda_5 n_5(t) + \lambda_4 n_4(t). \tag{11}$$

这里,  $n_i(t)$  是采样结束后  $t$  时刻滤膜上第  $i$  种核素的原子数。

假如, 采样结束时滤膜上收集到氡子体原子数为  $N_1(T), N_2(T) \dots N_5(T)$ , 那么采样后  $t$  时刻滤膜上各子体的原子数  $n_1(t), n_2(t) \dots n_5(t)$  为

$$n_1(t) = N_1(T) [e^{-\lambda_1 t}], \tag{12}$$

$$n_2(t) = N_1(T) \left[ \frac{\lambda_1 e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} - \frac{\lambda_1 e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} \right] + N_2(T) [e^{-\lambda_2 t}], \tag{13}$$

$$n_3(t) = N_1(T) \left[ \frac{\lambda_1 \lambda_2 e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_2 - \lambda_1)} - \frac{\lambda_1 \lambda_2 e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_2 - \lambda_1)} \right. \\ \left. + \frac{\lambda_1 \lambda_2 e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_1)} \right] + N_2(T) \left[ \frac{\lambda_2 e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_3 - \lambda_2} - \frac{\lambda_2 e^{-\lambda_3 t}}{\lambda_3 - \lambda_2} \right] \\ + N_3(T) [e^{-\lambda_3 t}], \tag{14}$$

$$n_4(t) = N_4(T) [e^{-\lambda_4 t}] \tag{15}$$

$$n_5(t) = N_4(T) \left[ \frac{\lambda_4 e^{-\lambda_4 t}}{\lambda_5 - \lambda_4} - \frac{\lambda_4 e^{-\lambda_5 t}}{\lambda_5 - \lambda_4} \right] + N_5(T) [e^{-\lambda_5 t}]. \quad (16)$$

若以  $A(\theta_a, \theta_b)$  表示采样期间 ( $\theta_a$  至  $\theta_b$  时间内) 探测装置记录到的  $\alpha$  计数, 则

$$A(\theta_a, \theta_b) = \int_{\theta_a}^{\theta_b} G \varepsilon [\lambda_1 N_1(\theta) + \lambda_3 N_3(\theta) + \lambda_5 N_5(\theta)] d\theta. \quad (17)$$

式中,  $\varepsilon$  是滤膜自吸收系数;  $G$  为装置的  $\alpha$  探测效率. 那么, 在整个采样期间所测到的  $\alpha$  计数应为 (17) 式从 0 至  $T$  积分, 其结果如下,

$$\begin{aligned} A(0, T) = & Q_1 G F V \left\{ - \left[ 1 + \frac{\lambda_3 \lambda_2}{(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_2 - \lambda_1)} \right] \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_1 T}}{\lambda_1} \right] \right. \\ & + \left[ \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_2 - \lambda_1)} - \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} \right] \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_2 T}}{\lambda_2} \right] \\ & + \left[ -1 - \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_2 - \lambda_1)} + \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} \right. \\ & \left. + \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_2 - \lambda_1)} \right] \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_3 T}}{\lambda_3} \right] + 2T \left\{ \right. \\ & + Q_2 G F V \left\{ - \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_2 T}}{\lambda_2} \right] + \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_3 T}}{\lambda_3} \right] + T \right\} \\ & + Q_3 G F V \left\{ - \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_3 T}}{\lambda_3} \right] + T \right\} \\ & + Q_4 G F V \left\{ - \frac{\lambda_5}{\lambda_5 - \lambda_4} \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_4 T}}{\lambda_4} \right] + \frac{\lambda_4}{\lambda_5 - \lambda_4} \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_5 T}}{\lambda_5} \right] + T \right\} \\ & \left. + Q_5 G F V \left\{ - \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_5 T}}{\lambda_5} \right] + T \right\} \right. \end{aligned} \quad (18)$$

式中,  $F = \varepsilon f$ .

采样结束后在  $t_{ja}$  至  $t_{jb}$  时间内, 探测装置所测到的  $\alpha$  计数应为,

$$A(t_{ja}, t_{jb}) = \int_{t_{ja}}^{t_{jb}} \varepsilon G [\lambda_1 n_1(t) + \lambda_3 n_3(t) + \lambda_5 n_5(t)] dt. \quad (19)$$

积分后得到

$$\begin{aligned} A(t_{ja}, t_{jb}) = & N_1(T) G \varepsilon \left\{ 1 + \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_2 - \lambda_1)} [e^{-\lambda_1 t_{ja}} - e^{-\lambda_1 t_{jb}}] \right. \\ & - \frac{\lambda_1 \lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_2 - \lambda_1)} [e^{-\lambda_2 t_{ja}} - e^{-\lambda_2 t_{jb}}] \\ & \left. + \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_1)} [e^{-\lambda_3 t_{ja}} - e^{-\lambda_3 t_{jb}}] \right\} \\ & + N_2(T) G \varepsilon \left\{ \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} [e^{-\lambda_2 t_{ja}} - e^{-\lambda_2 t_{jb}}] - \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} [e^{-\lambda_3 t_{ja}} - e^{-\lambda_3 t_{jb}}] \right\} \\ & + N_3(T) G \varepsilon \left\{ e^{-\lambda_3 t_{ja}} - e^{-\lambda_3 t_{jb}} \right\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 &+ N_4(T)Ge\left\{\frac{\lambda_6}{\lambda_6-\lambda_4}\left[e^{-\lambda_4 tja}-e^{-\lambda_4 tjb}\right]-\frac{\lambda_4}{\lambda_6-\lambda_4}\left[e^{-\lambda_6 tja}-e^{-\lambda_6 tjb}\right]\right\} \\
 &+ N_5(T)Ge\left\{e^{-\lambda_5 tja}-e^{-\lambda_5 tjb}\right\}.
 \end{aligned} \tag{20}$$

这里,  $j = 2, 3, 4$ 和 $5$ 表示采样后的四段测量时间。

在解析 $\gamma$ 能谱时, 最小二乘法可充分地利用实验数据的统计性, 使计算结果更精确可靠。用最小二乘原理来处理氡氡子体 $\alpha$ 计数的数据亦有类似优点。假定测到的混合氡氡子体样品的 $\alpha$ 计数是各个核素的 $\alpha$ 计数的线性叠加, 并且探测效率与放射性核素强度和能量无关, 本底影响和长寿命核素的贡献可忽略不计, 则第 $j$ 段时间内仪器记录到的 $\alpha$ 计数为 $A_j$ ,  $D_j$ 可由下式得出,

$$D_j = A_j / FGV = \sum_{i=1}^N m_{ji} Q_i. \tag{21}$$

当只测氡子体时 $N = 3$ , 测量混合氡氡子体时, 则 $N = 5$ 。  $j = 1, 2, \dots, M$ 。 必须满足的条件是

$$M > N.$$

对于给定的采样和测量时间,  $m_{ji}$ 可用(18)式和(20)式计算得出。 $A_j$ 的测量值是服从统计规律的。加权最小二乘的基本原理是使每段计数的权重剩余误差平方之和趋于极小, 从而算出 $Q_i$ 的最可几值<sup>(4)</sup>。若 $R$ 表示权重剩余误差平方之和, 即

$$R = \sum_{j=1}^M w_j (D_j - \sum_{i=1}^N m_{ji} Q_i)^2. \tag{22}$$

令

$$\frac{\partial R}{\partial Q_i} = \frac{\partial}{\partial Q_i} \left[ \sum_{j=1}^M w_j (D_j - \sum_{i=1}^N m_{ji} Q_i)^2 \right] = 0, \tag{23}$$

从而可写成矩阵方程式,

$$[M]^T \cdot [W] \cdot [M] \cdot [Q] = [M]^T \cdot [W] \cdot [D]. \tag{24}$$

$[M]^T$ 是 $[M]$ 的转置矩阵,  $w_j$ 是第 $j$ 次测量的权重因子。

$$\text{设 } [B] = [M]^T \cdot [W] \cdot [M], \tag{25}$$

$$\text{则 } [Q] = [B]^{-1} \cdot [M]^T \cdot [W] \cdot [D]. \tag{26}$$

由方程式(26)可算出每升空气中第 $i$ 种核素的原子数, 而第 $i$ 种核素的标准误差为,

$$S_i = \left[ \frac{1}{M-N} [B]_{ii}^{-1} \sum_{j=1}^M w_j (D_j - \sum_{i=1}^N m_{ji} Q_i)^2 \right]^{\frac{1}{2}}. \tag{27}$$

式中 $[B]_{ii}^{-1}$ 为 $[B]$ 逆矩阵的对角矩阵元,  $w_j$ 可根据具体情况而选定, 一般采用

$$w_j = \frac{1}{A_j}.$$

上述最小二乘原理的计算公式可用于处理采样时和采样后测得的 $\alpha$ 计数的数据, 也可处理只在采样后测量的数据, 但它们的矩阵元 $m_{i1} \dots m_{ij}$ 是不相同的。

## 二、程序功能

在上述公式推导和以前工作的基础上<sup>(6)(8)</sup>, 编成多用的氡氡子体浓度的计算机程序。程序用BASIC语言编写, 可在TRS-80微型计算机上使用。输入所规定的字符串变量A\$(0)和简单变量N和M时, 计算机按选定计算方法并给出计算结果。程序应用范围见表1。它除用以计算氡氡子体浓度外, 还能给出测量的相对标准误差, 氡氡子体潜能等结果。为便于将计算结果与实验比较, 程序可按计算出的子体浓度给出采样时和采样后的 $\alpha$ 计数率变化曲线。

表1 程序的计算应用范围

输入变量 A\$(0), N, M	子体浓度 和相对误差	测量方法	数据处理方法	参考文献
EA, 3, 3	Rn	采样后测量 $\alpha$ 能谱	联立方程	Kerr <sup>(7)</sup>
SE, 3, 3	Rn	采样时和采样后测量 $\alpha$ 能谱	联立方程	Tremblay <sup>(8)</sup>
TO, 3, 3	Rn	采样后测三次总 $\alpha$ 计数	联立方程	Thomas <sup>(9)</sup>
SA, 3, 3	Rn	采样时和采样后测三次总 $\alpha$ 计数	联立方程	Cliff <sup>(10)</sup>
TO, 3, M	Rn	采样后测M次总 $\alpha$ 计数	加权最小二乘法	Raabe <sup>(3)</sup>
SA, 3, M	Rn	采样时和采样后测M次总 $\alpha$ 计数	加权最小二乘法	本文
TO, 5, 5	Rn和Tn	采样后测五次总 $\alpha$ 计数	联立方程	高本底调查 <sup>(2)</sup>
SA, 5, 5	Rn和Tn	采样时和采样后测五次总 $\alpha$ 计数	联立方程	本文
TO, 5, M	Rn和Tn	采样后测M次总 $\alpha$ 计数	加权最小二乘法	Raabe <sup>(3)</sup>
SA, 5, M	Rn和Tn	采样时和采样后测M次总 $\alpha$ 计数	加权最小二乘法	本文

由此可见, 本程序不但能用于计算有关文献所报导的六种测量计算方法, 并作了新的扩充。

## 三、实验与讨论

测定氡子体的实验室装置已作过报导<sup>(6)</sup>, 它可用来同时测定滤膜收集的氡氡子体总 $\alpha$ 计数, 甄别后的氡子体 $\alpha$ 计数和氡氡子体 $\alpha$ 能谱。当用采样时和采样后测量 $\alpha$ 计数方法时, 需要直流供电的便携式仪器设备, 以便在野外或厂矿中使用。FJ-13定标器和DK-60粉尘采样机是可供选用的仪器之一。采用上述装置, 实验测定了采样时间分别为5和15分

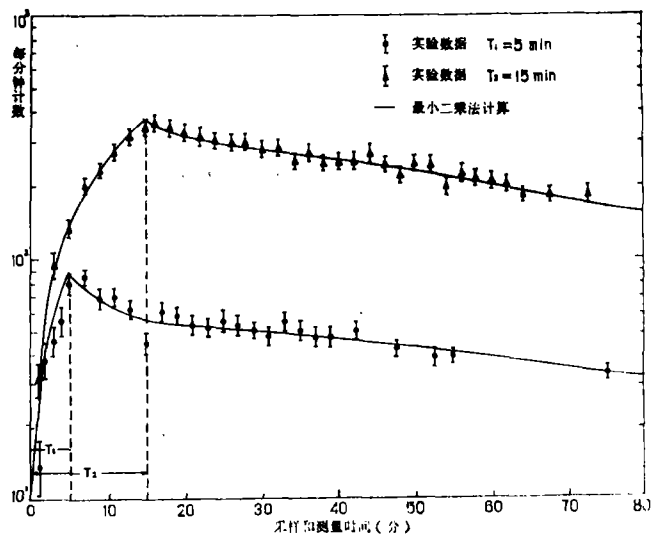


图1 实验数据和最小二乘法计算比较

钟的滤膜上氡氡子体的  $\alpha$  计数率, 直至采样后 600 分钟。图 1 给出了这两组测量结果。上述实验数据分别用采样后五段法, 采样时和采样后测量的五段法以及加权最小二乘法进行处理, 计算得出的氡氡子体浓度和相对误差由表 2 和表 3 列出。可以看出, 因 ThB 半衰期较长, 最后一段测量时间选在 360 至 560 分钟, 所测的 ThB 浓度的精确度都比较好。而且不论那一种方案, 所得结果都很相近。此外, RaB, RaC 和 ThC 的测量计算结果, 除文献 [2] 的方法外, 都较相近。用这些方案 RaA 的测量误差都比较大, 相比之下采样时和采样后测量的加权最小二乘法计算结果的相对误差最小, 它计算得出浓度在误差

表 2 氡氡子体浓度和相对误差 (采样时间 5 分钟)

输入变量 A\$(0), N, M	子体浓度 (pci/l) 和相对误差 (%)					备 注
	RaA	RaB	RaC	ThB	ThC	
SA, 5, 5	0.250 ±29.1	0.228 ±23.0	0.192 ±18.7	0.078 ±2.3	0.064 ±47.2	方法 (1) •
TO, 5, 5	0.377 ±36.4	0.240 ±23.0	0.184 ±23.4	0.078 ±2.3	0.050 ±64.2	方法 (2) •
TO, 5, 5	0.344 ±57.9	0.148 ±58.0	0.056 ±130.6	0.077 ±2.6	0.176 ±28.7	方法 (3) •
TO, 5, 59	0.368 ±23.9	0.224 ±17.7	0.170 ±15.5	0.078 ±2.3	0.057 ±51.4	采样后测 59 段 $\alpha$ 计数最小二乘法
SA, 5, 60	0.302 ±19.2	0.221 ±17.9	0.176 ±14.3	0.078 ±2.3	0.061 ±46.1	采样时和采样后测 60 段计数最小二乘法

• 方法 (1) 测量时间为 (0, T), (1, 21), (22, 40), (140, 240), (360, 560) 分钟。  
 方法 (2) 为采样后 (1, 4), (5, 20), (21, 40), (150, 250), (360, 560) 分钟测量。  
 方法 (3) 为采样后 (2, 5), (6, 20), (21, 30), (200, 300), (360, 560) 分钟测量。

表 3 氡氡子体浓度及相对误差 (采样 15 分钟)

输入变量 A\$(0), N, M	子体浓度 (pci/e) 及相对误差 (%)					备 注
	RaA	RaB	RaC	ThB	ThC	
SA, 5, 5	0.612 ±22.4	0.817 ±9.5	0.778 ±7.7	0.184 ±1.2	0.190 ±21.8	方法 (1)
TO, 5, 5	0.983 ±42.1	0.849 ±9.2	0.744 ±10.6	0.185 ±1.3	0.161 ±27.9	方法 (2)
TO, 5, 5	1.233 ±50.4	0.794 ±14.7	0.695 ±19.0	0.184 ±1.4	0.202 ±32.9	方法 (3)
TO, 5, 69	0.983 ±42.1	0.833 ±5.7	0.788 ±4.5	0.185 ±1.0	0.142 ±23.1	采样后测 69 段计算最小二乘法
SA, 5, 70	0.620 ±15.4	0.841 ±5.7	0.822 ±4.1	0.184 ±1.0	0.154 ±20.9	采样时和采样后测 70 段计数最小二乘法

注: 方法 (1)、(2) 和 (3) 测量时间与表 2 相同。

范围内与采样时和采样后测量五段法相近。最后,最小二乘法的拟合曲线(图1中实线表示)和实验数据在误差范围内亦相符合。

#### 四、小 结

在分析测定氡、氡子体的一些方法的基础上,着重讨论了混合氡氡子体浓度的测量和数据处理方法,并采用加权最小二乘法处理数据,编成一个计算机程序,可对多种测量和计算氡氡子体方法进行数据处理。这一用BASIC语言编制的程序,可在小型或微型计算机上使用,计算快速方便。通过计算和实验比较,可以看出采用采样时和采样后测量总 $\alpha$ 计数来确定混合氡氡子体浓度的方法是有优点的,它可以减少测定氡、氡子体测量误差,特别是显著地高了测定RaA的精确度;采用采样时和采样后测量的加权最小二乘法处理氡氡子体浓度数据比采样时采样后五段法误差更小,结果亦比较可靠。

#### 参 考 文 献

- [1] N. H. Harley et al., *Health Physics*, 24(1973), 379.
- [2] 广东高本底地区调查协作组, *放射医学与防护*, 2(1978), 43.
- [3] O. G. Raabe et al., *Health Physics*, 17(1969), 593.
- [4] 朱荣保、陈志祥, *原子能科学技术*, 4(1975), 302.
- [5] 张纯祥、罗达玲, *核技术*, (1982), 2, 22.
- [6] 张纯祥等, *核仪器与方法*, (1981), 3, 33.
- [7] G. D. Kerr, ORNL-TM-4924, (1975).
- [8] R. J. Tremblay et al., *Health Physics*, 36(1979), 401.
- [9] J. W. Thomas, *Health Physics*, 23(1972), 783.
- [10] K. D. Cliff, *Phys. Med. Biol.*, 23(1978), 55.

### Calculation of Radon and Thoron Daughters Concentration by Least Squares

Zhang Chunxiang    Luo Daling

#### Abstract

The method of measuring radon and thoron daughters concentration during and after sampling is discussed and a versatile computer program for analyzing observed data of radon and thoron daughters is written on the basis of mathematical method of matrix and weighted least squares calculation. The program is suitable to calculate the concentration of radon and thoron daughters from the total alpha counts and alpha spectroscopy data during and after sampling. The results of measurements show that greater accuracy of the concentration of radon and thoron daughters can be obtained by the weighted least squares calculation.