

密闭腔体法准确测量建材氡析出率比较研究

雷 兴, 张 磊, 郭秋菊

(北京大学物理学院核物理与核技术国家重点实验室, 北京 100871)

摘 要: 密闭腔体法(closed chamber method)是目前建材氡析出率测量中使用较为广泛的一种方法。使用密闭腔体法测量建材氡析出率,在建材的前处理上,大体上将长方体建材分为完全裸露、包裹留下一面和留下两面三种方法进行测量。本文从建材氡析出率测量的基本理论模型出发,细致比较分析了不同包裹方法测量得到的氡析出率的真实涵义,并结合理论分析和实验验证,提出了合理的修正方法,认为包裹留一面和留两面适合作为建材氡析出率的测量方法。

关键词: 建材; 氡析出率; 密闭腔体法; RAD7

中图分类号: R144

文献标识码: A

1 前言

氡是人类所受天然辐射最主要的来源。建筑材料中都含有天然放射性核素 ^{226}Ra ,其衰变产生的 ^{222}Rn 由于反冲作用进入建材孔隙,进而可以通过扩散作用/渗流作用进入室内环境。近年来,由于大量的高放射性水平的工业废渣被用于建筑材料以及空调等设施的普及,室内氡浓度有增高的趋势^[1]。为了准确评价由于建筑材料的改变导致的室内氡浓度的改变,需要对建材氡析出率进行准确的测量。目前,建材氡析出率测量方法主要有核径迹法^[2]、活性炭法^[3]以及密闭腔体法^[4],其中密闭腔体法由于测量的准确性,同时兼顾了反扩散的修正,是目前使用最为广泛的一种方法。

通常用面析出率,即单位时间单位面积析出的氡的活度($\text{mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)来描述建材 ^{222}Rn 析出对室内 ^{222}Rn 浓度的影响。建材在真实房屋构建中,呈现有限厚延展状态,且表面一般都有装饰层(如涂料等),很难通过实际测量来对其进行评价。为了反映不同建材由于自身因素

造成的氡析出率的不同,通常可以采用建材氡固有析出率(即无限厚且无限延展建材在外界氡浓度为 0 时的面析出率)这一概念在源头上对其进行比较,即无限厚延展建材在外界氡浓度为 0 时的面析出率。事实上,由于建材样品通常是有限尺寸,密闭腔体法无法直接测量得到建材固有析出率,需要对建材本身进行前处理。之前的研究中,研究者采用密闭腔体法测量建材氡析出率时,主要采用三种方法对建材进行前处理:完全裸露^[5,6]、裸露一面^[7,8]和裸露两面^[9]。然而,在深入分析建材氡析出率基本理论和不同密闭腔体法测量模型后发现,不同前处理方法测量得到的氡析出率的真实含义有所差别,而在比较不同的方法测量结果时,往往又很难被注意到。

为了比较分析这三种前处理方法之间的区别,本文从建材氡析出率的基本理论出发,详细分析了不同密封方法对应的氡析出率计算模型上的差别,针对不同的模型提出了建材氡固有析出率的修正方法,并进行了实验验证。

收稿日期: 2010-05-19

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11075009)。

作者简介: 雷兴(1987-),男,北京大学物理学院粒子物理与核物理专业硕士研究生。

通讯作者: 郭秋菊。E-mail: qjguo@pku.edu.cn

2 理论分析

密闭腔体法是将建材置于密闭的累积箱内,通过测量累积箱内氡浓度随时间的变化计算得到建材氡析出率。建材的前处理方式不同,实际测量析出率与建材固有析出率的关系完全不同。为此,本文首先从理论模型出发,比较分析了不同包裹方法对应的不同的析出率模型。

2.1 三种前处理方法的理论模型

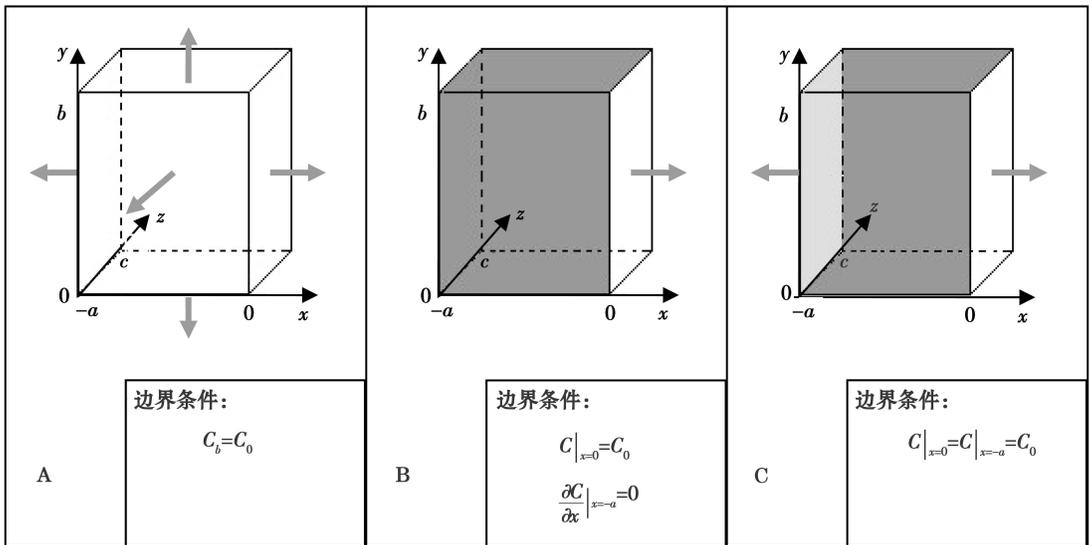
要弄清三种前处理方法在测量析出率上的区别,首先就要分析不同处理方法导致的建材内氡浓度分布的不同。通常建材是长方体,为此,本文在进行理论分析时,选用尺寸为 $a \times b \times c$ 尺度的长方体建材。

根据 Fick 第一定理和建材氡析出稳态模型假设,建材中氡浓度变化应满足下面的方程:

$$-\lambda C(x, y, z) + \frac{C_{Ra}S_e}{\eta} + \frac{D}{\eta} \left[\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right] C(x, y, z) = 0 \quad (1)$$

式中, λ 是 ^{222}Rn 有效衰变常数, s^{-1} ; $C(x, y, z)$ 为建材孔隙点 C 处氡的浓度, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$; C_{Ra} 为建材中镭含量, $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$; S_e 为射气系数; η 为建材本身孔隙度; D 是建材中氡的扩散系数 $\text{cm} \cdot \text{s}^{-2}$; η 是建材的孔隙度。

三种前处理方法的示意图如图 1 所示,图中阴影部分表示被完全密封封装的表面,不同前处理方法导致建材氡浓度分布的边界条件的不同。



(阴影部分代表样品被铝膜包裹的部分)

图 1 不同前处理下建材中氡分布所要满足的边界条件

Fig. 1 Different boundary conditions to be met by sealing methods

对于建材完全裸露情形(模型 1),如图 1A 所示,其 6 个面上的浓度皆为腔体内的浓度 C_0 , (1) 式作为三维公式,没有解析解。虽然通过数值方法可以解出特定尺寸下的浓度分布,但是由于同一面的氡析出率分布也不均匀,此种方法得到的建材内氡分布对建材固有析出率的计算没有任何帮助,也不可能通过墙体浓度的变化,直接计算得到该建材的固有析出率。

对于建材裸露一面的情形(模型 2),如图 1B 所示,此时只有在裸露表面有氡的析出。该模型下建材为无限延展状态,可以简化为一维模型。考虑沿 x 轴方向的边界条件,此时建材中 ^{222}Rn 的分布为:

$$C(x) = A e^{\sqrt{\frac{\lambda}{D}}x} + B e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D}}x} + \frac{C_{Ra}S_e}{\lambda} \quad (2)$$

$$\text{其中: } A = (C_0 - \frac{C_{Ra}S_e}{\lambda l}) / (1 + e^2 \sqrt{\frac{\lambda l}{D}} a),$$

$$B = (C_0 - \frac{C_{Ra}S_e}{\lambda l}) / (1 - e^2 \sqrt{\frac{\lambda l}{D}} a)$$

式中, $C(x)$ 是建材中氡浓度沿 x 轴方向的分布, $Bq \cdot m^{-3}$; C_0 为累积箱中初始氡浓度, $Bq \cdot m^{-3}$; a 是建材的厚度, cm 。

对于建材封装留下两面的情形(模型 3), 如图 1C 所示, 可以认为是双面析出无限延展有限厚介质, 同样可以简化为一维模型, 同模型 2 相比, 只是 x 轴方向的边界条件有所差别。此时, 建材中 ^{222}Rn 的分布与式(2)是一样的, 所不同的是 A, B 表达的公式不同:

$$A = (C_0 - \frac{C_{Ra}S_e}{\lambda l}) / (1 + e \sqrt{\frac{\lambda l}{D}} a)$$

$$B = (C_0 - \frac{C_{Ra}S_e}{\lambda l}) / (1 - e \sqrt{\frac{\lambda l}{D}} a)$$

2.2 三种前处理方法的氡析出率

知道了不同前处理方法情况下建材中氡浓度分布, 根据氡扩散析出的规律, 可以计算不同处理方法时建材表面的氡析出率, 该值即是通常测量时候直接根据前几个测量点直线拟合计算出来的“析出率测量值”。由于模型 1 无法给出该值, 这里只考虑模型 2 和 3, 其建材表面氡析出率的理论表达式为:

$$\text{模型 2: } E_{\text{测量值}} = D \frac{d}{dx} C|_{x=0} = (E_0 - \sqrt{\lambda D} C_0) \tanh(\sqrt{\frac{\lambda l}{D}} a) \quad (3)$$

$$\text{模型 3: } E_{\text{测量值}} = (E_0 - \sqrt{\lambda D} C_0) \tanh(\frac{1}{2} \sqrt{\frac{\lambda l}{D}} a) \quad (4)$$

式中, $E_0 = \sqrt{\lambda D} \frac{C_{Ra}S_e}{\lambda l}$, $mBq \cdot m^{-2}$, 表示建材的固有析出率, 只与建材本身的特性有关; $L = \sqrt{\frac{D}{\lambda l}}$, 为氡在建材中的扩散长度, cm 。

用密闭腔体法测量时, 通常情况下忽略建材放入初期腔体内的氡浓度, 取几个测量的浓度进行直线拟合。同时忽略浓度增长初期反扩散的影响, 即 $C_0 = 0$ 。此时(4)式和(5)式都可以简化为固有析出率乘以一个正切双曲函数,

唯一不同的是等效厚度不同。比较不同方法得到的析出率测量值:

$$\frac{E_{\text{测量值, 模型2}}}{E_{\text{测量值, 模型3}}} = \frac{\tanh(a/L)}{\tanh(\frac{1}{2} a/L)} \quad (6)$$

在厚度已知情况下采用两种方法同时测量, 可以得到氡在建材中的扩散长度, 进而代回(4)或(5)式中得到测量样品的固有析出率 E_0 。

总结三种前处理方法的理论分析结果发现: 模型 1 给出的氡析出率测量值无法直接计算得到建材的氡固有析出率值, 故不适合作为氡析出率测量方法。但是对于特定规则形状, 如立方体和球形, 经过推导, 可以适用。模型 2 和模型 3 给出的氡析出率测量值都能通过扩散长度修正, 计算得到建材固有析出率, 只是两种修正过程中取用的等效厚度不同。

3 实验验证

为了验证上述理论推导所得结果, 我们开展了实验测量。测量仪器选用 RAD7 (Durrige, 美国) 测氡仪和 ERS2 (Tracelab, 德国) 析出率测量仪。RAD7 测氡仪是一种便携式, 可连续取样测量的仪器, 该仪器采用静电采集原理, 通过内置泵将干燥后的无子体微粒的氡气流抽入一个 0.7 L 的半球形腔体内之后, 氡气衰变产生的子体在静电场中被收集在半导体探测器表面, RAD7 就是通过测量这些子体产生的 α 而得出氡浓度, 在 sniff 模式下, 其测氡的灵敏度为 0.2 cpm/(37 Bq/m³)。在测量时, RAD7 测量周期选择 1 小时一个点, 测量 10 个点进行氡浓度线性拟合。ERS2 在测量析出率时, 测量周期选择 0.5 小时。

测量样品选用北京常用的一种加气混凝土砌块 3 块, 统一切割成 (15 cm × 24 cm × 15 cm) 的尺寸。在实验时, 先用双层铝膜将样品应密封的面包裹起来, 在静置半个月之后将其放入容积为 17 L 的不锈钢圆柱形累积箱体(泄漏率为 0.011 h⁻¹) 中进行测量。利用上述方法, 多次测量得到氡在其中的扩散长度为 52 cm。各种前处理方法测量得到的不同析出率的测量值和固有析出率的计算值列于表 1。

表 1 各种前处理方法得到的氡析出率测量值之间的比较

Tab. 1 Radon exhalation rates in various samples

样品 编号	测量结果($\text{mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)			修正结果($\text{mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)		ERS2 测量结果 ($\text{mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)
	模型 1	模型 2	模型 3	模型 2	模型 3	
1	0.08±0.02	0.39±0.18	0.20±0.06	1.38±0.60	1.40±0.41	
2	0.07±0.03	0.34±0.19	0.17±0.06	1.23±0.68	1.17±0.41	1.15±0.32
3	0.08±0.01	0.38±0.17	0.20±0.10	1.35±0.61	1.40±0.70	

比较不同前处理测量结果我们发现,其氡析出率测量值有很大的差别。采用测量的扩散长度和厚度的修正后,模型 2 和模型 3 给出的同一批建材的固有析出率值很接近,两者差别在±5%以内。ERS2 测量给出的结果相对而言明显偏小,推测原因在于其扩散腔很小,反扩散对其可能会有较大的影响。

4 结论

本文通过对密闭腔体法测量建材析出率进行理论分析说明了各种前处理方法中氡析出率测量值在含义上的差别,进而提出了将各种的氡析出率测量值修正到建材固有氡析出率的方法。结合实验研究发现,对于长方体建材包裹留一面(模型 2)和包裹留两面(模型 3)都能很好地修正到建材的固有析出率,完全裸露(模型 1)不能修正到建材固有析出率,不适合作为建材氡析出率的测量方法。同时采用模型 2 和模型 3 对应的测量方法测量,可以得到建材的固有析出率以及氡在建材中的扩散长度。

最后应强调指出,本文是针对方形建材所展开的研究,这并不能代表在现实生活中遇到的所有建材,比如管状或者不规则形体建材,这些情况要复杂的多,需要做进一步的研究。

参考文献:

[1] UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation [R]. UNSCEAR Report 2006.
 [2] Abu Jarad F, Fremlin JH, Bull R. A study of radon emitted from building material using plastic α -track

detectors[J]. Phys Med Biol, 1980, 25(4): 683—694.

[3] Takeshi Iimoto, Yoshinori Akasaka. Development of a technique for the measurement of the radon exhalation rate using a activated charcoal collector[J]. J Environ Radioact, 2008, 99: 587—595.
 [4] Niels J. The determination of radon exhalation rates [J]. Health Phys, 1983, 45(2): 369—376.
 [5] Tuccimei P, Moroni M, Norcia. Simultaneous determination of ^{222}Rn and ^{220}Rn exhalation rates from building materials used in Central Italy with accumulation chambers and a continuous solid state alpha detector: Influence of particle size, humidity and precursors concentration [J]. Appl Radiat Isotopes, 2006, 64: 254—263.
 [6] Payasada K, Stieff F. Radon exhalation rates from building materials using electret ion chamber radon monitors in accumulators[J]. Health Phys, 2009, 97(2): 163—166.
 [7] Stoulos S, Manolopoulou M, Papastefanou C. Measurement of radon emanation factor from granular sample effect of additives in cement[J]. Appl Radiat Isotopes, 2004, 60: 49—52.
 [8] Sakoda A, Hanamoto K, Ishimori Y, et al. Radioactivity and radon emanation fraction of the granites sampled at Misasa and Badgastein[J]. Appl Radiat Isotopes, 2008, 66: 648—652.
 [9] Christopher YH Chao, Thomas CW Tung. Radon emanation of building material impact of back diffusion and difference between one dimensional and three dimensional tests [J]. Health Phys, 1999, 76(6): 675—681.

(下转第 22 页, Continued on page 22)

Variation and Levels of Atmospheric Radon Concentration in Qingdao

Zhang Liang¹, Xu Tingting², Guo Qiuju¹

(1. State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology, School of Physics, Peking University, Beijing 100871;

2. Qingdao Institute of Marine Geology, Shandong Qingdao 266071)

Abstract: To study the variation and levels of atmospheric radon concentration in Qingdao area, continuous measurements were performed hourly over a three-year period from September 2006 to August 2009. With 16 817 measured data, levels and variations were analyzed, and the trend in diurnal and annual variations was studied. The average concentration of atmospheric radon in Qingdao area is $(5.0 \pm 3.0) \text{ Bq/m}^3$. The average diurnal pattern of radon concentration showed that diurnal maximum appears in the early morning, and the minimum appears in late afternoon. The annual pattern features a maximum in December and a minimum in June, which is closely related to the maritime monsoon climate in Qingdao.

Key words: Atmospheric Radon; Continuous Measurement; Variation; Monsoon

(上接第 16 页, Continued from page 16)

Comparison of Closed Chamber Methods for Accurate Measurements of Radon Exhalation Rates from Building Materials

Lei Xing, Zhang Lei, Guo Qiuju

(State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology, School of Physics, Peking University, Beijing 100871)

Abstract: Closed Chamber Methods have been widely used to measure radon exhalation rate from building material. It is found, however, that different sealing methods of treatments on building materials before measurements were used in different laboratories worldwide. Taking a brick as an example, as treatment on building materials, sealing up 4 sides, 5 sides or totally baring were reported. To understand and confirm the differences between different treatments on building materials, theoretical analysis were carried out on basis of the definition and measuring model of radon exhalation rate from building materials in this study. The real meaning and the matter of each different sealing method were analyzed in detail, and experimental study was also performed. In summary, the two methods of sealing up 4 sides and sealing up 5 sides were regarded as appropriate methods to measuring exhalation rate but reasonable correction was necessary.

Key words: Building Material; Radon Exhalation Rate; Closed Chamber Method; RAD7