氡室中气溶胶行为规律的实验研究

郑平辉¹,张 a^{12} ,梁珺成³,郭秋菊¹

(1.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;2.防化研究院二所 北京 102205; 3.中国计量科学研究院 北京 100013)

摘 要: 在静态密闭氡室中,结合气溶胶的沉降和凝并理论以及气溶胶浓度的变化实测结果,实验测 定了不同粒径处气溶胶粒子的沉降系数和凝并系数。研究表明,随着气溶胶粒子的粒径从 58.7 nm 增加至 436.4 nm,沉降系数从 2.11 × 10⁻⁵ s⁻¹减小至 1.55 × 10⁻⁵ s⁻¹(285.2 nm),再逐渐增加至 1.72 × 10⁻⁵ s⁻¹;凝并系数从 2.12 × 10⁻⁹ cm³ • s⁻¹减小至 3.82 × 10⁻¹⁰ cm³ • s⁻¹。沉降系数、凝并系 数变化规律同以往研究规律类似,测量值与其它实测值范围较为接近。综合考虑氡室中气溶胶的 沉降和凝并规律,在氡室模拟正常环境(气溶胶浓度 10 000 cm⁻³)情况下,"最稳定"粒径出现在 252.6 nm,其浓度减小 5%的时间约为 40 min,该值对于氡室中气溶胶浓度的稳定控制及氡子体浓 度的控制具有重要意义。

关键词: 气溶胶行为; 氡室; 沉降; 凝并; 浓度衰减 中图分类号: R144.1

在进行氡子体浓度测量仪器的检定和氡 子体行为规律研究时,都需要创造一个稳定可 控的氡子体浓度环境^[1],因此,氡室在这些方 面具有重要的意义。氡室中氡子体行为规律 从某种程度上而言,取决于氡室中气溶胶浓度 及粒径分布的变化。为此,研究氡室中气溶胶 行为规律对氡室中气溶胶的控制及氡子体浓 度的调控具有重要的意义。

室内气溶胶行为包括了沉降、凝并及产 生和过滤等。很多学者研究了室内气溶胶 的行为规律,包括模型研究^[2-4]和实验研 究^[5-8]。在静态稳定氡室环境中,气溶胶的 行为规律与普通房间内的规律有较大的不 同,起决定作用的是气溶胶的沉降和凝并 行为。

本研究在静态密闭氡室中,结合气溶胶的 沉降和凝并理论以及气溶胶浓度的变化实测 结果,测定了不同粒径处气溶胶粒子的沉降系 数和凝并系数。 文献标识码: A

1 基本理论

为了有效地对氡室中气溶胶浓度进行控制、氡室中往往直接鼓入单分散性气溶胶。单分散性气溶胶在氡室环境中,除了由于重力和 附壁导致的沉降以外,不同粒子之间的凝并过程,也会导致气溶胶浓度的减小。其行为规律 如图1所示。



图1 氡室中气溶胶粒子的主要动力学过程



```
收稿日期:2013-10-22
```

基金项目: 国家自然科学基金资助课题(资助号: 11075009; 11205241) ; 核物理理科基地资助项目(J1103206) 。 作者简介: 郑平辉(1989—) ,男 2011 年毕业于北京大学物理学院 ,现为北京大学物理学院粒子物理与核物理专业硕士研究

生。E - mail: phzheng@pku.edu.cn 通讯作者:郭秋菊。E - mail: qjguo@pku.edu.cn

• 215 •

根据 Nazaroff 等人的研究^[4],氡室中气溶 胶浓度随时间的变化中,沉降过程导致的浓度 变化可以用一个浓度的一阶方程表示,凝并过 程可以用一个浓度的二阶方程表示,则有:

$$\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t} = -\beta N - \gamma N^2 \qquad (1)$$

初始条件为 t = 0 时, $N = N_0$ 。式中 β (s⁻¹) 是沉降系数, γ (cm³s⁻¹) 是凝并系数, N(cm⁻³) 是气溶胶粒子的数量浓度。等式右边 的第一项是由粒子沉降到室内表面引起的衰 减,第二项是单分散气溶胶凝并过程^[9]。

实验中我们可以对气溶胶浓度进行连续 监测,为了测量不同粒径处的沉降系数和凝并 系数,可以将上式转化为:

$$\frac{1}{N} = \frac{\gamma}{\beta} \cdot \frac{N_0 \gamma + \beta}{N_0 \gamma} \cdot e^{\beta t} - \frac{\gamma}{\beta}$$
(2)

假定 β_{γ} 在整个实验过程中都是常数。

(2)式表明粒子数浓度的倒数随着时间以 指数规律变化。在一段时间内测量氡室内的气 溶胶粒子数浓度 得到了粒子数总浓度随着时间 变化的数据。根据(2)式 应用最小二乘法拟合 实验数据就能得到两个关键参数β和γ。

2 实验方法

测量在中国计量科学研究院的标准氡室 中完成。该氡室由不锈钢材料组建,容积为12 m³,并且装备有温、湿度控制系统,能够调节通 风。在大氡室的侧壁上装有管道,仪器可以通 过侧壁的管道直接采样,也可以直接放到氡室 内部的架子上采样测量。

实验用仪器包括气溶胶发生器(TSI 3475, USA)、水基凝聚核粒子计数器(TSI WCPC 3781,USA,连续监测整个过程中的气溶胶浓 度)等。为了核实气溶胶的单分散性和气溶胶 粒径随时间的变化,采用 SMPS(TSI SPMS 3936,USA)进行了粒径分布测量。

在实验过程中,首先使用空气净化机清除 氡室内全部的气溶胶粒子。再使用气溶胶发 生器单次连续产生某一粒径的单分散气溶胶 并注入氡室,大约持续2~3h,然后停止注入 气溶胶,使氡室处于准静态。整个测量大约持 续10h。 在气溶胶粒子开始静态衰减之前,用小 风扇将氡室内部的气溶胶混合均匀。所有的 实验都近似在常温常压下进行。衰减过程开 始后,气溶胶粒子处于静态密闭的环境中,而 且在氡室内部分布均匀。SMPS 从氡室侧壁 的采样口进行采样,采样速率为0.2 L/min, WCPC 直接放置在内部的支架上进行采样,它 的采样流速是0.12 L/min,因而可以认为总 共有0.32 L/min 空气中的粒子由于仪器的运 行而被除去。如果工作采样的时间是10 h, 总的采样体积将是192 L,这个体积约占了大 氡室总体积的1%。所以采样造成的换气过 程对氡室内气溶胶的影响在实验过程中可以 忽略不计。

测量完毕后,读取下降时间段的浓度,采 用公式(2)对测量结果进行拟合,最终得到该 粒径处沉降系数和凝并系数。

3 结果与讨论

为了实验研究沉降系数、凝并系数与气溶 胶粒径大小的关系,在氡室内进行了8组粒子 数浓度衰减的实验(每组实验做一次),得到如 表1 所示的实测数据。初始的中位粒径 (*CMD*)范围为58.7~436.4 nm,初始的几何 标准差(*GSD*)范围为1.25~1.46,这表明气 溶胶粒子的单分散性较好。某次粒径测量结 果如图2所示。

从表1中的实测结果可以看出 在气溶胶粒 径从58.7 nm 到436.4 nm 的范围变化时 沉降系 数先有些微升高 随后表现出略微下降的趋势 并 无显著地变化;与此同时 凝冰系数则是先有较大 程度的下降 随后下降趋势趋于缓和。

图 3 为本研究实验值、理论模型计算值和 其他文献中沉降系数测量结果的对比图^[5 6 8]。 其中理论模型计算值根据 Lai 和 Nazaroff^{10]}提 出的粒子沉降到室内表面的理论模型,选取实 验过程中的条件作为参数计算得到的(假定大 气压 1 atm ,温度 293 K,粒子密度为 1.0 g• cm⁻³,选取参数摩擦速率为 3 cm•s⁻¹)。这个 模型为分别考虑了粒子沉降到室内四壁、顶部 以及地面的不同沉降速度,进而计算出粒子在 室内总的沉降系数。



图 2 SMPS 监测气溶胶粒径的变化以及 WCPC 测量气溶胶浓度随时间的变化 Fig. 2 One example of raw data obtained by SMPS and WCPC

表1 不同粒径下气溶胶粒子的沉降系数和凝并系数

Tab. 1	Initial	conditions	, deposition	$\operatorname{coefficients}$	and
--------	---------	------------	--------------	-------------------------------	-----

coagulation coefficients						
中位粒径 CMD (nm)	几何标准差 GSD	沉降系数 β(10 ⁻⁵ s ⁻¹)	凝并系数 γ(10 ⁻¹⁰ cm ³ s ⁻¹)			
58.7	1.42	2.11	21.2			
78.6	1.46	2.15	15.6			
154.0	1.32	2.17	5.08			
182.9	1.35	1.77	5.83			
252.6	1.25	1.65	4.16			
285.2	1.29	1.55	5.17			
373.3	1.34	1.72	3.82			
436.4	1.38	1.60	4.48			

图 3 表明,不同研究中实验测量得到的沉 降系数分布差异较大,本研究的测量结果在文 献报道的数据分布范围内。造成这种差异的 原因是不同实验条件下的空气流动性和腔室 内部的结构复杂性差异较大。本研究的测量 结果多数大于理论计算的结果,可能的原因是 实际实验环境中,氡室内部的表面要比模型中 的理想条件复杂得多。

本研究得到的有关沉降系数变化规律的 可能原因考虑如下: 气溶胶粒子的沉降过程是 由粒子的布朗扩散和重力沉降共同决定的。 粒径越小,布朗运动越剧烈,而重力沉降的影 响较小;反之,粒径越大,布朗扩散对沉降的影 响变小,而重力沉降成为主导因素。综合而 言,在小粒径处,粒径越小,沉降系数越大;在 大粒径处,粒径越大,沉降系数也越大。在整 个粒径范围内,沉降系数随着粒径的变化规律 就是先变小后变大。本研究测量的粒径范围 恰好处在中间转折处,因而能大致上看出沉降



图 3 本研究与其他文献中的沉降系数的对比

Fig. 3 Deposition coefficients from

this study and previous works





系数先减小后增加的趋势。 图 4^[6 8,11]是本研究中得到的凝并系数的 实测值、理论值与其他文献中的结果的比较 图。单分散气溶胶的凝并理论相对简单,这一 凝并过程也被称为 Smoluchowski 凝并。根据 Smoluchowski 凝并理论^[9],同样将采用本研究 实验条件(假定大气压 1 atm 温度 293 K 粒子 密度为 1.0 g•cm⁻³)作为参数计算出的结果即 是图 4 中的理论曲线。

可以看出实验结果和理论模型符合的较好,凝并系数随着粒径的增加而减少。考虑 单分散气溶胶情形,粒子的布朗扩散造成的 相互碰撞是气溶胶粒子发生凝并的原因,而 布朗扩散随着粒径的减小而加剧,因此单分 散气溶胶粒子的凝并系数随着粒径大小的 变化规律相对简单,粒径越小,凝并系数越 大。部分文献中的实验结果波动较大,这种 差别可能是由于实验时采用的气溶胶粒子 的多分散性引起的。

综合考虑氡室中气溶胶的沉降和凝并规 律(1)式给出了在某一气溶胶粒子数浓度下 气溶胶的衰减速率。在氡室模拟正常环境 (10 000 cm⁻³)情况下将表1的各项数据代入 (1)式可得到各个粒径处的衰减速率。"最稳 定"粒径出现在252.6 nm,而且粒径大于252.6 nm以后的单分散气溶胶衰减速率变化较小, 其浓度减小5%的时间约为40 min。

4 结论

影响氡室内气溶胶浓度的两个最主要的 物理过程是沉降和凝并。本文采用实验方法 在氡室内对气溶胶的沉降系数和凝并系数进 行了实验测量,并对其变化规律进行了分析 研究。

沉降系数和凝并系数与气溶胶粒径有关, 在本实验的气溶胶粒径范围内(*CMD* 58.7 ~ 436.4 nm),沉降系数先有些微升高,随后表现 出略微下降的趋势,在数值上并无显著地变 化;与此同时,凝并系数则是先有较大程度的 下降,随后下降趋势趋于缓和。

不同研究测得的沉降系数与凝并系数差 异较大,可能是由实验条件的差别引起。与理 论模型比较发现,沉降系数的实验值比理论值 要大,而凝并系数的实验值与理论值很接近, 都随着粒径增大而减小。

综合考虑沉降和凝并规律,在氡室模拟正 常环境(10 000 cm⁻³)情况下,气溶胶粒子的 "最稳定"粒径出现在 252.6 nm,其浓度减小 5%的时间约为 40 min。该值对于氡室中气溶 胶浓度的稳定控制及氡子体浓度的控制具有 重要意义。

参考文献:

- [1] Ichitsubo H, Yamada Y, Shimo M, et al. Development of a radon-aerosol chamber at nirsgeneral design and aerosol performance [J]. Journal of Aerosol Science, 2004, 35(2): 217 -232.
- [2] Lu W, Howarth AT, Adam N, et al. Modelling and measurement of airflow and aerosol particle distribution in a ventilated two-zone chamber [J]. Building and Environment, 1996, 31 (5): 417 -423.
- [3] Lai ACK. Particle deposition indoors: a review[J]. Indoor Air, 2002, 12(4): 211-214.
- [4] Nazaroff WW. Indoor particle dynamics [J]. Indoor Air, 2004, 14(s7): 175-183.
- [5] Park S, Kim H, Han Y, et al. Wall loss rate of polydispersed aerosols [J]. Aerosol Science & Technology, 2001, 35(3): 710-717.
- [6] Jamriska M, Morawska L. Quantitative assessment of the effect of surface deposition and coagulation on the dynamics of submicrometer particles indoors
 [J]. Aerosol Science & Technology, 2003, 37
 (5): 425 - 436.
- [7] Kim D , Hong S , Kim Y , et al. Deposition and coagulation of polydisperse nanoparticles by brownian motion and turbulence [J]. Journal of Aerosol Science , 2006 , 37(12) : 1 781 – 1 787.
- [8] Schnell M, Cheun C, Leung C. Investigation on the coagulation and deposition of combustion particles in an enclosed chamber with and without stirring [J]. Journal of Aerosol Science, 2006, 37(11): 1 581 – 1 595.
- [9] Hinds WC. Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles [M]. Wiley – interscience, 1999.

(下转第 249 页 ,Continued on page 249)

Research Progress on Fingernails Electron Paramagnetic Resonance Signal and its Dosimetric Properties

Wang Liang , Zhang Haiying , Zhang Wenyi , Liu Zhongchao , Cui Songye , Jiao Ling

(Institute of Radiation Medicine, Chinese Academy of Medical Sciences and Peking Union Medical College, Tianjin 300192)

Abstract: After being irradiated by X-rays or γ -ray, new free radicals would produce within the fingernails. Using electron paramagnetic resonance (EPR) technique, signals representing free radicals can be detected and form an electron paramagnetic resonance spectroscopy. EPR signal formation, method of abtaining radiation-induced signal, signal stability and its affecting factors were discussed in this paper.

Key words: EPR signal; fingernail; stability

(上接第 217 页 Continued from page 217)

- [10] Lai AC , Nazarof WW. Modeling indoor particle deposition from turbulent flow onto smooth surfaces [J]. Journal of Aerosol Science , 2000 , 31(4): 463 - 476.
- [11] Kim D, Park S, Song Y, et al. Brownian coagulation of polydisperse aerosols in the transition regime [J]. Journal of Aerosol Science, 2003, 34(7): 859-868.

Experimental Study on Aerosol Behavior in Radon Chamber

Zheng Pinghui¹, Zhang Lei², Liang Juncheng³, Guo Qiuju¹

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

2. Solid Dosimetric Detector and Method Laboratory , Beijing 102205;

3. Ionizing Radiation and Medical Science, National Institute of Metrology, Beijing 100013)

Abstract: Of all the dynamic processes in an enclosed and still radon chamber, deposition and coagulation of aerosol particles are the dominant processes on deciding aerosol activities. A simple experimental method to determine the corresponding coefficients of deposition and coagulation of aerosol particles was applied in our study. The result shows that as particle diameters increase from 58.7 to 436.4 nm, deposition coefficients decrease from 2.11 × 10⁻⁵ s⁻¹ to 1.55 × 10⁻⁵ (282.5 nm), then slowly increase to 1.72 × 10⁻⁵ s⁻¹ and the coagulation coefficients decrease from 2.12 × 10⁻⁹ cm³ • s⁻¹ to 3.82 × 10⁻¹⁰ cm³ • s⁻¹. Compared with previous researches, they have the similar range of variation. In an environment with aerosol particle concentration of 10 000 cm⁻³, the most stable particle size is 252.6 nm according to the decay rate influenced by both deposition and coagulation and it takes 40 min for the particle concentration to decrease by 5%. These data are valuable for the accurate control of aerosol and radon progeny in the radon chamber.

Key words: aerosol behavior; radon chamber; deposition and coagulation; concentration decay