建材氡析出率及其测量的一点思考

张 磊12,马新华1,郭秋菊2,王善强1,艾宪芸1,史志兰1

(1. 防化研究院,北京 102205; 2. 北京大学物理学院技术物理系,北京 100086)

摘 要:建材氡析出率的准确测量和建材样品氡析出率的质量控制是近期天然辐射防护领域热议的问题。寻找一个建材氡析出率测量的参考标准方法和一个合理的建材氡析出率控制指标 将极大地促进室内氡暴露危害的评价和控制。从建材氡析出率的理论和测量方法分析出发 细致讨论了目前建材氡析出率及其测量中存在的一些问题。研究结果表明 对于建材样品氡析出率测量 推荐对样品进行合适的前处理之后 采用密闭腔体法测量。建材氡析出质量控制建议采用建材氡固有析出率作为指标。

关键词 氡 析出率 建材 测量方法 评价控制

中图分类号:TL72;TL81

文献标识码:A

近些年,随着人们对室内空气质量的关注,建材中的放射性尤其是氡日益引起公众的关注。由于建材中氡的析出不仅受建材中放射性核素浓度的影响,还会因建材加工工艺和建材规格的不同而改变,因此目前还很难直接对其进行质量控制及管理^[2,3]。如何准确评价和测量建材样品中氡的析出率,进而提出最优化的管理标准,是近年国内氡研究领域的一个热点问题^[4]。

鉴于目前在建材氡析出率的准确测量方 法和其控制量上存在的争议,本文从建材氡 析出的理论和测量方法出发,细致分析了目 前建材氡析出率及其测量中存在的一些问题, 以期寻找一个更加合理的量值和测量方法来 进行建材氡析出率的控制。

1 建材氢析出率模型

早些年的研究表明,土壤是室内氡的最主要来源。早期氡析出率研究主要集中在土壤氡析出率模型分析及实地测量。随着社会经济的快速发展,高层建筑的逐渐增多,作为高层建筑室内氡主要来源的建材氡就逐渐成为大家关注的热点^[56]。针对建材中氡的析出理论和测量方法都是借鉴土壤氡析出理论和测量方法,很多时候两者是相通的,例如,析出的氡气体的收集和氡浓度的测量。然而,从氡的析出机理来分析,两者确有本质的差别。

土壤氡的析出主要是扩散和渗流作用,建材由于湿度一般较小,其中的氡主要通过扩散作用析出。土壤是无限延展无限厚的,建材在建成房屋中是无限延展有限厚的,而建材样品往往是不规则形状有限延展有限厚的。在无限延展无限厚的土壤和无限延展有限厚的建材中,氡浓度的分布有较大的区别,如图 1 所示。建材样品中氡浓度的分布则呈复杂的三维分布。

收稿日期 2010-09-13

作者简介:张磊(1983—) ,男 2010 年硕士毕业于北京大学粒子物理与原子核物理专业,现就职于防化研究院 二所,研究实习员。E-mail swofely@pku.edu.cn

通讯作者 郭秋菊。E-mail: qjguo@pku.edu.cn

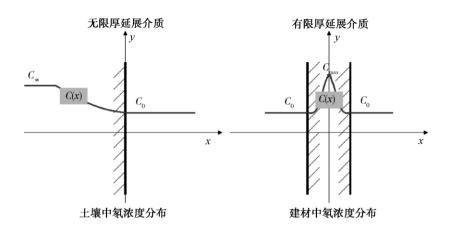


图 1 土壤和建材中氡浓度分布示意图

Fig.1 Sketch map of radon concentration distribution in soil and building materials

土壤和建材介质中的氡通过扩散作用析出进入环境大气,其析出率 E 可以表示为: $E=D\frac{\partial C(x)}{\partial x}\Big|_{x=\pm d/2,0}$ 。式中,D 为氡的扩散系数 $(m^2\cdot s\cdot 1)$,C(x) 为介质中氡浓度的分布 $(Bq\cdot m\cdot 3)$,d 为建材的厚度 (m) ,x=0 情况表示土壤表面氡的析出, $x=\pm d/2$ 情况表示建材表面氡的析出。从氡浓度的分布可以看出,建材中氡浓度的分布不仅取决于建材自身的核素含量、建材厚度,还取决于外界环境的氡浓度 C_0 $(Bq\cdot m\cdot 3)$ 。土壤外界氡浓度 $C_0=0$ 时,其对应的析出率通常称为土壤的"固有"析出率。对于建材,同样可以定义建材的"固有"析出率。对于建材,同样可以定义建材的"固有"析出率,即无限延展无限厚的建材在外界氡浓度为 0 时的表面析出率。

对于已建成房屋,通过测量墙壁、地板和天花板建材表面的析出率可以分析室内氡的主要来源,同时可以评估室内氡暴露水平。开展现场环境房屋建材氡析出率测量时,建材样品往往呈现无限延展有限厚的形态。

对于建材样品,由于其通常都是有限大小,形状有时候还不规则。这种情况下,建材中氡浓度分布往往呈现复杂的三维分布,直接开展面析出率测量很困难,直接测量给出的体析出率值,又不能准确反映建材在实际房屋中氡析出的状态。如何才能测量出对

评价室内氡暴露水平可以关联起来的、有代表性的建材析出率值,是需要深入思考的问题。一种常用的处理办法是对不规则形状的建材规则化,即切割成规则形状的长方体建材 $(a \times b \times c)$,然后对其进行包裹,来模拟无限延展有限厚介质情况,即如图 1 右侧所示。通过此处理,能够切实反映建材样品在房屋中的状况,测量给出建材样品的面析出率。

2 建材氡析出率测量

早些年国内外不同学者提出了多种建材析出率测量方法,如活性炭法^[7]、密闭腔体法^[8]、固体径迹法^[9]等,市面上也出现了专门的 氡析 出率测量仪,如 Tracerlab 公司的 ERS2。但是,很少针对不同建材析出率测量方法的适用范围和优缺点进行系统归类分析。

无论是土壤还是建材的氡析出率测量,都主要分两个步骤来完成:一是析出氡气体的收集,二是析出氡气体浓度的测量。原则上,氡析出率测量方法以氡的取样方式来划分,通常分为三种:静态积累法、动态贯穿气流法和吸附法。静态积累法是让氡在累积腔中静态增长,通过测量累积腔中的氡携带出率;动态贯穿气流法是采用不含氡的载体气体将累积腔中的氡携带出来测量;吸附法的典型代表就是活性炭法,其基于活性炭对氡原子的吸附,进而通过氡原

子浓度计算得到氡析出率。

目前绝大多数氡析出率的测量采用静态积累法收集析出的氡气。累积腔通常又可以分为半密闭和全密闭。前者像一个锅盖,罩在测量介质表面,常称"累积盖法" (accumulation can);后者则是一个全封闭结构,介质样品放入腔体内进行氡浓度的累积,常称"密闭腔体法" (closed chamber)。

析出氡气体浓度的测量方法和普通的氡浓度测量方法没有什么不同,目前主要应用活性炭、固体径迹和连续式测氡仪等测量。其中前两者是"静态"测量,即通过测量累积腔内的平均氡浓度,给出介质析出率的平均值;后者是"动态"测量,即通过测量累积腔内的氡浓度增长曲线,给出介质析出率值[10]。

不同的取样方法和氡浓度测量方法组成了不同的建材析出率测量方法,不同的方法适用范围和优缺点都非常明显。为此,本文分现场环境建成房屋和建材样品两个方面来分析建材氡析出率不同测量方法的适用范围。

针对现场环境建成房屋建材氡析出率测量,由于此时建材呈现无限延展状态,测量其面析出率即可评估室内氡暴露水平。氡气的累积方法上只能选择半封闭式的静态累积法,氡气体浓度测量方法,对于短时间测量,通常选用连续式测氡仪;对于长时间测量,通常选择固体径迹探测器。此测量情形中可能存在的最大问题是氦浓度的泄漏和反扩散

无法考虑。氡泄漏除了可能由于存在的累积 腔和建材表面密封不严之外 ("真泄漏"),另 外一种最可能的泄漏来源于累积腔的存在改 变了建材内局部氡浓度分布,进而导致氡气 体在累积腔罩着的表面析出率比正常情况偏 低,这就类似一种泄漏("假泄漏"),如图 2a 所示。上述泄漏在长期累积测量中体现的尤 为明显。反扩散主要是由于随着累积腔中氡 浓度增加,建材表面氡气体的"净析出"减 小,就像氡气从累积腔中向建材中扩散。反 扩散同样对于长期累积测量比较明显,短时 间内测量时,由于累积腔中氡浓度还不太高, 反扩散作用不是太明显。因此,优化选择累 积腔大小,在保证"真泄漏"足够小情况下 实验测量其"假泄漏",同时尽可能采用连续 式氡测量仪器,就能准确地测量此种情形下 的建材氡析出率。至于评估室内氡年暴露水 平的代表性,可以适当地选择反扩散修正过 的固体径迹探测法。

针对建材样品氡析出率测量,由于建材样品通常呈不规则形状,需要先将建材切割成规则形状,然后选择最大面析出,其它面采用铝箔包裹,模拟无限延展有限厚均匀介质析出模型,进行测量,如图 2b 所示。综合考虑泄漏和反扩散的影响,选择密闭腔体法收集,连续式测氡仪如 RAD7 等进行短时间内测量^[11]。前者保证了密封性的问题和泄漏率的修正,后者保证了测量精度和反扩散的修正。具体的模型分析及其测量数据的处理见

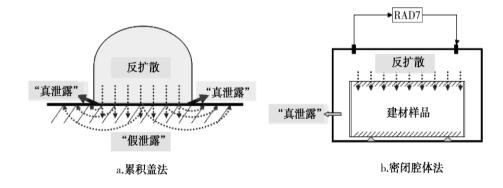


图 2 累积盖法和密闭腔体法测量建材析出率示意图

Fig.2 Sketch map of measurement of radon exhalation rates using accumulation-can method and closed chamber method

《密闭腔体法准确测量建材析出率比较研究》一文[12],该方法可以作为建材样品氡析出率测量的参考。

3 建材氡固有析出率

已有的研究表明,即使核素含量完全相同,不同加工工艺生产出的建材氡析出于艺生产出的建材内部结构不一样,到工工艺生产出的建材内部结构不一样的型材多孔度的增加,其包括建材分升度的微观结构,包括建材分验量,有研究者和实验,有研究者和实验,有研究者和实验,有研究者和实验,有研究者和实验,有研究者和实验,有研究者和实验,有研究者和实验,有研究者和实验,有研究者和实验,有研究者和实验,有研究者和实验,是对的发生的,能有效减小对其控制,能有效减少的发点是好的,能有效减小对其控制,能有效减少有效减少的发点是好的,能有效减少有效减少的发点是好的,能有效减少有效,如何对其控制,还需要不是不够不可以使数。

传统上,很多人认为直接采用建材面析 出率测量来进行质量控制,并且提供了参考 的标准测量方法。有人认为采用活性炭法测 量,有人认为采用密闭腔体法(或者累积盖 法)直接测量。前者觉得活性炭法简单,便 于开展大规模调查,后者结合国内很多单位 都使用 RAD7 测氡仪的现状,方便准确开展 质量控制及管理。但事实上,两者都存在着 些许值得商榷的地方。

活性炭法测量建材氡析出率,其自身原本存在泄漏无法测量和反扩散影响无法修正的问题(多孔疏松建材时该影响无法忽略)。此外,很多人在采用此方法测量时,忽略对建材样品的包裹,使得建材面析出率测量结果完全不是真实情况下(已建成房屋状况下)建材表面的氡析出率,测量结果的代表性值得商榷。

累积盖法采用累积盖收集氡气体,使用RAD7测氡仪进行氡浓度测量。其优点是该方法可以进行短时间内快速测量,反扩散的影响在一定程度上可以忽略。但同样存在过形的问题(虽然可以尽可能密封有问题(虽然可以尽可能密的固有的。而且面析出率的固定,而且面析出率的。有知识是对有的形式,看似同是有密闭腔体法测量建材的修正问题,但是核方的问题。假设对一块核方面析出率代表性的问题。假设对一块核方体建材($a \times b \times c$),假定 a > b 为后面留下一对和的两面(或者包裹五面留下一切如本 $a \times b$ 和 $a \times c$ 面),建材内部的氡流度分布图 3 所示。

从图 3 中可以看出,两种情况下,建材 内部氡浓度分布完全不同,在建材表面处氡

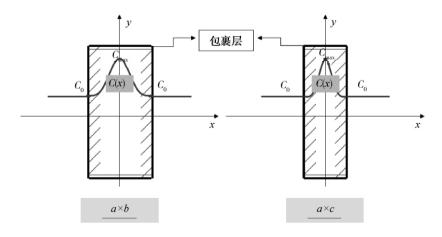


图 3 密闭腔体法测量不同包裹建材氡析出率时,建材中氡浓度分布示意图

Fig.3 Sketch map of radon concentration distributions in building materials with different wrapped methods

浓度梯度不一样,进而导致建材表面氡析出不同。即对于同一块长方体建材,包裹不同的面,即使采用同一种方式测量,得出的建材氦面析出率也是不同的。

到底采用何种指标来控制建材氡析出? 从建材氡析出模型源头上来分析,不难发现, 建材氡析出其实反映了建材本身的固有性质, 取决于建材自身的核素含量、建材的孔隙度、 建材的微孔结构等等。如果用建材氡固有析 出率来表征,则能同时反映不同类型建材上 述因素综合影响的结果。因而,建材氡固有 析出率可以作为建材氡析出率的控制指标。

剩下的问题就是如何建立测量得到的建材"表观氡析出率"和建材氡"固有析出率"之间的关系了。根据之前的研究结果^[12],假设建材是均匀多孔介质,对建材表面进行包裹时,氡气不会从包裹表面泄漏;在裸露面,氡气体由于扩散作用稳态均匀析出。于是,包裹四面和包裹五面,测量得到的析出率和固有析出率之间有如下关系式:

包裹四面:

$$E_{\text{ 测量值}} = (E_0 - \sqrt{\lambda \eta D} C_0) \tanh \left(\frac{1}{2} \sqrt{\frac{\lambda \eta}{D}} d \right)$$
 (1) 包裹五面:

$$E_{\parallel \equiv \pm 0} = D \frac{d}{dx} C \Big|_{x=0}$$

= $(E_0 - \sqrt{\lambda \eta D} C_0) \tanh \left(\sqrt{\frac{\lambda \eta}{D}} d \right)$ (2)

式中, $E_0=\sqrt{\lambda\eta D}$ $\frac{C_{\text{Ra}}S_e}{\lambda\eta}$,即建材氡固有析出率(Bq·m-²·s-¹),只与建材本身的特性有关;D 为氡在建材中的扩散系数(m²·s-¹);d 为建材的厚度(m); C_{Ra} 为建材中 ²⁵⁶Ra 的浓度(Bq·m-³); S_e 为建材氡的射气系数; λ 为 ²²²Rn 有效衰变常数(s-¹); η 为建材的孔隙度。

通过不同包裹情况的测量结果联立求解,可以同时得到建材氡固有析出率和扩散系数,进而对建材氡析出率进行评价和质量控制。

4 结论

通过对建材氡析出模型和建材氡析出率测量方法分析发现:(1)对已建成房屋建材的

氢析出率测量可以直接采用"累积盖"累积 氢气体,短时间内测量可以选用连续式测氡 仪如 RAD7,长时间测量可以选用活性炭吸附 法和固体径迹探测器累积法,后者测量结果 对于评估室内氡暴露水平更有代表性,但需 要仔细考虑可能存在的泄漏和反扩散的影明; (2)对于建材样品氡析出率测量,推荐采用密 闭腔体法测量,测量前需要将建材切割成长 方体,然后包裹四面或者包裹五面后测量; (3)建议采用建材氡固有析出率作为指标来控 制建材质量,更能反映不同类型建材的固有 性质。如果是规格相同的建材,就可以选取 面析出率进行横向比较。

本文初衷在于仔细阐述我们的观点,希望同行们能批评指正。非常感谢上海复旦大学的卓维海教授对 我的启蒙与指导!

参考文献:

- [1] UNSCEAR. Sources and Effects of Ionizing Radiation [R]. 2000.
- [2] Jonassen N. The Determination of Radon Exhalation Rates[J]. Health Physics. 1983 45(2) 369.
- [3] Tuccimei P Moroni M. Simultaneous Determination of ²²²Rn and ²²⁰Rn 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]. Apply of Radiation Isotopes 2006 64 254—263.
- [4] 刘福东. 掺渣建筑材料氡析出率及其限制的研究[D]. 北京:中国原子能科学研究院 2008:
- [5] de Jong P van Dijk W van der Graaf ER et al. National Survey on the Natural Radioactivity and ²²²Rn Exhalation Rate of Building Materials in the Netherlands[J]. Health Physics 2006 91(3) 200— 210.
- [6] 赵静芳. 上海市室内氡浓度水平与建材氡析出率的研究[D]. 上海:复旦大学 2009 9—27.
- [7] Iimoto T Akasaka Y. Development of a Technique for the Measurement of the Radon Exhalation Rate Using an Activated Charcoal Collector[J]. J Environ Radioactive 2008 99 587—595.

- [8] Samulsson C. The Closed can Exhalation Method for Measuring Radon [J]. J Res National Institute Stand Technol ,1990 95(2) :167—169.
- [9] Maged AF Borham E. A Study of the Radon Emitted from Various Building Materials Using Alpha Track Detectors[J]. Radiation Measurements ,1997 ,28: 613—617.
- [10] Christopher YH Chao Thomas CW. Determination of Radon Emanation and Back Diffusion Characteristic of Building Materials in Small Chamber Tests

- [J]. Building and Environment ,1997 ,32 (4): 355—362.
- [11] 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 Physics ,1999 ,76(6) :675—681.
- [12] 雷兴 涨磊 郭秋菊. 密闭腔体法准确测量建材 析出率比较研究[J]. 辐射防护 2011 31(1): 13—16.

Considerations and Measurements of Radon Exhalation Rate

Zhang Lei ¹², Ma Xinhua¹, Guo Qiuju ², Wang Shanqiang¹, Ai Xianyun¹, Shi Zhilan¹

(1. Research Institute of Chemical Defense, Beijing 102205;

2. Department of Technical Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100086)

Abstract: Measurement of radon exhalation rate from building materials and quality control of building materials radon exhalation rate measurement are the hot issues in radiation protection field. Looking for a reference method for measuring, and a reasonable value for controlling, building materials radon exhalation rate will greatly facilitate the evaluation and control of indoor radon exposure hazards. This paper carefully discusses the several problems currently existing in measurement of radon exhalation rate from building materials by analyzing theoretically radon exhalation rate and comparing different measurement methods. Results show that after proper pre-treatment of building material samples, the closed chamber method could be recommended for measuring radon exhalation rate from building materials, and also inherent radon exhalation could be used as indicator for quality control of radon exhalation rate measurement for building materials.

Key words: radon; exhalation rate; building material; measuring method; evaluation & control

(上接第 378 页 Continued from page 378)

concentration.

Abstract: The continuous radon monitor, based on the electrostatic collection, has been widely used at present. However, the collection efficiency of the positively-charged radon progeny in the electrostatic field is influenced by air humidity. By analyzing the two technical routes, we find that this problem can be solved by using drying tubes and the measured value is of high accuracy, but the delay effect of measurement from the gap of the tube increase at the same pump flow rate. Using the temperature and humidity correction curve will lead to additional measurement error due to temperature and humidity measurement, but the delay time of measurement can be minor, and the desiccant does not need

Key words: radon; electrostatic collection; drying tube; corrected curve of temperature and humidity

replacement. It is especially suitable for unattended long-term continuous measurement of radon