

我国部分地区土壤氡析出率的理论模型

孙凯男 郭秋菊 程建平

【摘要】 目的 本研究旨在通过理论研究和实验验证初步建立我国部分地区土壤氡析出率的理论模型。方法 通过对氡在土壤中扩散理论的分析,建立土壤氡析出率数学模型,该模型考虑了土壤的镭含量、射气系数、孔隙度和含水饱和度等因素对氡析出率的影响。为验证此模型,我们在北京、贵阳和内蒙古 3 个不同土壤类型的地区,共 30 处进行了氡析出率及土壤相关物理性质的实际测量。结果 有近 1/3 的样品理论值与实测值吻合比较好。结论 实测结果初步显示出模型的有效性。笔者对误差分布规律及产生原因进行了分析,提出了今后土壤氡析出率模型的改进方向。

【关键词】 土壤性质; 氡析出率; 理论模型; 实地测量

A theoretical model on radon exhalation from soil in some regions of China SUN Kai-nan*, GUO Qiu-ju, CHENG Jiarping. *Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China

【Abstract】 Objective To establish a practical mathematical model for calculating radon exhalation rate from soil in some regions of China. **Methods** Based on soil radon diffusive theory, a model including the influences of soil radium content, emanation coefficient, soil porosity and moisture saturation on radon exhalation was established. To test the model, both field measurements on radon exhalation rate and laboratory experiments on related soil properties were carried out totally at 30 points in Beijing and other cities. **Results** About one third of the samples had very similar calculated values to their measured values. We also discussed the distribution of the errors as well as the reasons causing the errors, which would show direction for the improvement of the model. **Conclusion** In spite of the large uncertainties in the model which is influenced by so many factors, we can see considerable validation of the model.

【Key words】 Soil properties; Radon exhalation rate; Theoretical model; Field measurements

土壤氡析出率是指单位时间、单位面积地面土壤释放到空气中的氡量($Bq \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$)。从全球来讲,环境空气中的氡主要来源于陆地表面释放,占环境空气中氡全部来源的 77.7%^[1]。所以,土壤氡析出率将从根源上评价环境空气中氡水平高低。就世界平均而言,来源于建筑物地基和周围土壤的氡约占室内氡的 60.4%,对于我国的北京地区,这个比例也有 56.3%^[1]。由此可见,土壤氡析出率是影响室内环境氡水平的关键因素。

国际上已有许多国家进行了关于土壤氡析出率理论模型的研究,并在此基础上进行了不同范围内的氡析出率填图研究。考虑到中国广阔的领土面积和复杂多变的土壤与气候类型,在全国范围内大规模测量土壤氡析出率的难度很大,这可能也是我国除了铀尾矿以外的土壤氡析出率测量和研究比较少的原因之一。因此,建立一个简单而有效的评价土壤氡析出率的模型具有理论与现实意义。

笔者首先对氡在土壤中产生、迁移和析出的机理进行理论分析,在此基础上建立了一个基于扩散理论的氡析出率理论模型。为对模型进行验证,我们在北京、贵阳和内蒙古 3

个不同土壤类型的地区共 30 处进行了氡析出率及土壤相关物理性质的实际测量

材料和方法

1. 土壤氡析出率扩散模型的建立

氡的迁移发生在相连的土壤孔隙中,迁移方向一般指向地面。迁移过程包括两种机制:扩散和对流。扩散由土壤孔隙和土壤表面空气中的氡浓度梯度产生,通常用扩散系数来描述,土壤的物理性质如孔隙度和含水量是影响扩散系数的主要因素。扩散是氡的主要迁移方式。

当主要考察中国大范围内土壤氡析出率的长期变换规律时,我们将把重点放在扩散过程及其影响因素上。

在只考虑土壤介质中氡扩散运移的前提下,建立氡在土壤中运移与分布的微分方程如下:

$$D_e \frac{d^2 C}{dx^2} - C + \frac{A}{p_{eff}} = 0 \quad (1)$$

式中, D_e 是氡的有效扩散系数, m^2/s ; C 是土壤孔隙中的氡浓度, Bq/m^3 ; x 是以地面为原点正方向垂直向下的坐标, m ; $\lambda = 2.6 \times 10^{-6}/s$ 是氡的放射性衰变常数; p_{eff} 是土壤的有效孔隙度,无量纲; A 是土壤孔隙中氡的产生率, $Bq \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$, 相当于土壤中氡的源项,可由下式表示:

$$A = RE \quad (2)$$

基金项目:国家自然科学基金资助项目(10375036)

作者单位:100084 北京,清华大学工程物理系(孙凯男、程建平);北京大学物理学院技术物理系(郭秋菊)

式中, ρ 是土壤容重, kg/m^3 ; R 是单位体积土壤颗粒中镭的活度, Bq/kg ; E 是氡在土壤中的射气系数, 无量纲。

式(1)是一个二阶非齐次常微分方程, 给出边界条件: $C|_{x=0} = C_0$; $C|x \rightarrow \infty$ 有界, 可得方程(1)的解为^[21]:

$$C = \frac{A}{p_{\text{eff}}} + \left(C_0 - \frac{A}{p_{\text{eff}}} \right) \exp\left[-\frac{\sqrt{D_e}}{D_e} x \right] \quad (3)$$

式(2)描述了由放射性核素镭衰变产生的氡在扩散作用下于土壤中运移和分布的状态, 它描述的是氡的动态运移。考虑到在土壤与大气交界的地面处氡的通量(也叫射气流密度)是连续的, 可推导出地面处氡析出率理论公式为^[21]:

$$F = p_{\text{eff}} D_e \frac{dC}{dx} \Big|_{x=0} \quad (4)$$

式中 F 为地表氡析出率, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

由式(3)和(4)可得:

$$F = p_{\text{eff}} \sqrt{D_e} \left(\frac{A}{p_{\text{eff}}} - C_0 \right) \quad (5)$$

由于 C_0 通常很低, 可以忽略, 式(5)可化简为:

$$F = \sqrt{D_e} ER \quad (6)$$

另一方面, Rogesr 等^[3]提出的土壤中有有效扩散系数的理论公式为:

$$D_e = p D_0 \exp(-6mp - 6m^{14p}) \quad (7)$$

式中, p 是土壤的总孔隙度; $D_0 = 1.1 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ 是氡在自由空气中的扩散系数; m 是土壤的含水饱和度, 即土壤孔隙中水占的体积百分比。 m 可由下面公式计算得来:

$$m = w/d\rho \quad (8)$$

式中, ρ 是土壤容重; w 是土壤的质量含水率; d 是水的密度, 通常取 $1 \text{ g}/\text{cm}^3$; p 是土壤的总孔隙度。由于土壤固体颗粒的密度比较难于测量, 我们可以根据以往的经验公式^[41], 由土壤的容重直接计算土壤的总孔隙度。

$$p = (93.947 - 32.995 \times \rho) / 100 \quad (9)$$

我们最终将采用式(6)~式(9)的组合作为计算土壤氡析出率的理论公式, 不难看出, 只要有了关于土壤容重(ρ)、土壤质量含水率(w)、射气系数(E)和土壤镭含量(R)的数据, 就可以用上述理论模型来计算和评价土壤氡析出率。其中, w 和 R 可以通过实地采样测量得到, E 采用以往实验得到的经验值, 不同质地类型的土壤采用不同的 E 值, 见表 1。这样根据上述理论公式和实测的土壤性质参数就可以得到氡析出率的理论计算值, 并可通过与现场实测的氡析出率值的比较来检验该理论模型的有效性。

2. 测量仪器和设备

(1) 德国产 ERS-2 氡析出率仪是一个集衰变计数室、PIPS 探测器、256 道谱仪和微机控制系统于一身的静电式氡/钍射气采样器。ERS-2 仪器原理是: 氡进入密封于被测表面的衰变室后, 氡及其子体衰变产生的 α 粒子在衰变室壁 + 2500 V 高压的作用下被收集到探测器表面, 256 道谱仪根据探测到的粒子的不同能量给出能谱, 微机控制系统根据能谱识别出 Rb-218 特征峰, 并根据系统参数计算出氡浓度。

表 1 不同质地类型土壤射气系数^[5]

土壤类型	射气系数	土壤类型	射气系数
砂土	0.14	粉壤土	0.25
砂壤土	0.21	粘土	0.28
壤土	0.24		

(2) 低本底高纯锗 (HPGe) 谱仪用于测量土壤样品的放射性核素含量。该谱仪性能指标: 能量分辨率 ($E = 1.33 \text{ MeV}$) 为 1.87 KeV ; 相对效率 ($E = 1.33 \text{ MeV}$) 为 48.3% ; 积分本底 ($50 \sim 2000 \text{ KeV}$) 为 $85.2 \text{ 计数}/\text{min}$ 。

(3) 激光粒度仪, 用于分析土壤的粒径组成, 以确定土壤的质地类型。不锈钢环刀 (200 cm^3 , 直径 $70 \text{ mm} \times 52 \text{ mm}$)、电子天平 (量程 500 g , 灵敏度 0.1 g)、烘箱等用于采取土壤样品和测量土壤容重及含水率。

3. 实验方法

(1) 野外采样与测量: 土壤表面氡析出率的测量: 将 ERS-2 氡析出率仪的衰变计数室置于平整的土壤表面, 周围用土压实密封。设定计数周期为 10 min , 启动 2500 V 高压开始测量。一般测量 $4 \sim 5$ 个周期, 采用被动扩散和静电收集的方式测量衰变计数室内氡浓度的变化。仪器的液晶屏将显示每分钟的氡浓度值和仪器的系统参数。每个周期末的氡浓度值及其相应的谱数据将被记录和存储到仪器自带的存储器中。环刀采土壤样品: 在测量氡析出率的地点, 用环刀采取天然原状土并密封, 以便带回实验室进行其他参数的测量。为了提高土壤容重和含水率测量的精确度, 每个氡析出率测量点取两个环刀的样品。

(2) 实验室测量与数据处理: 土壤氡析出率数据的读出与计算: 用 PC 机与 ERS-2 通过串口相连, 通过超级终端将 ERS-2 中存储的谱数据读到 PC 机里并保存成数据文本文件。再通过 ERS-2 自带软件 Spectrum 128 读取数据文件并完成氡析出率的计算。氡析出率计算采用多周期氡浓度数据最小二乘拟合的方法求得。具体计算按下面两式:

$$y = a + bx \quad (10)$$

$$F = Vb/S (\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}) \quad (11)$$

式中, 坐标 x 代表测量时间, y 代表不同测量时间点对应的氡浓度, V 和 S 分别为 ERS-2 衰变室的体积和有效收集面积。

土壤容重和含水率的测量: 先用天平称量环刀与天然土的和重, 再把环刀放入烘箱中, (105 ± 2) 烘 24 h 至恒重, 然后称量环刀与烘干土的和重。土壤容重的计算公式如下:

$$\rho = \frac{W_1 - W_h}{V} \quad (12)$$

土壤质量含水率的计算公式如下:

$$w = \frac{W_2 - W_1}{W_1 - W_h} \quad (13)$$

其中, W_2 为环刀与天然湿土的和重, W_1 为环刀与烘干土的和重, W_h 为环刀重。样品处理与核素含量测量: 将从野外采回来的土壤样品放入烘箱, 温度保持在 (105 ± 2) 条件下烘 24 h 至恒重, 然后研磨, 过 60 目土壤筛, 装入低本底 HPGe

表 2 不同地区土壤氡析出率和相关土壤参数的算术平均值及范围

项目	北京		贵阳		呼和浩特	
	\bar{x}	范围	\bar{x}	范围	\bar{x}	范围
容重(g/cm ³)	1.47	1.17~1.63	1.32	0.96~1.54	1.51	1.39~1.61
总孔隙度	0.46	0.4~0.56	0.51	0.44~0.63	0.44	0.41~0.48
含水率(%)	12.8	2.1~18.7	27	18.1~55.4	13	9.3~18.1
含水饱和度	0.43	0.05~0.7	0.67	0.38~0.85	0.46	0.27~0.65
有效扩散系数(10 ⁻⁶ m ² /s)	1.7	0.4~5.3	0.63	0.07~1.7	1.5	0.6~2.5
射气系数	0.21	0.21~0.25	0.26	0.24~0.28	0.22	0.21~0.24
镭含量(Bq/kg)	24.5	19.75~31.4	132	32.4~493.1	17.9	15.3~21.1
析出率理论值(mBq m ⁻² s ⁻¹)	14	9.4~22.6	60.5	8.2~265.5	10.2	7.8~13.6
析出率实测值(mBq m ⁻² s ⁻¹)	17	3.2~49.9	34.8	4.6~128.5	14	2~29

注:样品数北京为 21,贵阳为 6,呼和浩特为 3

谱仪要求的标准样品盒(220 cm³,直径 75 mm ×50 mm),密封 20 d 以上。根据样品放射性强弱选择测量时间,一般在 6~8 h。土壤样品粒径分布的测量:将从野外采回来的土壤样品放入烘箱,温度保持在(105 ±2) 条件下烘 24 h 至恒重,过 20 目土壤筛,装入密封袋。送往中国地质大学海洋地质研究所,用该单位激光粒度仪对样品进行商业性测量。结果将给出样品中所有不同粒径的颗粒按体积的百分比。

结 果

我们于 2003 年 6 月~9 月在北京、贵阳和内蒙古 3 地共 30 个点进行现场土壤氡析出率的测量和采样分析,采样点多选择在农田、果园和农家院及学校等处,结果如表 2 所示。其中大部分测量和采样点选在北京,北京的土壤样品绝大多数为砂壤土,贵阳的土壤偏粘性,内蒙古的土壤偏砂性。由表 2 可以看出,北京和呼和浩特的土样性质比较接近,各项参数都比较一致,均为我国北方典型砂壤土属性。贵阳土壤的含水率明显偏高,镭含量也很高,相应的氡析出率理论值与实测值也都偏高,这个结果比较符合全国土壤核素调查中显示的贵州为全国平均土壤镭含量最高的省份这个实测结果^[6]。

讨 论

理论值与实测值的比较

由于模型的简单化和测量土壤参数过程中的不确定性,总体来说本次工作的实测氡析出率与用上述理论模型计算出的氡析出率相比还是有较大误差的。为了表示不同样品理论值与实测值的吻合程度,引入相对误差的概念,定义如下:

$$\text{模型相对误差} = \frac{|\text{理论值} - \text{实测值}|}{\text{实测值}} \quad (14)$$

所有 30 个样品的平均相对误差为 1.0,误差分布情况见图 1。

其中,模型的相对误差与样品的实测氡析出率和含水率的关系很大,分别见表 3 和表 4。由表 3 可见当实测氡析出率值在 10~20 mBq m⁻² s⁻¹ 之间时相对误差是最小的,而当实测值较大和较小时误差都很大,可见该理论模型对于中等氡析出率的土壤具有较好的模拟效果,而在析出率较大和较

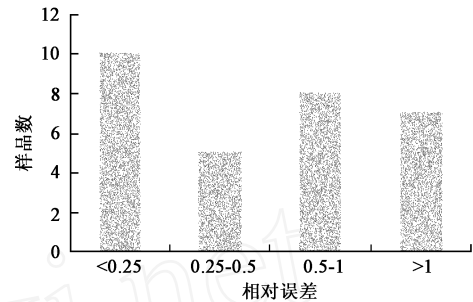


图 1 样品理论值与实测值的相对误差分布

小的情况下作用不大。

从表 4 可以看出,该模型应用的效果还受土壤的含水率影响,对于含水率在 10%~15% 的土壤相对误差较小,而在含水率较大的情况下误差比较大,对于含水率特别小的样品误差尤为显著。

表 3 模型的相对误差与样品实测氡析出率的分布

实测值(mBq m ⁻² s ⁻¹)	样品数(n)	平均相对误差
<10	10	1.76
10~20	12	0.25
20~30	3	0.5
30~40	1	0.56
>40	4	1.88
全部	30	1.0

总体来看,模型的理论计算氡析出率值对于中等析出率水平和中等含水程度的土壤与实测值吻合比较好,对于特别干燥的土样和析出率水平较高的土样误差较为明显。

表 4 模型的相对误差与样品含水率的分布

土壤质量含水率(%)	样品数(n)	平均相对误差
0~5	1	1.54
5~10	4	1.53
10~15	11	0.63
15~20	9	1.22
>20	5	0.86

这种误差的产生来源于两个方面,一方面是模型自身忽

略了一些氡析出过程中的影响因素,另一方面是来源于测量的误差和土壤本身的不均匀性。模型主要考虑的是扩散作用主导的氡析出过程,而对流作用、土壤的渗透性等因素在某些情况下将很大程度上影响氡析出过程,这些都是该模型没有考虑的。另外,该模型并没有考虑氡析出过程中固体颗粒对氡原子的吸附作用,而这种吸附作用在含水较低的土壤中将很显著^[3],这可能是对于含水较低的土样,实测值远低于理论值的原因之一。除了模型自身的原因,测量土壤各项参数的过程也可能产生很大的误差,如镭和水在土壤不同深度和不同空间上分布的不均匀,可能导致测得的参数与实际情况相差甚远。

但对于如此多因素拟合、不确定度很大的模型,有近 1/3 的样品理论值与实测值吻合的比较好,初步说明了该模型的实际应用价值。

以往研究土壤氡析出率影响因素和理论模型时,多在实验室内土箱中装入参数人为设计并可人为改变的土壤来进行研究^[7]。这样的研究方法好处在于,可以人为控制使一些参数恒定而另一个或一些参数改变,从而可以精确定量的研究土壤氡析出率随可改变参数的变化规律。但是缺点在于,土壤经过大量的人为加工,结果可能不能反应错综复杂的天然原状土。本次研究采用天然原状土实地测量的方法来获得不同土壤样品的各种参数,这样的好处在于可以了解天然土壤的各个参数的数值范围和大致变化规律,缺点在于各种参数之间的关系很难量化,土壤氡析出率实测结果往往是多种因素,包括我们没有测量的对流、吸附以及气压、气温等气象因素共同作用的结果。

本次实地测量工作虽然数量有限,但覆盖了土壤氡析出

率和容重、含水率、粒径分布等诸多参数,为今后相关方面的研究工作提供了重要参考数据。同时,本研究提出的理论模型,在多因素实测而没有人为控制因素的情况下,有 1/3 的样品与实测值吻合较好,初步体现了它的可行性。而且,吻合不好的样品同样也为我们提供了关于氡析出机理及影响因素的重要信息。从比较结果我们得知在低含水率和高析出率的情况下,即使是北方的砂性土壤也不适合用该模型来估算氡析出率,这是我们将来对模型进一步修正的研究方向,从而为最终建立一个具有更强适应性、更完善的用于大范围评估我国土壤氡析出率的模型奠定基础。

参 考 文 献

- 1 任天山. 室内氡的来源、水平和控制. 辐射防护, 2001, 9: 291-298.
- 2 张哲. 氡的析出与排氡通风. 北京: 原子能出版社, 1982. 38.
- 3 Rogers VC, Nielson KK. Multiphase radon generation and transport in porous materials. Health Phys, 1991, 60: 807-815.
- 4 中国科学院南京土壤研究所土壤物理研究室. 土壤物理性质测定法. 北京: 科学出版社, 1978. 28.
- 5 <http://web.ead.anl.gov/resrad/datacoll/radon.htm>: TABLE 8. 1
- 6 全国环境天然放射性水平调查总结报告编写小组. 全国土壤中天然放射性核素含量调查研究(1983-1999). 辐射防护, 1992, 12: 122-141.
- 7 Shweikani R, Gaddui TG, Durrani SA. The effect of soil parameters on the radon concentration values in the environment. Radiat Meas, 1995, 25: 581-584.

(收稿日期: 2003-10-10)

广州市路平防护器材有限公司

邵阳路平射线防护材料厂产品介绍

20 年专业研制、生产铅板、铅玻璃、防护涂料、电动(遥控)

不锈钢射线防护门等各种防护器材

联系电话 :020-84507647 020-34509291