

土壤氡析出率影响因素及估算模型

程冠 程建平 郭秋菊

【摘要】 目的 通过对某定点处土壤氡析出率的长期测量观察,分析并总结环境因素对氡析出率的影响规律。方法 使用 ERS-2 静电收集式氡采样测量仪,每次采样累积时间 40 min,每 10 分钟测量一次氡浓度,通过线性拟和求出土壤表面氡析出率;利用已有的数学模型对测量结果进行估算和评价;同时测量环境空气的湿度、温度、土壤含水量和土壤氡浓度。结果 春季土壤氡析出率平均值为 (24.9 ± 5.6) mBq/(m²·s),夏季平均值为 (11.9 ± 3.4) mBq/(m²·s)。结论 在影响土壤氡析出率的诸因素中,湿度非常重要,而环境温度对氡析出率的影响相对较小;测量期间环境气压变化不明显,没有观测到气压对析出率的影响。开展土壤射气系数的研究,将有助于阐明多种环境因素对土壤表面氡析出率的影响。

【关键词】 氡析出率; 土壤氡; 气象因素; 估算模型

Discussion of influencing factors on the radon exhalation rate and theoretical model CHENG Guan, CHENG Jiar-ping, GUO Qiu-ju. Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China

Corresponding author: GUO Qiu-ju, Email: qigu@pku.edu.cn

【Abstract】 Objective Long term continuous measurements of radon exhalation were conducted at one site in order to clarify the contribution of the environmental factors. **Methods** The radon concentration was measured by ERS-2 Electrostatic Radon/Thoron Sampler in 40 minutes. The sampler monitored the concentration at intervals of 10 minutes. The radon exhalation rate was determined by the linear increase of the concentration. The result was estimated with a theoretical model. At the same time, the temperature, barometric pressure, and the humidity of the soil and air are measured. **Results** The exhalation rate of radon is (24.9 ± 5.6) mBq/(m²·s) in spring and (11.9 ± 3.4) mBq/(m²·s) in summer while the humidity of the soil and air in summer are markedly higher than that in spring. **Conclusions** The main influencing factor on the variation of exhalation rate is the humidity. The influence of temperature and barometric pressure was not observed. It will make the mechanism for radon exhalation more clear to study the emanation power of soil.

【Key words】 Radon exhalation; Soil radon; Influencing factors; Theoretical model

土壤氡是大气氡的主要来源,氡从含镭土壤颗粒中衰变产生之后,通过析出作用由地表进入大气,因此,研究土壤中氡析出率,对于地质控制氡以及铀矿开采和退役的辐射防护有着重要意义。同时,研究氡从土壤中的析出过程,也可以为其他土壤气体析出规律的研究提供参考。土壤氡的析出在天然条件下,受到土壤特性、气象条件以及地质特性等诸多因素的影响,主要包括温度、湿度、降雨、气压和土壤颗粒性质等,多种因素同时综合地作用于土壤氡向大气介质的析出扩散过程,这对氡析出率的影响更加复杂。自然环境中的定点测量,可以排除某些土壤特性和地质因素的影响,从而更好地研究气象因素对土壤氡析出率的影响规律。

材料和方法

1. 测量地点及测量时间:为了准确地了解土壤氡析出率的变化,在中国地质大学校园内(北京市海淀区)选取一处裸露平地,对氡析出率进行长期测量。此地点为一历史较长的绿化区,土层较厚,表面平整,且不易受外界干扰,适合做长期观测;根据取样测量以及全国土壤调查分析,该地土壤类型为砂壤土;测量时间为 2005 年 4~8 月,于春、夏季间断性地取点测量。

2. 土壤表面氡析出率的测量:使用 ERS-2 静电收集式氡采样器测量仪(德国 Tracerlab)测量氡析出率。该系统由氡气收集室、PIPS 探测器、256 道谱仪和微机控制系统组成。测量原理如下:采样时间 40 min,每 10 分钟给出一个氡浓度,之后通过线性拟和求出土壤表面的氡析出率。

3. 土壤氡浓度的测量:使用上海仪器厂的 FD-3017,按照仪器标定时给出的测量静电累积时间(2 min)和测量时间(2 min),由仪器的计数通过换算给出土壤中氡浓度。

基金项目:国家自然科学基金资助项目(10375036)

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

通讯作者:郭秋菊,Email:qigu@pku.edu.cn

4. 土壤中核素镭的测量:对析出率测点 1 m × 1 m 内的土壤采样,取样深度为浮土以下,经研磨干燥后采用低本底高纯锗(HPGe)谱仪,对土壤样品进行放射性核素含量的测量。谱仪能量分辨率($E = 1.33 \text{ MeV}$):1.87 keV;相对效率($E = 1.33 \text{ MeV}$):48.3%;积分本底(50~2000 keV)85.2 计数/min。整个测量分 2 次进行,得出此点土壤镭含量为 64.7~73.4 Bq/kg。

5. 土壤含水率的测量:对析出率测点 1 m × 1 m 内的土壤采样,取样深度为浮土以下,取回后在实验室用烘箱 180 烘烤 12 h,通过称量样品前后的质量确定土壤的质量含水率。

6. 气象参数的测量:每次测量氡析出率的同时,还在测量地点以空盒气压计测量记录环境空气的大气压力,通过电子温湿度仪记录大气温度和湿度。

7. 估算模型:对氡的来源,有不少研究提出了多孔介质氡析出率的理论模型,其中最为完备、应用最广的是 Rogers 在 1991 年提出的扩散-渗透模型^[1],此模型的一维无限介质的表达方程为:

$$D_c \frac{d^2 C_a}{dx^2} - \frac{K_c}{v} \left(\frac{dP}{dx} \right) \left(\frac{dC_a}{dx} \right) - C_a + \frac{R \cdot E_c}{p} = 0 \quad (1)$$

式中, D_c 为氡在土壤中的扩散系数, m^2/s ; K_c 为土壤渗透系数, m^2 ; v 为黏滞系数, $\text{Pa} \cdot \text{s}$; C_a 为土壤气体中的氡浓度, Bq/m^3 ; λ 为氡的衰变常数, s^{-1} ; R 为单位质量土壤中的镭含量, Bq/kg ; ρ 为土壤密度, kg/m^3 ; E_c 为土壤的射气系数; p 为土壤的孔隙度。式中左边第 1 项为扩散项,第 2 项为渗流项,第 3 项是衰变项,第 4 项是产生项。在以扩散为主、渗流可以忽略的运移中,方程可以简化为:

$$D_c \frac{d^2 C_a}{dx^2} - C_a + \frac{R \cdot E_c}{p} = 0 \quad (2)$$

再由析出率定义 $F = p D_c \left. \frac{dC}{dx} \right|_{x=0}$, 得出析出率的表达式

$$F = \sqrt{D_c} \cdot E_c \cdot R \quad (3)$$

其中氡在土壤中的扩散系数由下式确定

$$D_c = p D_0 \exp(-6mp - 6m^{14p}) \quad (4)$$

式中, $D_0 = 1.1 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, 为氡在空气中的扩散系数。而又由经验公式得到 $m = w/dp$, $p = (93.947 - 32.995 \times w)/100$, 其中 w 为土壤的质量含水率, $d = 1000 \text{ kg}/\text{m}^3$ 是水的密度,这种简化模型在铀矿的氡析出率评价中被推广,并作为参考应用于很多研究中^[2,3]。在本文的研究中,采用此理论模型对现场的实际测量结果进行评价比较。

结 果

对 2005 年 4 月~8 月设定的 26 个点的测量结果进行分析。从时间上,测量分为春、夏两季,测量结果见表 1。由于夏季多雨,为避免湿度对于静电收集产生的影响,在雨后 2 d 内不予测量,因此,夏季测点少于春季测点。就长期平均值来看,春天的析出率明显比夏天高。

表 1 春、夏 2 季定点测量土壤氡析出率的参数值

参数	春季		夏季	
	平均值	范围	平均值	范围
氡析出率 [$\text{mBq}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$]	24.9 ± 5.6	15~41.6	11.9 ± 3.4	7.71~22.4
空气湿度 (%)	27.3 ± 2.6	10.2~68.7	66.8 ± 5.9	57.6~79.5
空气温度 (°C)	22.4 ± 4.5	8.5~35.8	26.4 ± 1.0	24.1~28.2
空气压力 (kPa)	100.7 ± 0.5	99.4~102	99.8 ± 0.5	99.2~100.9
土壤含水率 (%)	12.6 ± 2.1	8.1~17.7	15.6 ± 2.2	6.8~18.2
土壤氡浓度 (Bq/m^3)	1795	431~3100	1410	258~3272

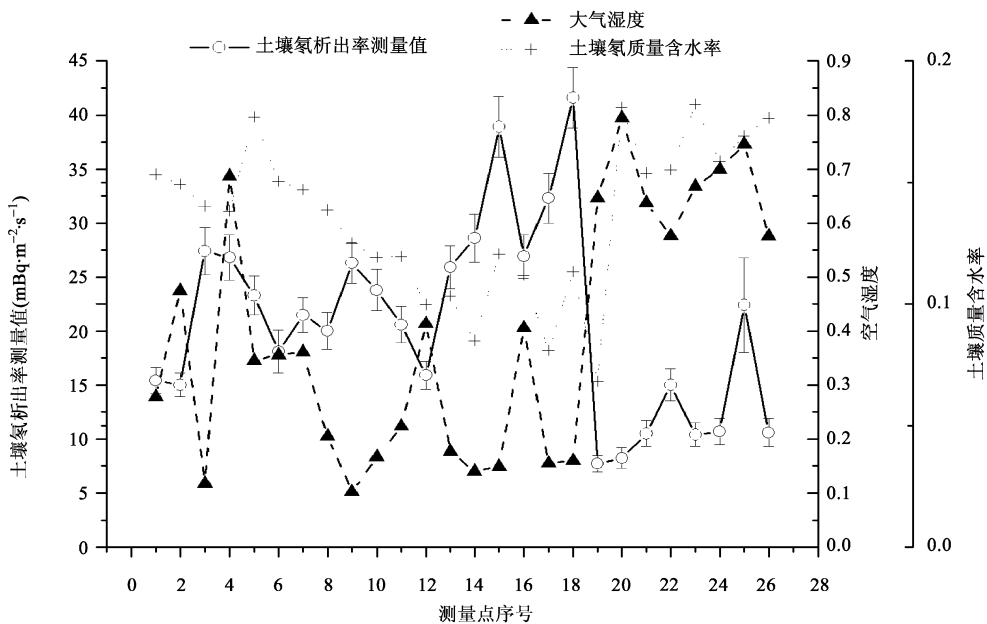


图 1 氡析出率和湿度的相关性

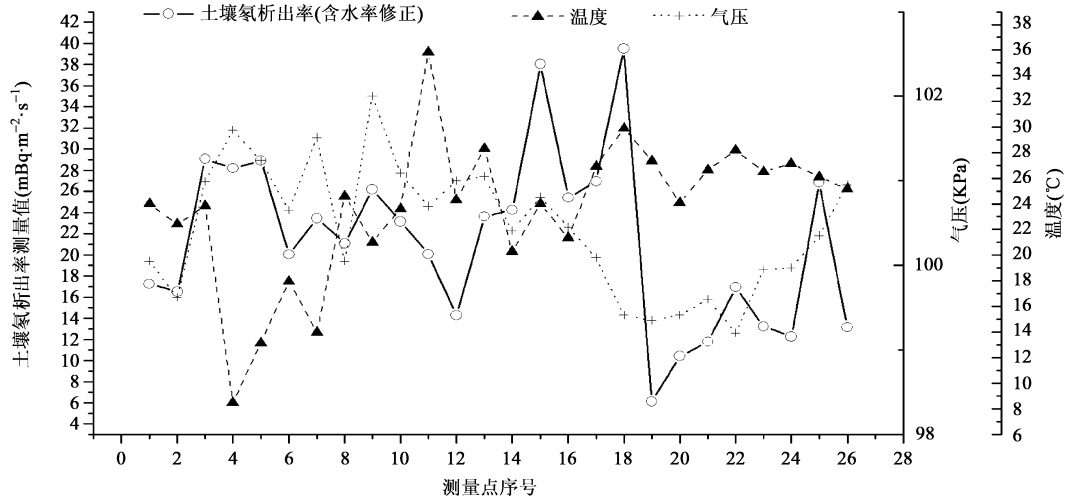


图 2 氡析出率与温度和气压的关系

1. 湿度对氡析出率的影响:图 1 是春季土壤析出率和大气湿度以及土壤含水率的曲线,可以较明显地观察到两者的负相关关系,即环境潮湿,析出率降低。为进一步比较,还对土壤含水率和土壤氡析出率进行了分析, r 为 -0.43 ,而大气湿度和土壤氡析出率的 r 为 -0.70 ,空气湿度对析出率的影响较土壤含水率的影响要大。分析其中原因,可能是在此土壤含水率范围内 $8.1\% \sim 17.7\%$,土壤含水率增加导致氡的射气系数降低,而大气湿度的增加则降低了土壤空隙的渗透性;综合上述两者,土壤析出率会降低,而相对来说,渗透性的变化对于土壤氡的析出影响更为明显。

2. 温度和气压对析出率的影响:为了排除土壤湿度可能带来的影响,在分析其他因素对析出率的作用时,应用上面提到的析出率简化计算公式,对析出率的结果做了土壤含水率归一化的修正,即通过公式将所有的析出率值化为平均土壤湿度,以此分析温度和气压对析出率的影响。

(1) 温度对土壤析出率的影响:在对图 2 的直接观察中,无法看出两条曲线之间的明显联系 (r 为 -0.22),这说明土壤氡析出率与测量温度间的关系不是很相关。虽然理论上温度升高,气体分子运动剧烈,气体析出后扩散的运动更加明显,氡析出率应该有所升高,但是实际测量中并没有发现此规律,分析其中的原因,可能是环境温度变化的差异 ($8.5 \sim 35.8$) 所造成析出率的差异较小,相对于其他因素影响并不非常明显。

(2) 气压对土壤析出率的影响:气压的变化能使氡析出率产生较大的瞬时变化^[6],主要原因是大气压力的变化使得大气和土壤间产生压力梯度,导致气体垂向渗流,由图 2 可以看出在环境测量中气压变化范围非常小 ($99 \sim 102$ kPa),且变化缓慢,因此压力梯度造成的渗流作用也不明显;但有文献[4]指出,土壤压力和大气压力之差对土壤析出率的渗流作用有显著的影响,因为本研究工作中没涉及到土壤内部压

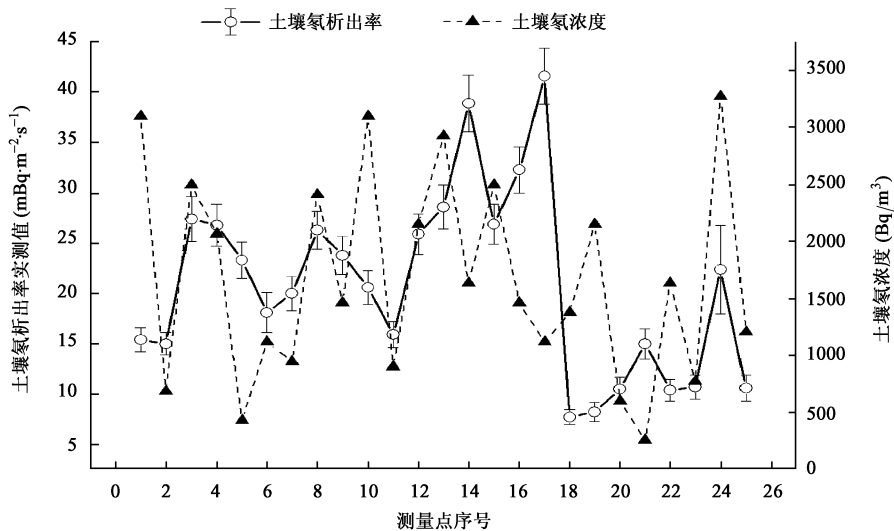


图 3 土壤氡浓度与氡析出率的关系

力的测量,所以无法详细阐述两者的关系,但图 2 析出率与大气压力所展示的正相关关系有可能是因为大气压力增加,其与土壤压力差增大,造成土壤析出率的增加。但是也有的研究得出相反的规律^[5]。

综合以上分析,由本实验测得的数据看来,气象因素中,对析出率影响最大的是环境空气中湿度的影响,温度的影响是最小的。因此相对来说,湿度在计算和预测氡析出率中更重要。

3. 土壤氡浓度与氡析出率的关系:见图 3。从季节上看,土壤氡浓度与析出率的变化趋势有相似之处,这可能是前文所提出的土壤湿度影响了氡在土中的渗透性,但是就两者数据而言,两者的相关性甚低(r 为 0.05);土壤氡浓度的变化更为剧烈,原因可能是土壤中氡的射气系数受土壤性质,如含水率等影响较大。需要指出的是,导致土壤氡浓度剧烈变化的重要因素来自于采样和测量,每次测量值与抽气的效率、抽气时在土壤内产生的负压也有很大关系,这样土壤氡浓度的测量值就包含了更多土壤内部的影响因素;而析出率的瞬时测量值更多地涉及到土壤氡析出至表面,所以与大气之间的变化联系的更为紧密。

为了更进一步说明抽气测量所带来的测量土壤氡浓度的不准确性,计算了土壤氡浓度和土壤质量含水率的关系(r 为 -0.16),土壤质量含水率是对土壤氡浓度影响最为密切的土壤性质,但是从测量结果上分析,两者的相关性也不高,

而且氡浓度的变化较杂乱,无明显规律。这进一步说明了抽气测量氡浓度的结果的复杂性。

4. 析出率模型估算结果:应用实测析出率值验证多孔介质析出率模型进而对模型进行评价和改进是研究的关键,以往研究表明,考虑的因素越多,与实际结果拟和得越好,但复杂的模型却增加了测量的工作量和难度,例如文献[4]中的模型除了要测量土壤性质以外,还必须了解土壤中的气体压力梯度,这在大范围预测氡析出率中是很难实现的,图 4 是应用简化公式(3)对析出率进行计算的结果。

从图 4 中看出,总体上实测值比理论值大,主要原因在于计算中射气系数采用的实验室测量值 $E_c = 0.074$,此值相对于已有资料中同种土壤的均值 $E_c = 0.14$ 要低,但计算析出率实测值的时候,析出率与射气系数呈线性增长关系,所以计算的估计值偏低。

另外,计算值的变化明显不及实际测量值变化的剧烈,这是因为实际测量中影响的因素非常多,而且各种因素之间也相互作用,使得析出率的变化非常复杂,而模型建立时各个因素的影响都是相对孤立的,简化了的模型尤其如此;因此模型不能很好地反映土壤氡析出率的瞬时变化。

图 4 中两条曲线的变化趋势较为一致,说明了模型对土壤氡析出率的较长期变化能够有一定的预测性,这对我们以后的研究还是相当有用的,因为对一个地区的氡潜势做评价的时候,起决定作用的应该是长期的均值。

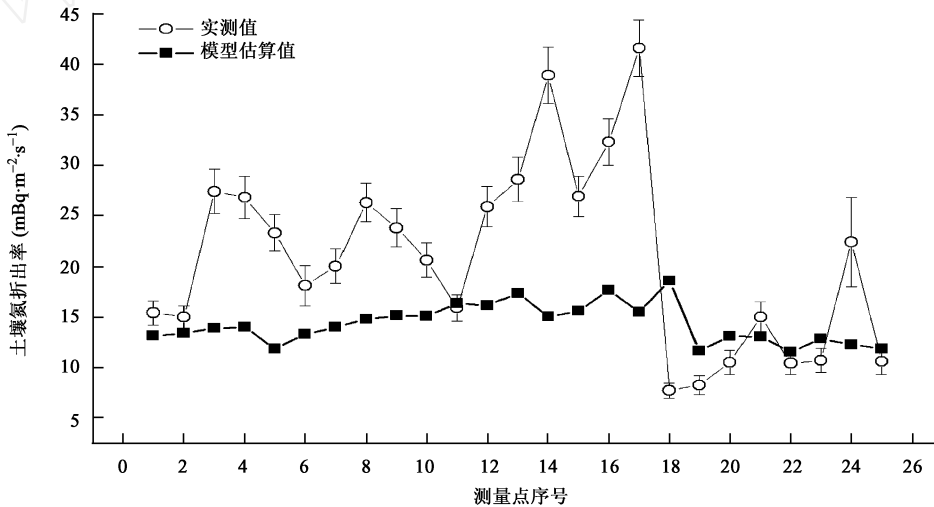


图 4 土壤氡析出率实测值与理论计算值的比较

讨论

土壤氡析出率受到众多影响因素的控制和影响,即使是在同一个地点,仍然会有很大的变化。各个影响因素相互之间也互相制约,而且在天然条件下,这些因素的变化范围都不是很大,这使得分析天然土壤氡析出率的影响因素相当困难。

在影响土壤氡析出率的各项因素中,湿度是非常重要的因素。从本实验的结果来分析,有可能是夏天多雨空气较湿

润,影响了土壤的渗透性,所以使得析出率偏低;而环境温度对氡析出率的影响较小,大气压力因为本身变化范围很小,而且本实验无法给出土壤和大气之间的压差,所以无法给出确切的规律。

瞬时测量土壤氡析出率虽然测量时间短,测量值较精确,但是测量值随环境影响变化较大,很难通过一个测量值对一个地区的析出率做出整体评估。

在应用数学模型计算氡析出率时,有必要研究射气系数的测量方法,因为目前还没有一套射气系数测量的标准,测

准射气系数及研究其变化规律对于析出率模型的建立和修正有很重要的意义。

应用数学模型对析出率计算时,无法体现氡析出率短期内的瞬时变化,但是对于一个地区长时期内氡水平的评价,完善一套相对简单且较为准确的计算模型是很有必要的。

参 考 文 献

1 Rogers VC, Nielson KK. Multiphase radon generation and transport in porous materials. Health Phys, 1991, 6:807-815.

2 IAEA. Measurement and calculation of radon releases from uranium mill

tailings. Vienna: IAEA, 1992.

3 孙凯男,郭秋菊,程建平.我国部分地区土壤氡析出率的理论模型.中华放射医学与防护杂志,2004,6:581-584.

4 Clemens WE, Wilkening MH. Atmospheric pressure effects on ²²²Rn transport across the earth/air interface. J Geophys Res, 1974, 33:5025-5029.

5 李韧杰.氡析出率的测定及其影响因素的探讨.铀矿冶,2000,1:56-61.

6 张哲,主编.氡的析出与排氡通风.北京:原子能出版社,1982.

(收稿日期:2005-12-30)

上海轨道交通 3 号、5 号线氡浓度调查与评价

高林峰 苏瑾 张力 沈耀芳 陈丽芳 沈金福

上海轨道交通 1、2 号线相继投入运营后,3、5 号线也分别于 2002 年和 2004 年建成通车。为了解 3、5 号线车站的氡水平,笔者对其浓度进行了测试。

一、材料和方法

1. 调查对象:上海轨道交通 3、5 号线所有车站站长室。3、5 号线均为地面高架轻轨,站台层采用半敞开式,通风情况良好,人员停留时间短;站厅层位于站台下层,通风条件较差,是工作人员办公用房所在层次。站长室多位于站厅层中间,具有良好的代表性,因此选择其为测量点。

2. 仪器:Alpha GUARD PQ2000 多功能测氡仪,德国 Genitron 电子仪器公司产品,探测灵敏度 1/min,探测下限 < 2 Bq/m³,上限 2 × 10⁶ Bq/m³,仪器每年定期送中国计量院检定。该仪器有灵敏度高、动态范围宽、响应快、本底低、结构牢固、操作方便、易于携带等优点。

3. 氡浓度的测定方法:采样前关闭采样房间门窗 24 h。采样时将仪器置室内中心位置,采样口距地面 1.5 m。采样 60 min,直接读取第 1 个测量值,再采样 60 min,直接读取第 2 个测量值,取两次结果的算术平均值作为该采样点的氡浓度。测量时间选在每天 8:30—10:30。3 号线于 5 月份测量,5 号线于 10 月份测量。

4. 结果评价:按照我国《民用建筑工程室内环境污染控制规范》^[1]为评价标准。

5. 统计学处理:将数据输入 Excel,用 SPSS 11.0 进行统计分析,组间差异的显著性检验采用单因素方差分析法,并对氡浓度与各条件指标间的相关性进行分析。

二、结果

1. 上海轨道交通 3 号、5 号线车站氡浓度:检测结果表明,上海轨道交通 3 号线的 20 个车站(包括停车场 1 处),氡浓度最低 6.5 Bq/m³,最高 41.8 Bq/m³,平均 15.3 Bq/m³;5 号

线 11 个车站,氡浓度最低 16.3 Bq/m³,最高 110.3 Bq/m³,平均 44.9 Bq/m³。两条线路的测量结果比较(单因素方差),3 号线车站站长室氡浓度水平明显比 5 号线车站站长室低($P = 0.00$)。

2. 测试条件比较分析:由表 1 可见,测试 5 号线时的环境温度平均值较测试 3 号线时高 2.5 ($P = 0.00$),而大气压则低 0.4 kPa ($P = 0.06$),相对湿度高 0.6% ($P = 0.90$)。相关性分析表明,氡浓度测定值与环境温度呈明显正相关($r = 0.35, P = 0.05$),而与大气压($r = 0.15, P = 0.43$)、环境相对湿度($r = -0.01, P = 0.95$)的相关性不明显。

表 1 轨道交通 3 号、5 号线氡浓度测试条件比较

测试条件	线路	均值 (Bq/m ³)	标准差 (Bq/m ³)	范围 (Bq/m ³)	F 值	P 值
气温()	3	23.5	1.9	20.0~27.0	18.40	0.00
	5	26.0	0.5	25.0~27.0		
大气压(kPa)	3	101.7	0.6	100.2~102.7	3.86	0.06
	5	102.1	0.7	100.9~103.1		
相对湿度(%)	3	50.6	12.7	28.0~73.0	0.02	0.90
	5	50.0	8.0	38.0~60.0		

3. 测试点楼层分布比较分析:各车站站长室楼层分布情况:3 号线 1、2、3 层分别为 14、3 和 3 站点,5 号线 11 个站点全部位于一层。3 号线检测点 2、3 层的车站氡浓度较 1 层的分别低 17.5% 和 24.6%。同样位于 1 层的 3 号和 5 号线车站的氡浓度值差异有统计学意义($P < 0.05$),见表 2。

表 2 测试点楼层分布比较

交通线 (号)	楼层	站点数	均值 (Bq/m ³)	标准差 (Bq/m ³)
3	1	14	16.3	8.4
	2	3	13.4	4.9
	3	3	12.6	5.1
5	1	11	44.9*	29.9

注:与 3 号线一层比较 * $P < 0.05$

作者单位:200336 上海市疾病预防控制中心放射卫生科