

室内氡子体行为模型研究

张 磊,李宏钊,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:室内氡气体衰变产生短寿命氡子体,其子体的行为受室内换气状况、墙壁附着、子体同气溶胶粒子结合等物理过程的影响,宏观表征是未结合态份额和平衡因子受换气率、气溶胶浓度及气溶胶粒径分布状况等参数的影响。本文通过建立模型对室内氡子体行为进行了理论研究,重点考虑了换气率、气溶胶状况对未结合态份额和平衡因子的影响。计算结果表明平衡因子随换气率的增加而迅速减小,未结合态份额随气溶胶粒径分布的减小而迅速增加,气溶胶浓度只有在非常低的情况下才对未结合态份额和平衡因子产生明显影响。

关键词:氡子体;未结合态份额;平衡因子;气溶胶浓度;粒径分布

中图分类号:R144.1;TL84

文献标识码:A

1 前言

氡(^{222}Rn)及其子体所致人类呼吸道内照射剂量约占人类受到的天然辐射照射总量的一半以上^[1],其中,氡子体的剂量贡献占绝大部分,因此,对居室内环境中氡子体所致辐射剂量的准确估算有重要的辐射防护意义。

传统上,在开展居室内氡水平调查时通常采用基于被动扩散法的长期累积测量,得到测量期间内氡浓度的平均值。估算氡子体暴露剂量时则采用一个人为定义参数——平衡因子 F (表征氡与子体之间的放射平衡关系,ICRP 65号报告推荐值为0.4^[2]),计算表征氡子体活度浓度的平衡当量氡浓度(EEC),之后根据 UNSCEAR 给出的有效剂量转换系数 [$DCF, 9 \text{ nSv} \cdot (\text{Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3})^{-1}$]^[1]来估算氡子体的暴露剂量。实际上,这只是一种简便、粗略估算氡子体暴露剂量的过程。由氡子体吸入所致的呼吸道有效

剂量与氡子体的诸多物理特性有关,例如氡子体的结合状态(常用未结合态份额 f_p 表示)、放射性气溶胶粒径的分布状态(常用活度中值空气动力学直径 $AMAD$ 和几何标准差表示)等^[3]。上述参数直接决定了有效剂量转换系数的大小。而室内氡子体未结合态份额、结合态粒径分布又取决于居室内的空气环境状态,与湿度、换气率、非放射性气溶胶的浓度和粒径分布以及墙壁附着状况等因素有关。

由于在测量现场对上述诸多环境物理参数进行测量是不现实和不必要的,因此,在研究室内氡暴露问题时,人们常通过建立模型的方法,从理论上对氡及其子体的行为特性进行研究,探讨诸多室内环境参数对氡子体行为特性的影响,从而精确估算氡子体有效剂量转换系数。

本文从室内氡及其子体的行为特性分析出发,对30多年来室内氡子体模型的研究进行了

收稿日期:2008-12-22

基金项目:国家自然科学基金资助项目(10775007);国家基础学科人才培养基金(北京大学核物理基地:J0730316)。

作者简介:张磊(1983—),男,2006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:swofely@hotmail.com

通讯作者:郭秋菊。E-mail:qjguo@pku.edu.cn

提炼整理,建立了完整的用于室内氡子体行为模型研究的理论模型,并采用该模型,分析讨论了不同室内环境参数对氡子体行为的影响。

2 室内氡子体模型

2.1 室内氡子体行为特征

室内氡子体的行为如图 1 所示。

^{222}Rn 从建材或土壤表面析出后进入室内空间,衰变产生带正电或中性的 ^{218}Po 原子。 ^{218}Po 原子很快同空气中水分子结合,形成团簇(Cluster)。该过程发生的时间非常短($\sim 1\text{ s}$),形成的团簇粒子粒径非常小($0.5\sim 5\text{ nm}$),其分布受空气湿度的影响。团簇粒子扩散系数较大,能够同空气中气溶胶粒子结合,产生结合态放射性气溶胶,该过程称为“结合过程”(Attachment Progress)。习惯上,我们称团簇粒子为未结合态粒子,结合过程产生的粒子为结合态粒

子。

“结合过程”受团簇大小和室内气溶胶粒子粒径分布的影响,因而产生的结合态放射性气溶胶粒子的粒径分布,不仅取决于未结合态粒子的扩散系数,还取决于大气气溶胶的粒径^[4]。未结合态和结合态氡子体在空气中除衰变损失外,还会通过附壁(Wall deposition)、换气(Ventilation)等过程损失。

衰变过程中有一个“结合过程”相反的过程,我们称其为“解吸过程”(Desorption progress)。结合态 ^{218}Po 粒子衰变放出 α 粒子,其产生的反冲核经衰变产生的 ^{214}Pb 粒子能量约为 117 keV,如此高的能量使得其以一定的几率脱离气溶胶粒子的吸附,成为未结合态粒子^[5]。而对于结合态 ^{214}Pb 和 ^{214}Bi 粒子,由于其发生的是 β 衰变,反冲核能量非常小,不足以使其发生解吸附。

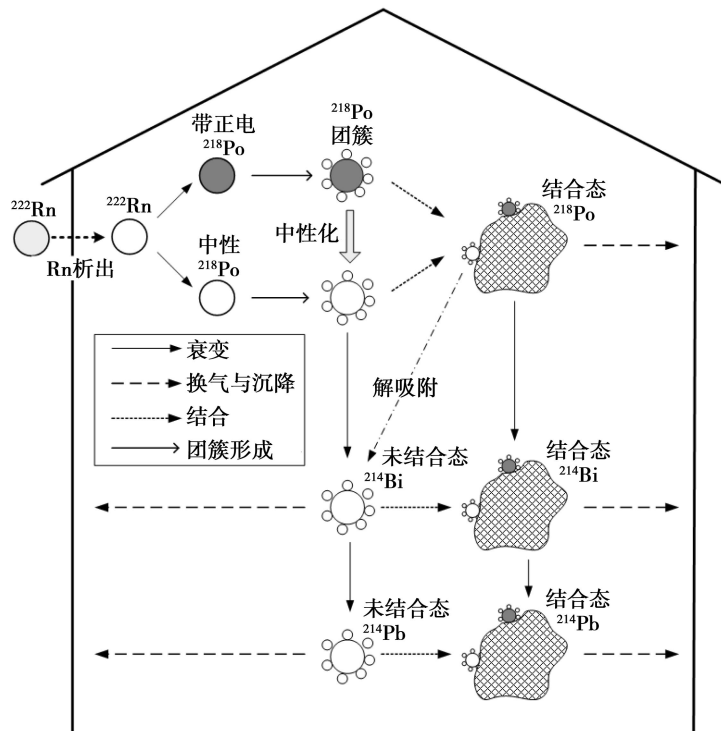


图 1 室内氡子体行为描述

Fig. 1 Illustration of behavior of indoor radon and its progeny

2.2 模型

根据上述室内氡子体行为描述,可以建立如下几点假设:(1)室内空气有湍流扰动,氡及其子体浓度、气溶胶浓度均匀分布;(2)室内氡子体浓度及其平衡状态始终处于稳定状态;(3)室内气溶胶浓度、粒径分布状况保持不变。在此基础上建立室内氡子体模型。

最早提出室内氡子体模型的是 W. Jacobi,当时简单考虑几个短寿命氡子体,气溶胶粒径分布也为单峰对数正态分布模型,而模型中采用的参数也考虑的比较简单^[6]。后来 T. Mercer 专门针对解吸系数进行了模型上的考虑,得到了气溶胶粒径单峰分布下的结合态²¹⁸Pb 粒子解吸系数^[7]。J. Pörstendörfer 等人总结了前人的结果,细致分析了模型中各个参数的影响,并首次从实验上进行了模型验证研究^[8]。P. Cauwels 等人进一步考虑了长寿命氡子体,并采用蒙特卡罗(MC)方法进行了模拟计算^[9]。D. Nikezic 等人考虑到室内气溶胶粒径分布成三峰对数正态分布模型^[10],同时细致考虑了不同气溶胶模态的结合态下²¹⁸Pb 粒子的解吸系数^[11],分析了室内氡子体的结合态份额和平衡因子,并进一步考虑了解吸系数对肺部剂量转换系数的影响^[12]。

采用气溶胶粒径分布为单峰对数正态分布来描述时,室内氡子体模型如下所示^[6]:

$$f_i^u = \frac{i(f_{i-1}^u + P_{i-1}f_{i-1}^a)}{i + v + \frac{u}{d} + a} \quad (1)$$

$$f_i^a = \frac{af_{i-1}^u + i(1 - P_{i-1})f_{i-1}^a}{i + v + \frac{a}{d}} \quad (2)$$

式中, f_i^u 、 f_i^a 分别表示第 i 代未结合态、结合态

氡子体活度浓度同氡浓度的比($i = 1, 2, 3$ 分别表示²¹⁸Pb、²¹⁴Pb、²¹⁴Bi); P_{i-1} 是子体衰变时的平均解吸系数。依据近年来文献报告结果,各个参数的推荐取值列于表 1。

表 1 Jacobi 模型中参数推荐值¹⁾

Tab. 1 Recommended values in Jacobi model

参数	推荐值	推荐值范围
换气率 v (h^{-1})	0.55	0.1 ~ 2
结合系数 a	50	10 ~ 100
未结合态附着系数 $\frac{u}{d}$	20	5 ~ 110
结合态附着系数 $\frac{a}{d}$	0.2	0.05 ~ 1.1
²¹⁴ Pb 解吸系数 P_1	0.8 ^[7]	0.50 ~ 0.95 ^[11]
²¹⁴ Bi 解吸系数 P_2	0	

1) 参数取自文献^[10]。

如果考虑气溶胶粒子粒径分布为三峰分布,需要进一步假设在 3 个模态之间没有转化。而计算模型上仅仅是(2)式改写成核模态、积聚模态和粗粒子模态 3 个公式,不同模态对应的参数墙壁附着系数和解吸系数有所不同而已^[10]。

3 计算结果与讨论

影响室内氡子体行为最重要的因素是换气率、室内气溶胶浓度及粒径分布,表征在两个可测量量上,即非结合态份额和子体平衡因子。早期对气溶胶粒径分布测量结果表明,粒径分布以积聚模态为主^[13],在此结果上总结出的推荐值列于表 2^[14]。

表 2 室内气溶胶粒径分布推荐值

Tab. 2 Recommended values of indoor aerosol size distribution

参数	非结合态	核模态	积聚模态	粗粒子模态
份额	0.08	0.26	0.64	0.02
气溶胶粒径 (nm) ¹⁾	0.9 (AMTD)	50 (AMAD)	250 (AMAD)	1500 (AMAD)
几何标准差 g	1.3	2	2	1.5

1) AMTD 为活度中值空气热力学直径,AMAD 活度中值空气动力学直径。

采用上述室内气溶胶模型,结合表 1、表 2 中给出的推荐值,并考虑了换气率、气溶胶粒径分布、气溶胶浓度的影响,对氡子体的未结合态份额和平衡因子进行了模拟计算;最后还对气溶胶粒径分布单峰和三峰分布对模型结果的影响进行了比较。

3.1 换气率的影响

有关参数选用模型推荐值,计算得到的未结合态份额和平衡因子随换气率变化关系如图 2 所示。其中室内气溶胶粒径用单峰形式描述,AMAD 为 250 nm,几何标准差为 2.0。

从图 2 结果中可以看出,氡的几个短寿命

子体的未结合态份额随换气率的增加而略为增加,而平衡因子则随换气率的增加而迅速减小。换气率从 0.1 h^{-1} 变化到 3 h^{-1} 时,平衡因子从 0.76 减小到 0.24。通常推荐换气率 0.55 h^{-1} 处对应的潜能未结合态份额为 1.3%,平衡因子为 0.58。

3.2 气溶胶粒径分布的影响

现场实验表明,部分农村环境下,气溶胶粒径分布可能以核模态为主,其 AMAD 约为 50 nm,几何标准差为 $2.0^{[15]}$,因此有必要考虑气溶胶粒径分布的影响。未结合态份额和平衡因子随气溶胶粒径分布变化关系如图 3 所示。

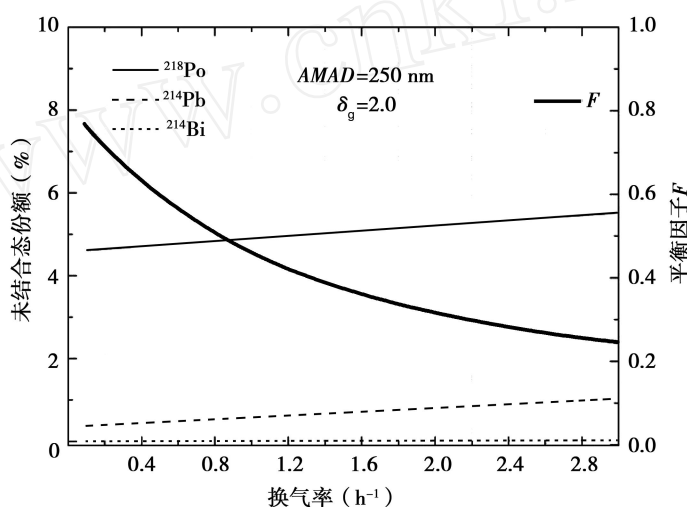


图 2 未结合态份额和平衡因子随换气率变化关系

Fig. 2 Relationship between unattached fraction, equilibrium factor and ventilation rates

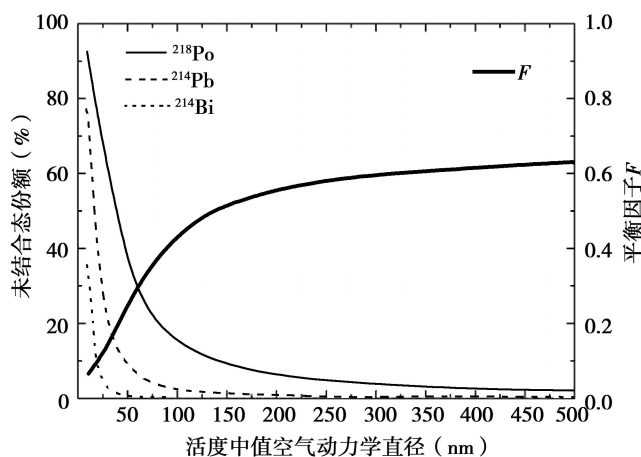


图 3 未结合态份额和平衡因子随气溶胶粒径分布变化关系(几何标准差 2.0)

Fig. 3 Relationship between the unattached fraction, equilibrium factor and aerosol size distribution

从计算结果中可以看出各个子体未结合态份额随 AMAD 变大而迅速减小,而平衡因子随粒径分布的变大先迅速增加而后缓慢变化。AMAD 为 50 nm 处对应的未结合态份额为 15.5%,平衡因子为 0.24;到了 AMAD 为 100 nm 处,未结合态份额已经降为 6.1%,平衡因子增加到 0.42。

3.3 气溶胶浓度的影响

不同状况下的室内气溶胶浓度变化很大,室内气溶胶浓度为 10 000 粒子 cm^{-3} 时,变化

范围为 1 000 ~ 50 000 粒子 cm^{-3} 。未结合态份额和平衡因子随气溶胶浓度变化关系如图 4 所示。

从计算结果可以看出,在气溶胶浓度非常低的情况下 ($< 2\ 000$ 粒子 cm^{-3}),非结合态份额非常高,而平衡因子相对较低。因此在非常干净的房间,非结合态粒子非常多。而由于非结合态子体的附壁效应相对结合态子体而言较强,因此在气溶胶浓度较低的状况下,空气中氡子体浓度较低,平衡因子较小。

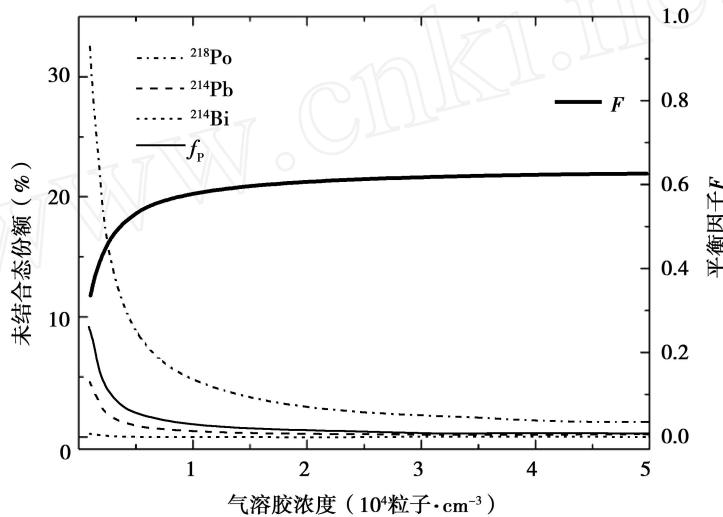


图 4 未结合态份额和平衡因子随气溶胶浓度变化关系

Fig. 4 Relationship between the unattached fraction, equilibrium factor and aerosol concentration

3.4 气溶胶分布模型的影响

为了分析气溶胶粒径分布模型对室内氡子体的影响,分别采用了单峰分布模型参数和三峰分布模型推荐值计算了潜能未结合态份额和平衡因子随换气率的变化关系。计算结果如图 5 所示。

计算结果表明,气溶胶粒径单峰分布模型和三峰分布模型对室内氡子体的未结合态份额和平衡因子的影响不大,两者差别小于 10%,变化规律相同,都是潜能未结合态份额随换气率增加而缓慢增加,平衡因子随换气率增加而显著减小。

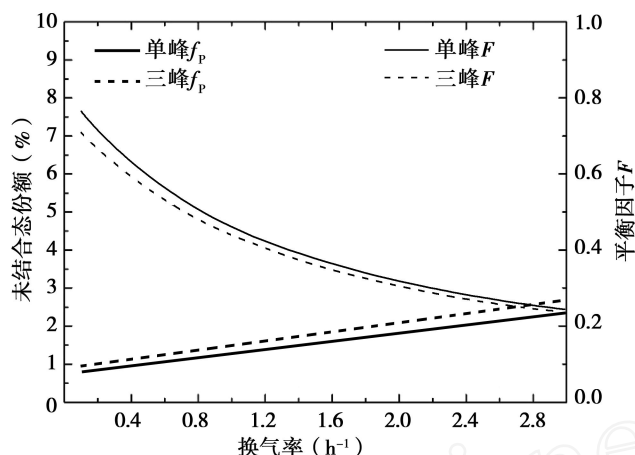


图5 不同气溶胶分布模型下未结合态份额和平衡因子随换气率的变化关系

Fig. 5 Relationship between unattached fraction, equilibrium factor and ventilation rates in different models

4 结论

比较上述几个影响因素,可以得出以下结论:(1)影响平衡因子最关键的参数是换气率,在极端换气状况的时候,采用平衡因子 0.4 的推荐值来估算剂量需要谨慎。(2)影响未结合态份额最关键的参数是气溶胶粒径分布和气溶胶浓度(后者只有在非常低浓度环境下才起主要作用)。气溶胶粒径分布减小,未结合态份额将会有很大的增加,相应剂量贡献也会显著地增加。因此,在窑洞等农村现场环境下,需要仔细考虑气溶胶粒径分布对氡子体剂量的影响。

感谢上海复旦大学放射医学研究所的卓维海教授为本工作提供的启发和指导;感谢中国疾病预防控制中心辐射防护和核安全医学所尚兵研究员为本研究提供的现场指导。

参考文献:

- [1] UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation [S]. UNSCEAR 2000 Report. New York: UN, 2000.
- [2] ICRP. Protection against radon - 222 at home and at work [S]. ICRP Publication 65. Oxford: Pergamon Press, Annals of the ICRP 22(2). 1993.
- [3] Porstendörfer J. Influence of physical parameters on doses from radon exposures [S]. International Congress Series, 2002, 1225: 149—160.
- [4] Porstendörfer J. Behavior of radon daughter products in indoor air[J]. Radiation Protection Dosimetry, 1984,

7: 107—113.

- [5] Mercer TT, Stowe WA. Radioactive aerosol produced by radon in room air[R]. Inhaled Particles III. 1971.
- [6] Jacobi W. Activity and potential energy of ^{222}Rn and ^{220}Rn daughters in different air atmospheres [J]. Health Physics. 1972, 22: 441—450.
- [7] Mercer T T. The effect of particle size on the escape of recoiling RaB atoms from particulate surfaces [J]. Health Physics, 1976, 31: 173—175.
- [8] Porstendörfer J. Behavior of radon daughter products [J]. Radiation Protection Dosimetry, 1984, 7: 107—113.
- [9] Cauwels P. Theoretical study of the relation between radon and its long-lived progeny in a room[J]. Health physics, 2000, 79(4): 389—395.
- [10] Nikezic D, Stevanovic N. Room model with three modal distributions of attached radon progeny [J]. Health Physics, 2004, 87(4): 405—409.
- [11] Stevanovic N, Nikezic D, Djordjevic A. The recoil factor of ^{214}Pb [J]. Aerosol Science, 2004, 35: 1 041—1 050.
- [12] Nikezic D, Stevanovic N. Influence of variability of ^{214}Pb recoil factor on lung dose[J]. Radiation Protection Dosimetry, 2004, 109(3): 197—200.
- [13] Reineking A, Porstendörfer J. Activity size distributions of the shortlived radon decay products and their influence on the deposition probability in the human lung[J]. Aerosol Sci, 1988, 19(7): 1 331—1 337.

(下转第 35 页,Continued on page 35)

the waste storage site and subsurface of repositories may influence the long-term (300—500 years) stability and safety of radioactive waste repositories. This paper introduced a testing procedure, formulated by U. S. NRC, for evaluating the microbial accelerating degradation of cement-solidified radioactive waste forms and its modified version as a reference for the regulator, repository operator, and waste generator in our country.

Key words: Microorganism; Cement Solidified Radwaste Forms; Long-term Stability

(上接第 29 页,Continued from page 29)

[14] Ishikawa T, Tokonami S. Effects of activity size distribution on dose conversion factor for radon progeny Japan[J]. Health Physics, 2001, 36: 329—338.

[15] 张磊,卓维海,郭秋菊.²²⁰Rn 子体结合态放射性气溶胶粒径分布实验研究[J]. 原子能科学技术, 2008. 42(增刊):357—341.

Model Study on Indoor Radon Progeny Behavior

Zhang Lei, Li Hongzhao, Guo Qiuju

(Department of Technical Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871)

Abstract: The behavior of indoor radon decay products is influenced by ventilation rate, wall deposition, attachment to the aerosol and so on. All this progresses work on the unattached fraction of radon progeny and the equilibrium factor F . Our research focuses on the model of indoor radon decay products behaviors. Through a theoretical model, the influence of ventilation rate, the size distribution of aerosol and the concentration of aerosol on the unattached fraction and also the equilibrium factor are described. The research shows that the equilibrium factor decreases with the increase in ventilation rate increase, and also shows that the unattached fraction increases quickly with the decrease in the size distribution of aerosol.

Key words: Radon Decay Products; Unattached Fraction; Equilibrium Factor; Aerosol Concentration; Size Distribution