

土壤中 ^{222}Rn 的析出：机理、测量及管理建议

南宏杰¹, 张磊², 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. 军事科学院 民用核生化防护国家重点实验室, 北京, 102205)

摘要： ^{222}Rn 是一种自然界普遍存在的放射性惰性气体，可以从其产生的土壤介质中迁移析出并进入大气。分析土壤中氡析出的物理过程，进行氡析出量的测量和评价，对于铀尾矿、伴生放射性矿开发利用是十分重要的，且与天然放射性物质(NORM)现场监管等辐射环境安全密切相关。该文阐述了氡析出过程的机理，介绍了氡析出过程的数学表达，分析了此过程中的影响因素，并对土壤表面氡析出率测量方法进行了总结。最后从辐射防护监管角度对氡析出率这一物理量的评价做了尝试性探讨。

关键词：氡气；土壤；氡析出率；测量；管理建议

中图分类号：TL75+1 **文献标志码：**A

DOI：10.16511/j.cnki.qhdxxb.2024.27.053

以 ^{238}U 为起始核素的铀系衰变链上的放射性核素无处不在，衰变链中唯一的放射性惰性气体氡(本文中仅指 ^{222}Rn)因具有相对较长的半衰期(3.82 d)，可从其产生的岩石土壤等介质中扩散迁移析出，进入空气中。空气中的氡及其子体会伴随人的呼吸进入呼吸道，导致的辐射照射称为氡暴露(radon exposure)^[1]。从20世纪早期的铀矿山矿工的氡暴露^[2]，至20世纪后期开始关注的居室环境中公众氡暴露^[3]，氡的析出不仅涉及到职业照射还涉及到公众照射，关于氡析出量的测量方法和剂量评价一直是辐射防护领域的重点关注内容。

环境空气可以分为室(或称建筑物)内空气和室外空气，室外空气环境又常被简称为“大气”。本文关注的地表土壤氡析出内容属于室外大气环境范畴。在铀尾矿、伴生放射性矿及部分天然放射性物质(naturally occurring radioactive materials, NORM)现场以及在生产或退役等不同工况或场景下，氡释放量(radon releases)或称表面氡析出率(单位时间单位面积氡析出活度, $\text{Bq}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$)常作为回填土或覆盖层工程设计或工程评价的重要参数。国际原子能机构(International Atomic Energy

Agency, IAEA)早年曾以铀尾矿为关注对象颁布了 TRS333 号技术报告《Measurement and calculation of radon releases from uranium mill tailings》(铀尾矿氡释放的测量与估算)^[4]。此后，伴随氡测量技术不断发展，氡析出模型的不断完善，特别是其在不同场景中应用经验的不断累积，IAEA 于2013年又颁布了 TRS474 号技术报告《Measurement and calculation of radon releases from NORM residues》(NORM 废渣氡释放的测量与估算)^[5]取代 TRS333 号技术报告，其中包括了对影响废渣中氡释放因素的描述、氡浓度及氡析出率的测量和计算方法以及废渣覆盖层效果评价的模型等内容，同时也明确指出 TRS474 报告涵盖铀尾矿场景，从而拓展了技术报告的适用领域。

本文在阐述氡析出过程的物理机理的基础上，分析了氡析出过程的影响因素，介绍了土壤表面氡析出率测量方法，最后对氡析出率这一物理量的应用进行尝试性探讨。

1 土壤介质中氡的运移机制

存在于岩石土壤中的 ^{226}Ra 是氡的母体核素，

收稿日期：2024-07-31

基金项目：国家自然科学基金面上项目(12275008)；国家自然科学基金青年科学基金项目(12105363)

作者简介：南宏杰(1985—)，男，博士研究生。

通信作者：张磊，副研究员，E-mail: swofely@pku.edu.cn

氢产生后在土壤介质中开始扩散迁移，最终析出释放进入空气。土壤中氢析出释放进入大气的过程如图 1 所示^[5]，由图可知，氢的析出全过程分为 3 个子过程：射气过程(emanation process)、运移过程(transport process)和析出过程(exhalation process)，下文围绕各子过程进行详述。

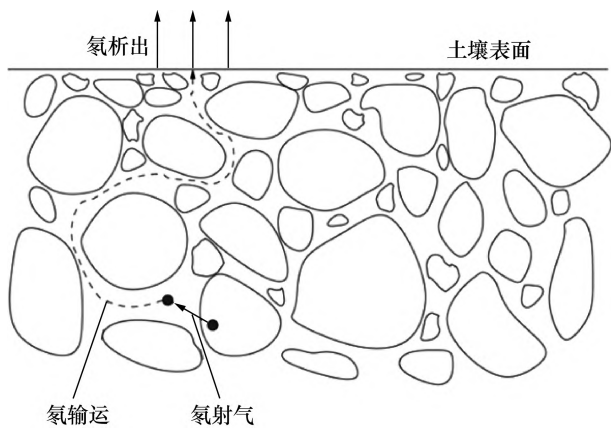


图 1 土壤介质中氢析出示意图^[5]

1.1 射气过程和射气系数

矿物或土壤颗粒中的氢(²²²Rn)是²²⁶Ra 经 α 衰变后的子体。在衰变的过程中，²²²Rn 会获得 8.6×10^4 eV 的反冲动能使氢原子可以摆脱固体颗粒的束缚进入土壤颗粒孔隙的空气或水中，进而成为可移动的氢，这一过程称为射气过程，如图 2 所示^[6]。

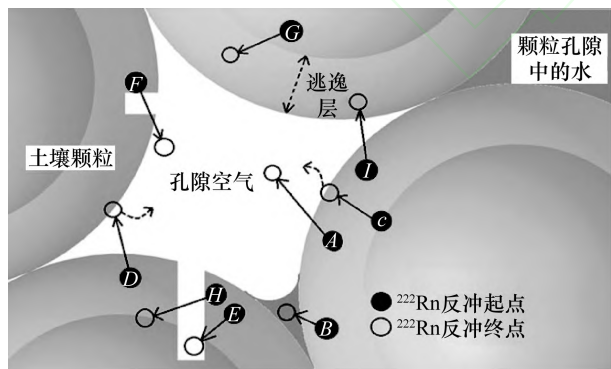


图 2 氢的射气过程示意图

注：A、F 表示²²²Rn 直接进入颗粒间隙空气中；E 表示²²²Rn 进入颗粒内部的孔隙中；B 表示²²²Rn 进入颗粒间隙水中；C 表示²²²Rn 达到颗粒表面，随后通过扩散进入颗粒孔隙中；D 表示²²²Rn 到达相邻颗粒表面，随后通过扩散进入孔隙中；G、H、I 表示²²²Rn 被原颗粒或相邻颗粒束缚，没有成为可自由移动的氢。

²²²Rn 在一般介质环境中的反冲射程^[5]如表 1 所示，通常其在土壤中的反冲射程小于 50 nm。

表 1 ²²²Rn 在几种介质环境中的反冲射程^[5]

介质类型	密度/(g·m ⁻³)	最大射程/nm
空气	1.58×10^{-3}	53×10^{-3}
水	1.00	77
石英	2.65	34

土壤介质中可移动的氢量与介质内²²⁶Ra 衰变产生的氢总量之比定义为射气系数(emanation coefficient，无量纲)，是表征某一种类的岩石土壤中具有多少可移动的氢的重要参数。

从射气的物理过程和射气系数的定义，可以判断影响射气系数的因素主要包括：土壤岩石等介质颗粒物的大小、颗粒物形状、介质孔隙度、含水率以及介质颗粒物中²²⁶Ra 核素的分布等。其中，除含水率外其余参数基本由土壤介质本身特性决定的，而含水率是与气象条件有关的变量，是射气系数最重要的外在影响因素。如图 3 所示，干燥条件下射气系数较低，随着土壤中水分增加，从颗粒物中反冲出来的氢原子被阻留在颗粒间隙中的份额增加，射气系数也会随之增加，并逐渐达到饱和值^[7]。从图 3 中还可以看出，土壤的粒径越小，射气系数达到饱和值对应的含水率也越高。

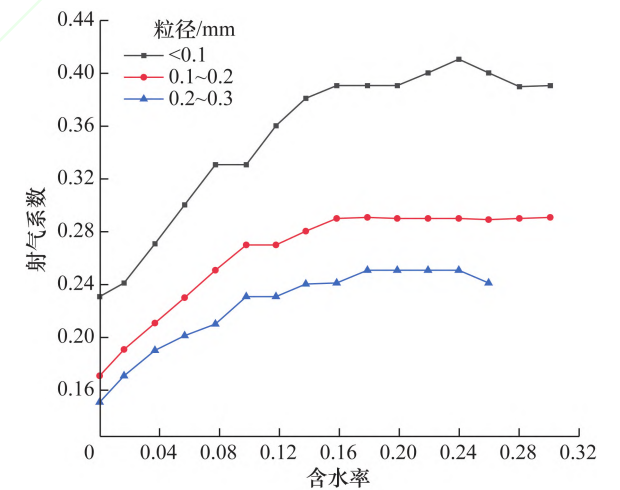


图 3 射气系数与含水率关系^[7]

不同种类介质中射气系数实测结果的分布范围^[6]如图 4 所示。图中横坐标的划分区间表示不同介质，圆点面积对应文^[6]整理的文献资料中的样品数量，面积越大表示样品数量越多。由图可知，已有研究以土壤样品居多；煤灰和矿物质中氢的射气系数大多在 0.1 以下，相对较低；土壤、岩石和尾矿渣中氢的射气系数在 0.1~0.3，这表明土壤、岩石介质中产生的氢绝大部分滞留在介质内进行衰

变,可移动并扩散迁移的量通常不超过氡总量的30%。

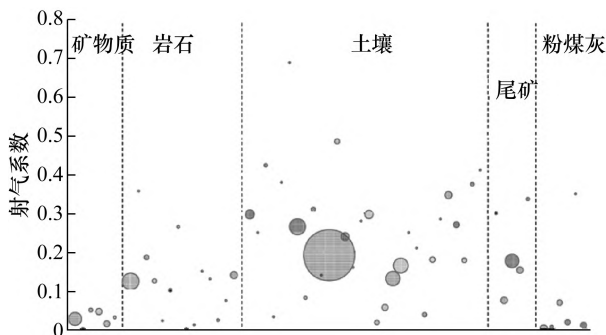


图4 不同介质中氡射气系数测量结果^[6]

1.2 运移过程和扩散系数

1.2.1 氡的运移过程

氡从土壤介质颗粒中经射气过程进入孔隙空间后,就开始了扩散和迁移,直至土壤-大气界面,此过程称为运移过程。氡运移过程可以通过2种物理机制进行,一种是由浓度梯度导致的分子扩散(molecular diffusion),另一种是空气压差导致的对流(advective flow)。土壤介质内部在稳态环境下通常不发生对流,存在断层、裂痕和地质板块运动发生挤压或塌陷等特殊条件下才有对流发生。故在此不讨论对流。

氡的扩散过程可以用Fick第一定律来描述,氡扩散通量密度与其浓度梯度成线性关系,在均质介质中,可以简化表达为

$$J = -D_M \cdot \nabla C. \quad (1)$$

其中: J 为扩散过程中产生的氡活度通量密度(radon flux density), $Bq/(m^2 \cdot s)$;负号表示氡是从高浓度向低浓度扩散; ∇C 为氡在土壤气体中的活度浓度梯度, Bq/m^4 ; D_M 为氡的分子扩散系数, m^2/s 。

在土壤等多孔介质中,由于孔隙结构的存在,氡的扩散路径比较曲折,移动速度或通量比在均匀介质(如空气)中小。引入孔隙度 n 和孔隙曲折系数 τ 这2个参数,可将式(1)修正为

$$J = -n\tau D_M \cdot \nabla C. \quad (2)$$

由于 τ 和 D_M 的乘积为孔隙流体的扩散系数 D ,因此式(2)可表达为

$$J = -nD \cdot \nabla C. \quad (3)$$

1.2.2 氡的扩散系数

式(3)中的 D 可作为表征氡在岩石土壤介质中运移过程的核心参数,其数值大小受土壤类型,土

壤孔隙度以及孔隙结构、土壤含水率等因素的共同影响,这其中影响力最大的因素是土壤含水率。在土壤含水率小于0.25时, D 的变化相对较小,大多在 $9 \times 10^{-7} \sim 7 \times 10^{-6} m^2/s$ ^[5]。虽然通过经验公式或数学模型可以推算出 D ,但IAEA还是建议在尾矿回填或覆盖等相对复杂的现场,最好通过实测以确定 D 。

1.3 析出过程和影响因素

1.3.1 氡的析出和表达

氡气从岩石土壤深处扩散运移至地表浅层,最后穿过土壤-大气界面释放进入大气的过程为析出过程。表面氡析出率可用于衡量土壤面源对大气中氡的贡献大小,是评价铀尾矿和NORM场所对大气环境氡贡献的重要参数。

在只考虑土壤中氡扩散迁移运动的前提下,氡在土壤中的运移方程^[8]为

$$D_e \frac{d^2 C(x)}{dx^2} - \lambda C(x) + \frac{A}{n} = 0. \quad (4)$$

其中: $C(x)$ 为土壤中距离土壤-空气界面 $x(m)$ 深度处孔隙空气中的氡浓度, Bq/m^3 ; A 为单位时间单位体积土壤介质中产生的可移动氡的活度, $Bq/(m^3 \cdot s)$, $A = \lambda \rho R E$,其中 R 为土壤介质中²²⁶Ra含量, Bq/kg , ρ 为介质密度, kg/m^3 ; E 为射气系数(无量纲); λ 为氡的衰变常数, s^{-1} ; D_e 为氡在土壤介质孔隙中的扩散系数, m^2/s ,在干燥土壤介质中, D_e 可用氡在空气中的扩散系数 D_{MA} 代替;在含水土壤介质中,

$$D_e = nD_{MA} \exp(-6mn - 6m^{14n}),$$

其中 m 为介质的质量含水率^[9]。

对式(4)求解并结合式(3),可得到土壤介质表面的 J 为

$$J = n \sqrt{\lambda D_e} \left(\frac{A}{\lambda n} - C_0 \right). \quad (5)$$

其中 C_0 为近地表空气中的氡浓度。

若土壤介质表层还有厚度为 $z(m)$ 的覆盖层,且覆盖层中的氡产生率忽略不计,则覆盖层表面的氡通量 J_c 为^[5]

$$J_c = J \exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda}{D_c}} z\right). \quad (6)$$

其中 D_c 为覆盖层的扩散系数。由式(6)可知, J_c 随着 z 的增加呈指数衰减。可利用式(6)估算所需覆盖层的厚度,或评估已有覆盖层的作用。

1.3.2 氡析出影响因素

由于氡来自镭的衰变,所以土壤中镭含量与氡

析出率呈正相关,即镭含量越高氡析出就越强^[10]。

土壤中的水分会堵塞土壤颗粒间孔隙,削弱土壤的透气性,使氡的空气扩散“通道”被阻断,而氡在水中的扩散系数 D_{MW} 又远小于 D_{MA} 。因此,含水率的增加会减弱氡在土壤中的扩散。如图 5 所示,含水率 7%~8% 时析出率呈现明显拐点^[11]。在含水率较低时析出率随含水率的增加而增加,原因是含水率的增加使得 E 变大,进入到颗粒孔隙中的氡原子数量增加,宏观表现为氡析出率的上升。随着含水率的增加, E 趋于稳定(见图 3),而此时土壤孔隙逐渐被水堵塞,阻碍了氡的输运,因此氡析出率下降。此外,一些气象条件比如气压、降水量等通过影响土壤的含水率,进而影响氡的析出率^[12]。

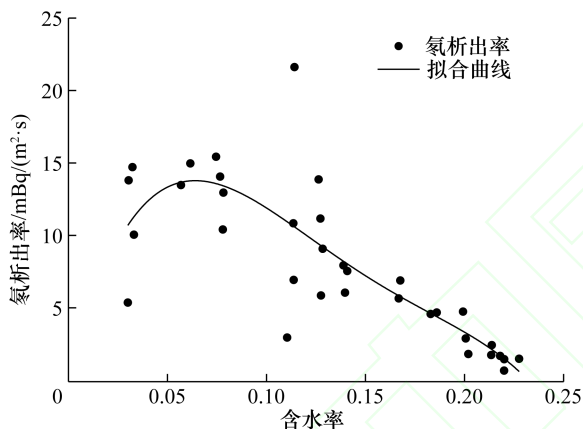


图 5 土壤含水率与析出率关系^[11]

2 土壤氡析出率测量

土壤表面氡析出率的现场测量方法通常包括累积测量法、流气式测量法和活性炭吸附法。

2.1 累积测量法

累积测量法是氡析出率测量的常用方法。将一个一面开口的累积腔室(accumulator)扣置在被测岩石或土壤表面并密封防止泄露,腔室顶部开孔并与测氡仪相连接。累积测量法装置示意图如图 6 所示^[13]。当腔室扣置在介质表面时,累积腔室内氡浓度开始增加。在氡浓度较低时,反扩散和泄漏效应可以忽略,增长曲线大致呈线性,但最终氡浓度会达到平衡。通过测量腔室内的氡浓度上升曲线,就可计算得到氡析出率。

假定氡累积腔室内 t 时刻氡浓度为 $C(t)$,可建立 t 时刻氡浓度变化规律^[14]。

$$\frac{dC(t)}{dt} = \frac{JS}{V} - \lambda_e C(t). \quad (7)$$

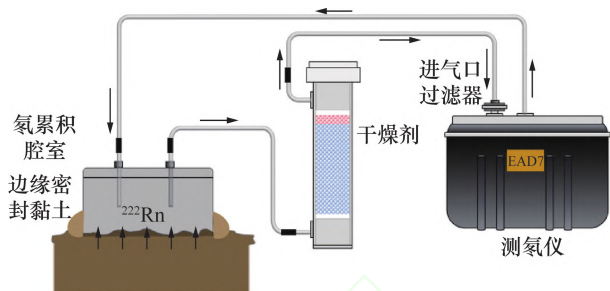


图 6 累积测量法装置示意图^[13]

其中: S 为腔室覆盖的面积, m^2 ; V 为累积腔室和氡测量系统的有效容积, m^3 ; λ_e 为累积腔室的有效衰变常数(λ 、反扩散系数和泄漏系数之和)。求解可得

$$C(t) = \frac{JS}{V\lambda} (1 - \exp(-\lambda t)) + C_0 \exp(-\lambda t). \quad (8)$$

当测量时间比较短,即 $\lambda t \ll 1$ 时,式(8)可简化为

$$C(t) \approx \frac{JS}{V} t + C_0. \quad (9)$$

通过测量不同时刻下的氡浓度,并用式(9)对数据进行线性拟合处理,就可以得到斜率 $\frac{JS}{V}$,进而可以计算得到 J 。

土壤表面氡析出率现场测量的常用方案是通过采样泵将测氡仪与氡累积腔室联通循环,以 10 min 作为一个测量周期,每个待测点测量 5~6 个周期,通常只要累积时间不超过 60 min,反扩散就可忽略,由此得到 5~6 个氡浓度数据基于式(9)拟合计算得出 J 。析出率测量装置既可以是基于闪烁体的 Lucas 闪烁室,也可以是基于静电收集的半导体探测器。

2.2 流气式测量法

为了实现现场的连续测量,在累积测量法的基础上,发展出了流气式测量法,其装置示意图如图 7 所示^[13]。不同于累积测量法的“闭环式”测量,流气式测量法中的氡累积腔室始终与外界大气环境相通,由于不断有新鲜空气流经氡累积腔室,腔室内的饱和氡浓度显著低于采用累积测量法时的,可在一定程度上降低饱和状态下的反扩散效应。氡累积腔室内的饱和氡浓度与换气速度和 J 有关。由于流气速度恒定已知,通过测量饱和氡浓度就可以计算出 J 。

根据流气式测量法的工作原理,可建立 t 时刻

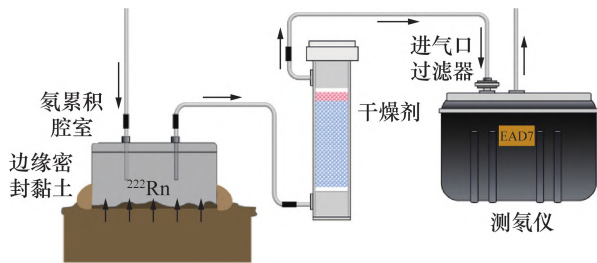


图 7 流气式测量法示意图^[13]

氡浓度变化规律^[12]。

$$\frac{dC(t)}{dt} = \frac{JS}{V} + \frac{\nu C_0}{V} - \frac{\nu C(t)}{V} - \lambda C(t). \quad (10)$$

求解可得

$$C(t) = \frac{JS}{V\left(\lambda + \frac{\nu}{V}\right)} \left(1 - \exp\left(-\left(\lambda + \frac{\nu}{V}\right)t\right)\right). \quad (11)$$

其中 ν 为腔室内气体的换气速度, m^3/s 。由于 $\lambda \ll \frac{\nu}{V}$, 当 t 足够大时, 式(11)可简化为

$$C(t) = \frac{JS}{\nu}. \quad (12)$$

由式(12)可知, 采用流气式测量法时饱和氡浓度与 ν 呈反比。因此, 在流气式测量中, 既要保持一定的 ν 以防止累积氡浓度过高; 又要注意 ν 不能太高, 防止氡浓度过低, 增大不确定度, 同时过高的 ν 还会带来气压差, 使得 J 增大。

实际测量过程中, 若使用的是具有核素甄别能力的测氡仪, 则可以直接得出腔室内氡浓度; 若不具备核素甄别能力, 考虑到²²⁰Rn(²³²Th衰变链产物, 也称钍射气)半衰期较短, 则可以增加一段延时衰变管以消除²²⁰Rn对²²²Rn测量的影响。文[15]中提到的一种基于闪烁室的 J 值的测量系统, 如图 8 所示, 其中风扇可使氡累积腔室内的氡浓度尽可能均匀; 闪烁室用于测量²²²Rn衰变释放的 α 粒子; ²²⁰Rn衰变管用于增加气流通过时间, 使得²²⁰Rn尽可能多的衰变, 以消除钍射气对²²²Rn测量的影响。

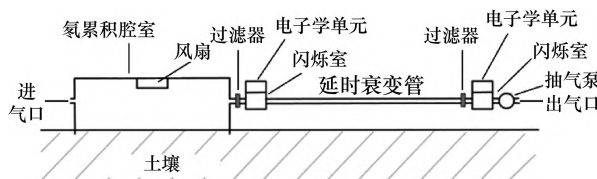


图 8 采用闪烁室的氡析出率测量系统^[15]

2.3 活性炭吸附法

活性炭吸附法如图 9 所示^[5], 在待测土壤表面上倒扣的氡累积腔室中, 放入装有活性炭的容器用以吸附从土壤进入氡累积腔室内的氡气, 而后使用 γ 谱仪测量活性炭中吸附的氡活度, 进而计算出一段时间内的 J 的平均值。活性炭放置于累积腔室前, 需要在烘箱中加热干燥, 以去除前期吸附的氡、水分及其他污染物。有研究表明, 若采样时间小于 24 h, 则活性炭对氡有近 100% 的吸附效率^[15], 因此该方法的探测限取决于 γ 谱仪的性能。需要注意的是, 使用活性炭吸附和 γ 谱仪测量时, 需预先放置 3 h, 待达到氡与子体的放射平衡后再开始测量。

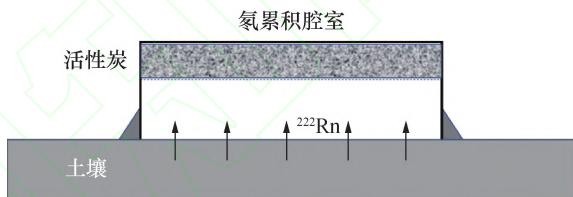


图 9 活性炭吸附法基本原理^[5]

3 氡析出率量值的应用探讨

辐射防护与环境保护领域在早年多关注铀矿山、铀尾矿等工作场景, 目前则更多面对的是伴生放射性矿和 NORM 现场。氡从放射性残渣和土壤介质表面向大气环境的释放过程会受到工程设计、安全监管和环境评价等多方面的考量, 从关键人群-公众的附加剂量出发, 氡释放总量应是十分受关注的核心指标之一。

氡释放总量通过面积与 J 相乘后对时间积分获得, 但在实际工作中, 人们更关注的是 J , 因为 J 的测量更为方便, 可直接用于评价。美国环境保护署(U. S. Environmental Protection Agency, EPA)于 1983 年颁布并于 1995 年修订的《Health and environmental protection standards for uranium and thorium mill tailings》^[16]中规定了 $0.74 \text{ Bq}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ 为 J 的限值。此限值的计算依据可能是下风向地区关键人群所受的来自铀钍矿的附加剂量, 可以依据关键人群居住地与现场的距离、局域地区气象参数、大气扩散参数和模型进行估算。随着铀钍矿现场的多样性和复杂性增强, 此限值针对伴生放射性矿开发利用中确保公众辐射安全的作用已存在不确定性, 其普适性也有待提升。

IAEA 于 1992 和 2013 年先后颁布的 TRS333

号和 TRS474 号技术报告中,包括了对铀尾矿及伴生放射性矿相关的放射性废渣中有关氡排放的基本理念。由于测量技术和预测估算模型的快速发展以及现场经验的不断积累,TRS474 号报告所涉及范围从铀尾矿扩展到了 NORM,报告的主要内容围绕氡从介质中析出释放的机理及影响参数;核心参数如射气吸收和扩散系数或扩散长度等的测量和估算;现场 J 的测量方法的介绍等,并指出了 J 等参数是场所比较、回填或覆盖体等工程设计和工程效果评价的重要参数,但没有出现 J 的具体参考限值,也没有提及对 J 通过制定限值来进行控制和管理。

因此,仅控制析出率,不控制析出面积大小,则无法控制氡释放总量,也无法准确评估尾矿、废渣等对关键人群的辐射剂量影响。

4 结论与展望

放射性惰性气体氡从岩石土壤向大气环境扩散析出的物理过程受多种因素影响,氡释放总量的估算、比较和评价是辐射环境和工程设计评价的重要考量因素,而氡析出率因便于现场测量,一直是此领域的核心参数。经过近一个世纪的深入研究和实践,研究者们对氡的扩散析出机理和影响因素的认识日趋完善,同时发展出了用于不同目的的氡析出率的测量方法。

由于尾矿渣及放射性伴生矿现场具有复杂性和多样性,即使现场氡释放量可以较为准确地进行测量与计算,但其与关键人群居室内氡浓度之间几乎不存在定量的确定性关联,很难用于估算来自伴生放射性矿贡献的关键人群氡暴露剂量。关键人群室内氡暴露剂量和健康危险只能通过室内氡水平测量来估算和控制,这一观点在国际放射防护委员会于 2019 年颁布的《Radiological Protection from Naturally Occurring Radioactive Material(NORM) (ICRP, 2019)》^[17]也有相同的表达。因此,氡析出率虽然是现场需要测量计算的重要参数,但不适宜设定固定限值进行监管。

参考文献 (References)

- [1] International Commission on Radiological Protection (ICRP). ICRP publication 65: Protection against radon-222 at home and at work [R]. Oxford: Pergamon, 1993.
- [2] World Health Organization (WHO). WHO handbook on indoor radon: A public health perspective [R]. Geneva: WHO, 2009.
- [3] PETERMANN E, BOSSEW P, HOFFMANN B. Radon hazard vs. radon risk-On the effectiveness of radon priority areas [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2022, 244-245: 106833.
- [4] International Atom Energy Agency (IAEA). Measurement and calculation of radon releases from uranium mill tailings: Technical Reports Series No. 333 [R]. Vienna: IAEA, 1992.
- [5] International Atom Energy Agency (IAEA). Measurement and calculation of radon releases from NORM residues: Technical Reports Series No. 474 [R]. Vienna: IAEA, 2013.
- [6] SAKODA A, ISHIMORI Y, YAMAOKA K. A comprehensive review of radon emanation measurements for mineral, rock, soil, mill tailing and fly ash [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2011, 69(10): 1422-1435.
- [7] HUYNH NG PH TH, NGUYEN V TH, LE C H. The effects of some soil characteristics on radon emanation and diffusion [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2020, 216: 106189.
- [8] GUO Q J, SUN K N, CHENG J P. Methodology study on evaluation of radon flux from soil in China [J]. Radiation Protection Dosimetry, 2004, 112(2): 291-296.
- [9] 程冠,程建平,郭秋菊. 土壤氡析出率影响因素及估算模型 [J]. 中华放射医学与防护杂志, 2006, 26(5): 520-524.
CHENG G, CHENG J P, GUO Q J. Discussion of influencing factors on the radon exhalation rate and theoretical model [J]. Chinese Journal of Radiological Medicine and Protection, 2006, 26(5): 520-524. (in Chinese)
- [10] 孙凯男,郭秋菊,程建平. 土壤物理性质对土壤氡浓度及地表氡析出率的影响 [J]. 中华放射医学与防护杂志, 2005, 25(1): 78-80.
SUN K N, GUO Q J, CHENG J P. The effect of some soil physical parameters on soil radon concentration and radon exhalation from soil surface [J]. Chinese Journal of Radiological Medicine and Protection, 2005, 25(1): 78-80. (in Chinese)
- [11] HOSODA M, SSHIMO M, SSUGINO M, et al. Effect of soil moisture content on radon and thoron exhalation [J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2007, 44(4): 664-672.
- [12] 孙轲,张磊,郭秋菊. 土壤氡析出率的连续测量研究 [J]. 辐射防护 [J]. 2014, 34(1): 27-32.
SUN K, ZHANG L, GUO Q J. Study on continuous measurement technique for radon exhalation rate of soil [J]. Radiation Protection, 2014, 34(1): 27-32. (in Chinese)
- [13] YANG Y F, LV L D, QIU S K, et al. Study on the influence of sampling methods for measuring soil radon exhalation rates [J]. Radiation Measurements, 2022, 159: 106880.

[14] JONASSEN N. The determination of radon exhalation rates [J]. Health Physics, 1983, 45(2): 369–376.

[15] ČELIKOVIĆ I, PANTELIĆ G, VUKANAC I, et al. Overview of radon flux characteristics, measurements, models and its potential use for the estimation of radon priority areas [J]. Atmosphere, 2022, 13(12):2005.

[16] U.S. Environmental Protection Agency. Health and environmental protection standards for uranium and thorium mill tailings: EPA 40 CFR part 192 [S]. Washington: EPA, 1995.

[17] International Commission on Radiological Protection (ICRP). ICRP publication 142: Radiological protection from naturally occurring radioactive material (NORM) in Industrial Processes [R]. Washington: SAGE, 2019.

²²²Rn exhalation from soils-Mechanism, measurement and management considerations

Nan Hongjie¹, Zhang Lei², Guo Qiuju¹

(1. State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology, School of Physics, Peking University, Beijing, 100871, China;
2. State Key Laboratory of NBC Protection for Civilian, Beijing, 102205, China)

Abstract: [Significance] Radon(²²²Rn) is a naturally occurring radioactive noble gas. ²²²Rn is produced from the alpha decay of radium (²²⁶Ra), with a relatively long half-life (i. e. , 3.8 days). Thus, ²²²Rn can diffuse and migrate from the rock and soil where it is generated and can enter the air. According to surveys conducted by the World Health Organization, exposure to ²²²Rn and its short-lived progeny is the second leading cause of lung cancer. The measurement and evaluation of ²²²Rn release involves not only occupational exposure but also public exposure. Therefore, the measurement of ²²²Rn exhalation and the dose assessments of ²²²Rn exposure have always been important concerns in radiation protection. [Progress] The entire process of ²²²Rn moving from the soil to the atmosphere can be divided into three steps: emanation, migration, and exhalation. During the emanation process of ²²²Rn, ²²²Rn will obtain a recoil energy of 8.6×10^4 eV from the decay of ²²⁶Ra, which will make ²²²Rn atoms travel through the soil grains at a distance of no more than 50 nm. If produced near the surface of soil grains, ²²²Rn will leave the grain and stop in the interstitial space (pore), becoming freely movable ²²²Rn. The fraction of freely movable ²²²Rn is usually expressed by the emanation coefficient (dimensionless). The emanation coefficient of soil generally ranges from 0.1 to 0.3. In soil with a relatively stable internal environment, the migration of free ²²²Rn in soil mainly relies on molecular diffusion caused by concentration gradients, eventually entering the atmosphere through the soil-air interface. If only diffusion transport is considered, then Fick’s law can be used to describe the migration process of ²²²Rn and establish a model for ²²²Rn flux at the soil-air interface. The ²²²Rn exhalation rate at the soil surface is the ²²²Rn flux. On-site measurement methods of the soil ²²²Rn exhalation rate can generally be divided into three categories: accumulation, flow-through, and activated carbon adsorption methods. In actual measurements, different methods can be chosen according to the needs. [Conclusions and Prospects] The understanding of the ²²²Rn diffusion exhalation mechanism and influencing factors is becoming comprehensive, and the measurement methods of the ²²²Rn exhalation rate for different purposes have been developed. Analyzing the physical processes of ²²²Rn exhalation from soil and measuring and evaluating the exhalation rate of ²²²Rn are important for assessing environmental radiation and managing uranium tailings and associated radioactive minerals. Moreover, the exhalation rate of ²²²Rn is closely related to the radiation environmental safety of on-site supervision of naturally occurring radioactive materials. Because of the complexity and diversity of ²²²Rn measurement sites, even though the amount of ²²²Rn release can be measured and calculated relatively accurately, nearly no quantitative deterministic correlation is detected between it and the indoor ²²²Rn concentration. Thus, the ²²²Rn exposure dose for key populations is difficult to estimate. The ²²²Rn exposure dose and health risks for key populations can only be estimated and controlled through measurements of the indoor ²²²Rn levels. Therefore, although the ²²²Rn exhalation rate is an important parameter that can be measured and calculated on-site, establishing a fixed exhalation rate limit for regulatory purposes is unsuitable.

Key words: radon; soil; radon exhalation; measurement; management considerations