

土壤氡析出率活性炭累积吸附法

王南萍^{1,2}, 肖磊^{1,2}, 梅文科^{1,2}, 侯胜利^{1,2}

1. 地质过程与矿产资源国家重点实验室和地下信息探测技术与仪器教育部重点实验室, 北京 100083

2. 中国地质大学地球物理与信息技术学院, 北京 100083

摘要: 为解决大面积多点快速土壤氡析出率测量问题, 设计开发并进行了土壤氡析出率活性炭累积吸附法的方法技术研究。在参考氡析出率装置和野外实验数据的基础上, 进行了测量装置及材料的选择、装置刻度、野外累积暴露时间、活性炭盒吸附氡有效衰变常数等研究。通过2002—2003年22次重复观测, 北京西北郊区粘土类土壤氡析出率平均值为 $20.15 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 最大值和最小值分别为 26.75 和 $13.49 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 标准偏差为 $3.55 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。与仪器静电收集法比对结果表明, 两种方法的相对误差小于 $\pm 10\%$ 。实验结果表明: 活性炭方法测量结果稳定可靠, 简便易行, 适用于全国大面积土壤氡析出率调查。

关键词: 土壤氡析出率; 活性炭累积吸附法; 伽玛能谱; 静电收集法。

中图分类号: P631.5

文章编号: 1000-2383(2007)04-0523-05

收稿日期: 2007-04-12

Activated Charcoal Cumulated Adsorption Method for Measuring Radon Exhalation Rate from Soil

WANG Nan-ping^{1,2}, XIAO Lei^{1,2}, MEI Wen-ke^{1,2}, HOU Sheng-li^{1,2}

1. State Key Laboratory of Geological Processes and Mineral Resources; Geo-detection Laboratory of the Ministry of Education, Beijing 100083 China

2. School of Geophysics and Information Technology, China University of Geosciences, Beijing 100083 China

Abstract: We designed and developed an activated charcoal cumulated adsorption method for measuring radon exhalation rate from soil to perform rapid observation at many sites in a large area. Based on the data of measurements on the radon exhalation facility and real-time soil radon exhalation rate in the field, we studied the types of the activated charcoal and sampling device, accumulated exposure time and radon effective decay constant. We investigated the soil radon exhalation in a university yard (sandy loam) from 2002—2003. The average of radon exhalation rate is $20.15 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; the standard deviation is $3.55 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, and the variety ranges from 13.49 to $26.75 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. By comparison, the results of activated charcoal adsorption and an equipment of electrostatic collection are coincident with each other. The results revealed that the method of activated charcoal adsorption is practical, feasible and rapid for measuring the ^{222}Rn exhalation rate from soil in the field.

Key words: soil radon exhalation rate; activated carbon adsorption; gamma-ray spectrometry; static collection.

矿工流行病学调查已证明, 在高浓度氡环境中, 氡子体的 α 辐射可以导致肺癌发生率的增高。近年国内外研究结果表明: 室内环境中高氡浓度暴露同样会导致人类肺癌危险度有统计意义的增加。因此, 土壤氡析出率的测定及研究近年来受到广泛关注。据报道, 世界平均60.4%的室内氡来自地面和建筑

物周围的土壤(任天山, 2001)。氡析出率是介质单位时间内单位面积上释放到大气中的氡的量, 它直观地反映了介质释放氡的能力, 单位是 $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。根据国际原子能效应委员会(UNSCEAR)1993年报告称(UNSCEAR, 1993), 世界范围内地表 ^{222}Rn 析出率的平均值为 $16 \sim 26 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。由于氡的析出

基金项目: 国家自然科学基金项目(Nos. 40274023, 40674067)。

作者简介: 王南萍(1957—), 女, 博士, 教授, 长期从事环境与辐射相关问题的教学与科研工作。E-mail: npwang@cugb.edu.cn

受介质粒度、湿度、孔隙度、介质中镭含量,以及大气压强、风速、风力、温度等多种因素影响,加之大多数地区土壤中氡析出率较低,测定土壤氡析出率有一定难度,要在一定时间内实现大面积、多点快速测量难度更大。

土壤氡析出率测量方法按采样时间分主要有两种:瞬时测量和累积测量。瞬时测量方法是用一个累积箱置于土壤表面(密封防泄露),按一定的积累时间间隔收取箱内的氡气,用各种测氡仪(Alpha-GUARD 2000 PRQ、FTB-648等)直接测量不同累积时间的氡浓度(陈凌等,1998;杨亚新等,2002;FazaFur-Rehman *et al.*, 2003;郭秋菊和程建平,2004);或将硅半导体探测器直接安放在累积箱内,用静电收集法提高收集 ^{218}Po 粒子的效率直接测定累积箱内的氡浓度(孙凯男等,2005;苟全录和弘智帮,1998)。两种方法都可用线性或指数拟合方法求得测点处不同时间土壤氡析出率。累积测量方法则用一个累积箱直接置于土壤或建材表面,用活性炭盒或固体核径迹(CR-39)法通过测量采样空间内氡浓度间接测定介质的氡析出率(Singh *et al.*, 1999; Al-Jarallah *et al.*, 2001; Al-Jarallah, 2001; 付锦等,2002; Wang and Xiao, 2004)。但是,前人报道的瞬时测量方法效率较低(一般每天仅能测4~5个点),有的不能排除氡(^{220}Rn)的干扰,而固体核径迹法在每个测点则需要数天累积时间,回到实验室需要蚀刻、读片等。

本文研究的活性炭累积吸附法是将活性炭盒和一个累积箱放在采样点上数小时,回到实验室用伽玛能谱仪测量,方法不仅简便、稳定、成本低、可抗氡(^{220}Rn)干扰,更重要的是可以在短时间内进行大面积测量。

1 测量装置和材料

活性炭累积吸附法测量装置由活性炭盒和累积箱组成。活性炭盒为放射性低本底聚乙烯材料制成的圆柱形容器,直径为75 mm,高30 mm,内装50 g活性炭;圆台状塑料累积箱高265 cm,底部分直径220 cm。野外采样时装有活性炭的活性炭盒置于累积箱中央,累积箱倒置于土壤表面(插入土壤2 cm),四周用粘土密封,见图1(Wang and Xiao, 2004)。

经过活性炭吸附能力实验后,选定优质椰壳颗粒状活性炭(型号GH-8)为吸附剂,其微孔结构发

达,粒度为6~16目,比表面积为:1000~1300 m^2/g ,总孔容积约为:1.0 mL/g 。

2 土壤氡析出率活性炭累积吸附法研究

2.1 活性炭累积吸附法

活性炭累积吸附法利用活性炭对氡的强吸附特性,属于固相对气相的吸附。活性炭的比表面积越大,对氡的吸附能力越强。由于活性炭对氡的强吸附性能,可将累积箱内由土壤析出的氡吸附到活性炭盒的炭床中,一般没有反扩散的问题。在野外观测点,将活性炭盒的密封盖打开,按图1所示将活性炭盒置于土壤表面,并将累积箱用封泥或粘土密封。当累积一定时间后(通常为3~4 h),将活性炭盒取出并立即密封。吸附了氡的活性炭盒密封3.5 h后,其氡的短寿子体 ^{214}Pb 和 ^{214}Bi 等可与 ^{222}Rn 达到放射性平衡。活性炭盒送或寄回实验室后,可通过测量氡子体的特征伽玛射线的全能峰面积来计算氡析出率。具体计算公式如下(肖磊,2004):

$$E = \frac{(n_r - n_b)\lambda e^{\lambda T}}{kS(1 - e^{-\lambda T})} \quad (1)$$

其中, E 为采样期间累积箱内平均氡析出率, $\text{Bq}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$; k 为转换系数, $\text{cps} \cdot (\text{Bq}/\text{s})^{-1}$; n_r 为特征伽玛射线的全能峰面积(计数率), cps ; n_b 为采样前活性炭盒的本底计数率, cps ; S 为累积箱底面积, m^2 ; T_s 为采样时间, h ; λ 为氡的衰变常数, 0.007553 h^{-1} ; T 为采样时间终点(活性炭盒密封时间)至测量开始的时间间隔, h 。该实验装置的转换系数在使用前应在国家标准氡室的氡析出率参考装置上测定,见下文。

2.2 测量装置刻度

2.2.1 刻度装置 氡析出率参考装置模拟土壤或铀矿尾砂,它由三部分组成。装置的下部为一圆锥形

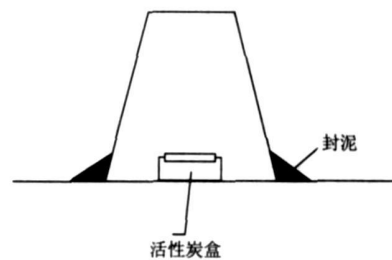


图1 活性炭累积吸附装置示意图(Wang and Xiao, 2004)

Fig. 1 The sketch map of device of activated charcoal cumulated adsorption (Wang and Xiao, 2004)

积氡空腔, 内装高射气系数固体氡源, 活度为 8.55×10^5 Bq, 在积累氡的空腔中形成了高达 3.924×10^6 Bq/m³ 的氡浓度; 中部为圆柱形析出介质, 介质由石膏板、轻质碳酸钙粉及泡沫塑料板组合而成; 装置的上部为积氡罩(也称积氡箱), 铜锣形, 容积为 0.068 54 m³, 底面积为 0.708 8 m², 容积与底面积之比为 0.096 7 m。氡析出介质表面直径为 95 cm。该参考装置氡析出率的表面析出率平均值为 1.48 Bq · m⁻² · s⁻¹, 短期稳定性和长期稳定性分别为 4.7% 和 1.4%, 均匀性为 8.1%。

2.2.2 转换系数计算 将采样装置安放在参考氡析出率装置上, 由氡析出率计算公式(1), 得到转换系数计算公式:

$$k = \frac{(n_r - n_b)\lambda e^{\lambda T}}{ES(1 - e^{-\lambda T})} \quad (2)$$

其中, E 为氡析出率参考装置的已知氡析出率, 其他参数同公式(1)。

分别记录活性炭盒开始暴露和结束(密封)的时间、室内伽玛谱分析开始测量时间, 以及实测的²¹⁴Bi 特征伽玛射线全能峰的净面积(计数率), 利用公式(2)即可求得转换系数 k 。

装置刻度时, 在氡析出率参考装置上的 5 个点同时进行了采样。测点编号为 1 号、2 号、3 号、4 号、5 号, 点的位置如图 2 所示, 各点氡析出率的参考值分别为: 1.41、1.51、1.64、1.48、1.50 Bq · m⁻² · s⁻¹。5 个采样点的累积时间分别为 1~6 h, 按累积时间分别为 1、2、3、4、5、6 h 条件下计算转换系数, 结果如表 1 所示。

利用平均转换系数 $k=0.0076$ 计算得到的 1 号、2 号、3 号、4 号、5 号点上 1~6 h 各测点的实测氡析出率。当累积时间在 120 min 和 180 min 时, 实测氡析出率与理论氡析出率的相对误差范围为 0~11.5%; 当

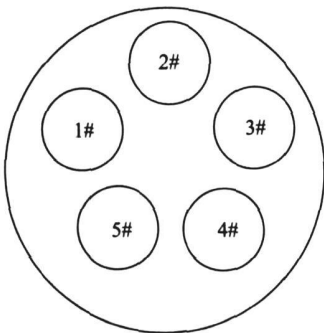


图 2 刻度装置采样位置

表 1 不同累积时间求得的转换系数

Table 1 Factor k at corresponding accumulated exposure time

累积采样时间(min)	转换系数(cps · (Bq/s) ⁻¹)
60	0.0064
120	0.0072
180	0.0078
240	0.0081
300	0.0080
360	0.0083
平均转换系数	0.0076

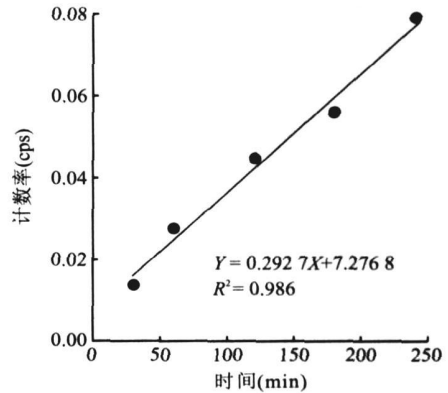


图 3 累积箱内氡浓度增长与累积时间关系

Fig. 3 The relationship between radon concentration in the can and accumulated exposure time

累积时间为 60 min, 计算的氡析出率误差较大。

2.3 野外采样时间确定

活性炭累积吸附法在野外采样过程中是根据选择的采样点逐点安放采样装置。因此, 每个测点的采样时间很难保持一致。不同的采样时间是否对实测氡析出率有影响是首先需要研究的问题。2002 年 6 月在中国地质大学校内实验点进行不同采样时间实验。同一测点累积时间分别为 30、60、120、180、240 min, 活性炭盒中吸附的²¹⁴Bi 全能峰净面积(352 keV 计数率)与累积时间成正比, 结果如图 3 所示, 相关系数为 0.986。因此, 野外活性炭盒累积时间在 1~4 h 不会产生明显的泄漏和反渗透问题。

3 应用实例

3.1 长期测量结果

2002 年 7 月至 2003 年 8 月, 采用该装置与方法在中国地质大学校园内实验点对土壤氡析出率进行了长期的观测。实验点为我国典型的华北平原第四纪沉积物, 粘土或亚粘土, 土壤中放射性核素钍、

镭、钍、钾分布均匀。通过对 22 次测量结果分析,该点土壤氡析出率最大值和最小值分别为 26.75 和 13.49 $\text{mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 平均值为 20.15 $\text{mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 标准偏差为 3.55 $\text{mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 见图 4。夏季 7 月份土壤氡析出率最大, 这也是气温最高的时期; 而最低的两个值分别出现在 5 月 29 日和 6 月 5 日, 均为雨后测量结果, 此时土壤含水量很大。土壤氡析出率的长期测量结果符合统计涨落规律, 呈正态分布。长期测量结果表明, 该方法的稳定性和重现性很好。

3.2 与静电收集法比较

3.2.1 基于 ERS-2 氡析出率仪的静电收集方法

基于 ERS-2 氡析出率仪的静电收集法是将仪器直接放置在土壤表面测量, 通常每个测点测量时间不少于 1.5 h, 每天最多可测量 4~5 个测点。静电收集法的工作原理是通过测量氡的第一个衰变产物 ^{218}Po 在半导体探测器上的静电沉积(图 5)来测定氡的析出率。德国产 ERS-2 氡析出率测量仪采用离子注入型硅半导体探测器, 从土壤中析出的氡气运移到密闭的氡积累空腔, 氡积累空腔是一个密闭的金属半球, 金属半球上加有 +3000V 的高压。由氡衰变产生的 ^{218}Po 粒子在静电作用下沉积到探测器上, 通过测量 ^{218}Po 的 α 谱计算现场采样点的氡浓度。通过氡积累腔内连续一段时间氡浓度增长的曲线来计算每个测点处的氡析出率。在实际测量过程中, 循环时间一般选为 20 min, 在每个测点测量 6 个氡浓度, 氡析出率可以通过曲线拟合得到。随着时间的积累, 积累箱里氡浓度不断的增高, 在短时间内, 这种增长呈线性关系。那么氡积累空腔内氡浓度 $c(t)$ 可以表示为:

$$c(t) = m \cdot t + I. \quad (3)$$

其中, c 为采样时间内的计数, m 是线性拟合的斜率, I 是截距。如果 V 表示累积空腔的体积, A 表示累积空腔的底面积, 那么 ^{222}Rn 析出率可以表示为:

$$E = m \cdot V / A. \quad (4)$$

单位为 $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

表 2 活性炭累积法与静电收集法土壤氡析出率测量结果对比

Table 2 The comparison of the results between activated charcoal adsorption and electrostatic collection

地点	方法	测量时间	土壤氡析出率($\text{mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)
校内实验点	活性炭累积吸附法	2003-07-09	22.0±1.3
校内实验点	静电收集法(ERS-2)	2003-07-09	20.0±1.2
校内实验点	活性炭累积吸附法	2004-04-13	21.9±1.5
校内实验点	静电收集法(ERS-2)	2004-04-13	20.3±1.9

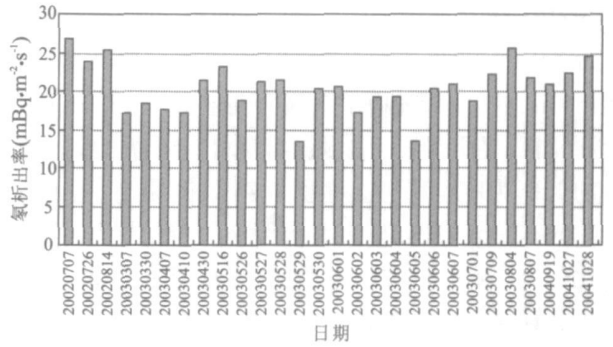


图 4 2002—2003 年土壤氡析出率观测结果

Fig. 4 Radon exhalation rates at a university yard from 2002—2003

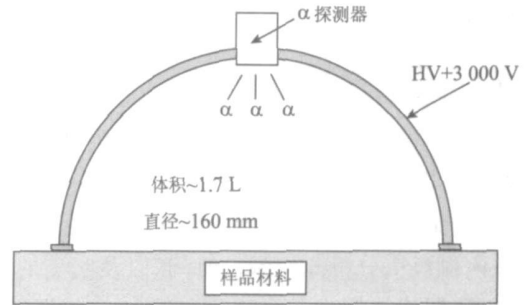


图 5 静电收集氡析出率测量仪结构示意图(ERS-2)

Fig. 5 Structural drawing of electrostatic collection device (ERS-2)

3.2.2 活性炭累积吸附法与静电收集法的比较

为了验证活性炭累积吸附法测量土壤氡析出率的准确性和可靠性, 分别于 2003 年和 2004 年的夏季和春季在中国地质大学(北京)校内实验点与静电收集法进行了比较, 两种方法两次对比测量误差在 10% 以内, 详见表 2。该实验结果表明, 活性炭吸附法测量结果不仅准确可靠, 而且简便可行。

4 结论

通过两年多野外实验和与仪器静电收集法比较, 土壤氡析出率活性炭累积吸附法具有以下特点:

(1) 长期重复观测结果稳定、可靠, 数据重现性好。
 (2) 由于采用伽玛谱分析方法通过测定 ^{214}Bi 的活度来计算氡析出率, 可排除氡(^{220}Rn)的干扰。(3) 野外工作效率较高, 适用于大面积的土壤氡析出率调查, 方法简便、易行。室内具备多道伽玛能谱测量仪的单位均可采用。(4) 每一种采样装置和不同批次的活性炭均应进行刻度, 保证转换系数的准确性。由于活性炭吸附法受湿度影响较大, 应进一步研究不同湿度修正方法。

致谢: 本研究得到国家自然科学基金资助 (Nos. 40274023, 40674067)。李灿苹、黄英、刘少敏、刘栋梁和裴少英等同学参加了部分野外测量工作, 在此表示深深的感谢。

References

Al-Jarallah, M. I., 2001. Radon exhalation from granites used in Saudi Arabia. *Journal of Environmental Radioactivity*, 53(1): 91—98.

Al-Jarallah, M. I., Abu-Jarad, F., Fazaal-ur-Rehman, 2001. Determination of radon exhalation rates from tiles using active and passive techniques. *Radiation Measurement*, 34(1—6): 491—495.

Chen, L., Xie J. L., Huang, L., 1998. Measurement and related factors about radon surface exhalation rate. *Radiation Protection Bulletin*, 18(6): 28—36 (in Chinese with English abstract).

Fazaal-ur-Rehman, Al-Jarallah, M. I., Musazay, M. S., et al., 2003. Application of the can technique and radon gas analyzer for radon exhalation measurements. *Applied Radiation and Isotopes*, 59(5—6): 353—358.

Fu, J., Han, Y. Z., Zhang, B., 2003. Measuring radon exhalation rate from uranium tailings by the instrumentality of active carbon absorption. *Radiation Protection Bulletin*, 23(2): 32—35 (in Chinese with English abstract).

Guo, Q. J., Cheng, J. P., 2004. Measurement of $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ progeny and exhalation rates for $^{222}\text{Rn}/^{220}\text{Rn}$ from soil in Zhuhai area. *Radiation Protection*, 24(2): 110—115 (in Chinese with English abstract).

Gou, Q. L., Zhang Z. H., 1998. Discussion on the formula of electrostatic collection radon exhalation rate monitor. *Atomic Energy Science and Technology*, 32(5): 420—426 (in Chinese with English abstract).

Ren, T. S., 2001. Source, level and control of indoor radon. *Radiation Protection*, 21(5): 291—299 (in Chinese with English abstract).

Singh A. K., Sengupta D., Prasad R., 1999. Radon exhalation rate and uranium estimation in rock samples from Bihar uranium and copper mines using the SSNTD technique. *Applied Radiation and Isotopes*, 51(1): 107—113.

Sun, K. N., Guo, Q. J., Cheng, J. P., 2005. The effect of some soil physical parameters on soil radon concentration and radon exhalation from soil surface. *Chin. J. Radio. Med. Prot.*, 25(1): 78—80 (in Chinese with English abstract).

UNSCEAR, 1993. United Nations scientific committee on the effects of atomic radiation, sources and effects of ionizing radiation. United Nations 1993. UNSCEAR, New York.

Wang, N. P., Xiao, L., 2004. A detailed study of indoor ^{222}Rn level associate with ^{222}Rn exhalation from sediment and the character of sediment in high-background weathered granite area, south China. <http://www.irpa11.com/mew/pdf/s/6a69pdf>.

Xiao, L., 2004. Study on a method of soil radon exhalation rate and the correlativity between soil and radon exhalation rate and region indoor radon concentrations [Dissertation]. China University of Geosciences Beijing, 6—33 (in Chinese with English abstract).

Yang Y. X., Wu, X. M., Wu, Y. M., et al., 2002. Experimental research on radon exhalation with double-filter method. *Bulletin of Science and Technology*, 18(1): 38—42 (in Chinese with English abstract).

附中文参考文献

陈凌, 谢建伦, 黄隆, 1998. 氡面析出率的测量及相关因素的考虑. *辐射防护通讯*, 18(6): 28—36.

付锦, 韩耀照, 张彪, 2003. 活性炭吸附法测量铀矿尾矿氡析出率. *辐射防护通讯*, 23(2): 32—35.

苟全录, 张智慧, 1998. 静电收集式氡析出率仪的计算公式讨论. *原子能科学技术*, 32(5): 420—426.

郭秋菊, 程建平, 2004. 珠海市环境空气中 ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 子体水平及土壤析出率测量. *辐射防护*, 24(2): 110—115.

任天山, 2001. 室内氡的来源, 水平和控制. *辐射防护*, 21(5): 291—299.

孙凯男, 郭秋菊, 程建平, 2005. 土壤物理性质对土壤氡浓度及地表氡析出率的影响. *中华放射医学与防护杂志*, 25(1): 78—80.

肖磊, 2004. 土壤氡析出率测量方法及其与区域环境氡浓度相关性研究(硕士学位论文). 北京: 中国地质大学, 26—33.

杨亚新, 吴信民, 吴雅梅, 等, 2002. 用双滤膜法测定氡析出率的实验研究. *科技通报*, 18(1): 38—42.