

活性炭法测量氡析出率的影响因素研究

刘良军

中图分类号: T1818⁺9 X837 文献标识码: A 文章编号: 1004-714X(2007)02-0144-03

【摘要】 用实验研究了活性炭法测介质表面氡析出率的影响因素。采用 24h 的收集时间, 用含水海绵模拟介质的不同含水率, 使用 100g 活性炭, 测量混凝土等介质表面时, 活性炭每多吸收 1g 水造成测量值减少约 1%, 测量石膏介质表面时, 活性炭每多吸收 1g 水造成测量值减少约 1.85%。正常测量情况下, 在石膏板析出率模型上测量时, 收集时间从 24h 增大到 48h 和 72h 氡析出率测量值分别减小了 12% 和 25% 左右, 对于密度较大的介质, 如混凝土等, 反扩散效应不明显。

【关键词】 氡析出率; 活性炭; 影响因素

Study Of the Influencing Factors Of Measuring Radon Exhalation Rate By the Method Of The Activated Charcoal Absorption LIU Liang-jun Radon Laboratory Nanhua University, Hengyang 421001 China

【Abstract】 The influencing factor of measuring radon exhalation rate is studied with the method of the activated charcoal absorption. The sampling time is 24 hours and water sponge is used to simulate the medium with different water. We use 100g activated charcoal to measure different materials. It is found that when we measure concrete surface, activated charcoal absorbs more than 1g water, reducing the measured value by about 1%. When we measure plaster surfaces, activated charcoal absorbs more than 1g water, reducing the measured value by about 1.85%. In normal condition, measured value of the radon exhalation rate from plaster surfaces reduces by about 12% and 25% respectively when we lengthen the sampling time from 24 hours to 48 hours and 72 hours. The anti-diffusion effects are not obvious to the medium which is biggish such in density as concrete.

【Key words】 Radon Exhalation Rate; Activated Charcoal; Influencing Factors

测量介质表面的氡析出率是评价天然辐射水平和评价铀矿山退役治理是否合格的重要手段之一。使用局部静态累积法测量介质表面的氡析出率时, 用活性炭收集积累的氡, 用 γ 谱法测量计算氡析出率是最常用的方法之一^[1-3], 该法测量可靠、便宜又可重复使用。一般认为活性炭对氡的强烈吸附效应, 介质表面析出的氡全部为活性炭吸附。由于活性炭对氡的吸附一方面存在吸附和解析的动态平衡过程, 另一方面活性炭对氡的吸附受其吸附的水分多少的影响。如: 文献[4]的作者使用经烘烤的活性炭做氡的吸附试验并与未经烘烤的活性炭比较, 发现后者的氡吸附量比前者少 16%~24%, 且下降量与炭装量和暴露时间的长短无关; 文献[5]的作者对 1g 活性炭加水 1.5g 发现其吸附系数下降约 15%。因此, 活性炭累积法测氡析出率时, 累积盒中总有一定的自由氡。由于介质对氡的扩散具有双向性, 即由高氡浓度区向低氡浓度区扩散, 活性炭法测介质表面的测氡析出率同样可能低估真实值, 只是累积盒中氡浓度的增加相对其他方法要小得多, 因此氡的泄漏和反扩散也要小得多, 用活性炭法测得的氡析出率也最接近真实值。

为了氡析出率模型的准确定值, 我们选择了活性炭累积法

作为主测量方法, 并就该方法可能的影响因素作了实验研究。

1 湿度效应研究

1.1 实验方法和装置 为保证实验过程与实际的测量相一致, 我们将吸水的海绵置于测量装置中, 其余测量条件不变, 为达到相同累积时间活性炭吸附水分量的不同, 每次测量使用不同的吸水海绵面积, 吸水海绵的面积(单位 cm^2)分别为: 0, 50, 80, 130, 150, 200。吸水海绵用容器装好, 并用铜质筛网支撑该容器。不同的测量采用相同的累积采样时间即 24h。使用 100g 活性炭, 活性炭使用前在 120℃ 的温度下烘烤 8h 时, 并在无氡干燥环境下冷却。收集的活性炭样品放置 3h 后开始测量, 整个测量过程中, 环境平均温度基本相同。测量装置为 ORTEC 公司生产的 GEM 30P4-Plus 型高纯锗 γ 能谱仪, 测量前先用 ^{60}Co 源进行能量刻度, 然后用已知活度的活性炭标准源刻度 γ 能谱仪的探测效率(ϵ), 测量使用氦子体 Bi-214 的 609.32keV 的 γ 特征峰。实验使用的氡析出率源分别为固体氡源、混凝土模型、石膏板模型, 实验装置如图 1 和图 2 所示。上述氡析出率源经过了 3a 以上的监测, 证明是稳定的。图 1 中的磨口玻璃瓶体积约为 2600ml, 实验时磨口玻璃瓶盖和瓶的结合处用凡士林密闭。图 2 中的采样器底面积即收集面积为 615.4 cm^2 , 采样器与模型间用橡皮泥密封。

基金项目: 湖南省科技厅重点项目(05FJ2003)

作者单位: 南华大学氡实验室, 湖南 衡阳 421001

作者简介: 刘良军(1963-), 男, 湖南湘潭人, 高级工程师, 从事氡的测量和核电子学研究。

京: 化学工业出版社, 2000

- egalovinus is a risk factor in atherogenesis[J]. Hepes 2002 9 (1): 21-23
- [6] Altannavch TS, Roubabva K, Broz J, et al. Serological markers of Chlamydia pneumoniae, cytomegalovirus and helicobacter pylori infection in diabetic and non-diabetic patients with unstable angina pectoris[J]. Cent Eur J Public Health 2003 11(2): 102-106
- [7] 中国生物制品标准化委员会. 中国生物制品规程[M]. 北

- [8] 俞建民, 谢忠平, 董承红, 等. PEG 沉淀 HAV 的最佳条件[J]. 中国生物制品学杂志, 1997 10(1): 52-53
- [9] Wenz B, Apuzzo J, Shah DP. Evaluation of the polyethylene glycol-potentiated indirect antigen test[J]. transfusion 1990 30(4): 318-21.
- [10] 吕绳敏. 巨细胞病毒感染的实验室诊断[J]. 实用儿科杂志. 1992 7(2): 67-68

(收稿日期: 2006-11-17)

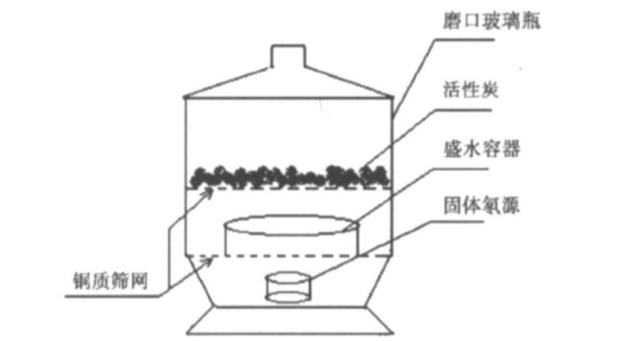


图 1 采用固体氢源的实验装置示意图

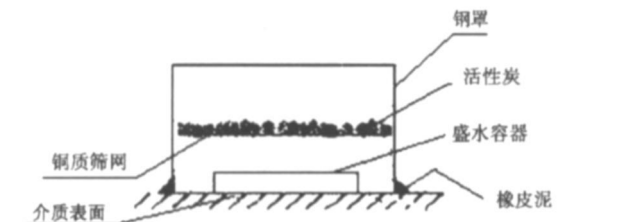


图 2 采用模型氢析出率源的实验装置示意图

1.2 实验结果 将一固体氢源置于图 1 所示的磨口瓶的底部,上面用铜质筛网支撑盛水容器,盛水容器上方放一铜质筛网,筛网上放 100g 活性炭,密封放置 24h。取样完成后,取出活性炭放入活性炭盒中密封,用天平称量活性炭放置前后的重量确定活性炭吸收水份的多少,用 γ 谱仪测量活性炭中的氢,计算出活性炭在采样过程中吸附的氢量。每次实验使用不同的吸水海绵面积,实验结果如表 1 所示。对实验数据进行一元线性回归处理,得线性回归方程 (1),相关系数 $R=0.904$ (1) 式中 x 为吸水量 (g), y 为活性炭吸附的氢量 (Bq)。

$$y = -67.068x + 6.9227 \quad (1)$$

表 1 用固体氢源时的氢活度测量结果

活性炭吸附水 (g)	活性炭吸附的氢活度 (Bq)
0	6.605 10
2	6.604 97
10	6.305 54
16	6.019 99
23	5.777 14
27.5	4.641 09

在石膏板氢析出率模型和混凝土氢析出率模型上做了类似的实验,实验方法与上述方法相同,实验装置参见图 2 其中石膏板的氢析出率参考值为 $(1.46 \pm 0.09) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,混凝土的氢析出率参考值为 $(0.40 \pm 0.02) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,实验结果如表 2 表 3 所示。

表 2 石膏板模型上的氢析出率测量结果

活性炭吸附水 (g)	测量氢析出率 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)
4	1.47
11	0.94
16	0.86
20	0.85
29	0.79
45	0.22

石膏板模型实验数据的一元线性回归方程为方程 (2),相关系数 $R=0.936$ (2) 式中 x 为吸水量 (g), y 为测量的氢析出

率 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)。

$$y = -0.0257x + 1.3903 \quad (2)$$

混凝土模型实验数据的一元线性回归方程为方程 (3),线性相关系数 $R=0.914$ (3) 式中 x 为吸水量 (g), y 为测量的氢析出率 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)。

表 3 混凝土模型上的氢析出率测量结果

活性炭吸附水 (g)	测量氢析出率 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)
4	0.408
10	0.402
15	0.362
20	0.367
28	0.356
39	0.242

$$y = -0.0043x + 0.4399 \quad (3)$$

将方程 $y = -ax + b$ 变换成 $y/a = -(a/b)x + b/a$ 方程 (1), (2), (3) 的 a/b 分别为: 0.009688, 0.01848, 0.00977。此系数的含义为 100(g) 活性炭每多吸收 1g 水在上述三种测量条件下造成测量值减少的百分比分别为: 0.97%, 1.85%, 0.98%。

2 泄漏效应研究

2.1 实验方法和装置 用一直径 28cm, 高 4.7cm 的不锈钢集氢罩,罩的顶部开两个直径为 10mm 的小孔并装上铜嘴,铜嘴上接橡皮管,橡皮管用钢夹夹紧,铜嘴与罩的接合部位用环氧树脂密封。用一直径 2.65cm 圆形铜质筛网固定活性炭,筛网与待测氢析出率的介质面间的距离为 10mm。使用 200g 4~6 目的椰壳活性炭均匀布放在准备好的筛网上,活性炭使用前先用烘箱在 120℃ 的温度下烘烤 7~8h,然后转入密封的玻璃干燥器中冷却。钢罩扣好后用真空橡皮泥密封,如图 3 所示。测量在南华大学氢实验室制作的氢析出率为 $(1.51 \pm 0.09) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 的氢析出率装置上进行,表面介质为石膏板,相当于松散介质。钢罩中的氢用医用注射器在罩的顶部小孔中取样,测量仪器为 FD-125 型氢钍分析仪和 FH-463 定标器,闪烁室为 500ml 的 ST-203。活性炭中氢的测量采用高纯锗 γ 能谱仪。

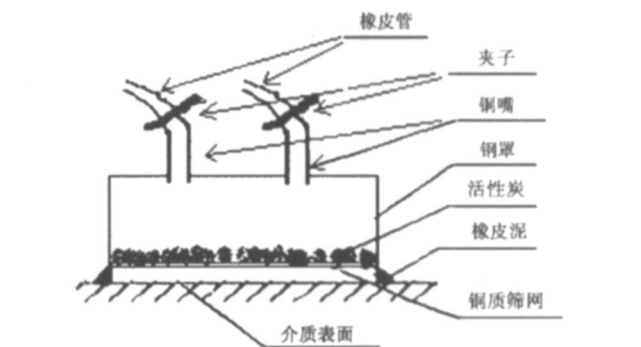


图 3 泄漏效应实验装置示意图

2.2 氢活度测量结果 用注射器通过橡皮管抽取 20ml 集氢罩中的气体,用负压方式将取得的样品气体转入闪烁室内,补充到闪烁室内的为经除氢处理的空气。静置 3h 使闪烁室内氢与其子体达到放射性平衡后开始测量,计数时间为 5min。累积箱内空气中氢活度浓度用公式 (4) 计算。无泄漏和反扩散条件

下, 取样结束后集氩罩中累积的总氩活度用公式 (5) 计算。

$$C=\frac{n-n_0}{5}\cdot K\cdot \frac{V}{v}$$
 (4)

$$Q=\frac{\delta}{\lambda}[1-\exp(-\lambda T)]$$
 (5)

式中 C 为采样器中空气氩活度浓度, $Bq\ m^{-3}$; n 为样品 5m in 测量计数; n_0 为闪烁室本底计数 (5m in); K 为闪烁室刻度系数, $Bq\cdot m^{-3}\cdot cpm^{-1}$; V 为闪烁室容积 (500ml); v 为样品气体的体积 (20ml); Q 为氩活度, $Bq\ S$ 为氩析出率收集面积, m^2 ; λ 为氩的衰变常数 ($2.097\times 10^{-6}\ s^{-1}$); δ 为界面氩析出率, $Bq\ m^{-2}\cdot s^{-1}$; T 为收集时间, s

在收集期间定时取样测量, 得到一组样品, 取样结束后, 用 HPG $\epsilon\gamma$ 谱仪测量活性炭吸附的氩活度。多次重复实验所得结果相差不大, 表 4 和图 4 是实测的一组数据。

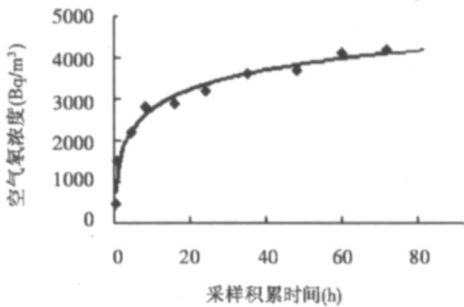


图 4 集氩罩内空气氩活度浓度随收集时间变化曲线

图 4 的结果说明, 活性炭吸附氩时, 不是全部吸附, 而是有一个吸附和解析的平衡过程。积氩罩内外的浓度梯度必然会导致氩的泄漏。

表 4 集氩罩内理论计算、空气中、活性炭吸附氩活度

氩活度	活性炭采样时间 (h)		
	24 0	48 0	72 0
理论计算值 ($Bq\ l^{-1}$)	7 339	13 462	18 570
采样器内空气中 (Bq)	9.59	11.17	12.91
实测值 ($Bq\ l^{-1}$) ²⁾	8 114.79	14 144.56	18 144.46
计算值 实测值	0.90	0.95	1.02

注: 1) 理论计算值按无泄漏和反扩散时条件计算。2) 实测值为活性炭吸附的氩活度。

表 5 石膏模型上不同收集时间的测量结果

活性炭采样时间 t_1 (h)	从采样结束到测量时间 t_2 (h)	氩析出率 δ ($Bq\ m^{-2}\cdot s^{-1}$)	平均氩析出率 ($Bq\ m^{-2}\cdot s^{-1}$)
24	3 0	1.49	1.46±0.04
24	3 0	1.42	
24	3 1	1.43	
24	3 0	1.51	
48	3 0	1.24	1.28±0.05
48	3 0	1.33	
48	3 0	1.30	
48	3 2	1.23	
72	3 0	1.11	1.09±0.02
72	3 0	1.11	
72	3 0	1.06	
72	3 2	1.08	

表 4 的计算氩活度值小于实测值是由于给定的氩析出率

(不确定度 6%) 和活性炭标准源 (不确定度 5%) 的误差产生的系统测量误差。计算氩活度与实测氩活度之比随收集时间的延长而明显增大, 提示存在着氩的泄漏和反扩散, 收集时间从 24h 增大到 48h 和 72h 计算氩活度与实测氩活度之比分别变化了 5.5%, 13% 左右。

2.3 氩析出率测量结果 将 200g 烘烤后的备用活性炭均匀放置在装置中, 收集时间分别为 24h、48h、72h。当采样时间达到时, 将采样器内的活性炭取出, 密封在标准炭盒内并摇匀, 标记好, 等待 3 小时使氩及其子体达到平衡进行测量。实验测得的数据见表 5。表 5 的数据显示, 采样时间为 48h 和 72h 与 24h 的结果相差 12% 和 25%, 变化趋势与活度测量的结果相符。表 6 的数据表明混凝土模型测量的氩析出率与采样时间之间没有相关性。

表 6 混凝土模型上不同收集时间的测量结果

活性炭采样时间 t_1 (h)	从采样结束到测量时间 t_2 (h)	氩析出率 δ ($Bq\ m^{-2}\cdot s^{-1}$)	平均氩析出率 ($Bq\ m^{-2}\cdot s^{-1}$)
8 00	4.33	0.446	0.412±0.22
14 00	3.50	0.403	
18 83	3.67	0.412	
24 00	4.00	0.376	
27 00	3.50	0.408	
32 00	3.75	0.407	
44 00	3.30	0.407	
48 00	4.00	0.429	

3 结论

用活性炭法测介质表面氩析出率时, 介质的含水率对测量结果有影响, 采用 24h 的收集时间, 使用 100g 活性炭测量混凝土等介质表面的氩析出率时, 活性炭每多吸收 1g 水造成测量值减少约 1%, 测量石膏介质表面时, 活性炭每多吸收 1g 水造成测量值减少约 1.85%。正常测量情况下, 在石膏板析出率模型上测量时, 收集时间从 24h 增大到 48h 和 72h 氩析出率测量值分别减小了 12% 和 25% 左右, 对于密度较大的介质, 如混凝土等, 反扩散效应不明显。实验提示, 用活性炭测氩析出率时, 对于疏松介质, 或含水率较高的介质, 需考虑作湿度修正, 对不同的收集时间, 也需考虑修正。

实验是在特定条件下完成的。由于没能在各种环境条件下 (温度、湿度、气压等) 作相关实验, 测量的结果是否具有广泛性有待进一步的研究。

参考文献:

[1] 吴慧山. 氩的测量方法与应用 [M]. 北京: 原子能出版社, 1995.

[2] 付锦, 韩耀照, 张彪. 活性炭吸附法测量铀尾矿氩析出率 [J]. 辐射防护通讯, 2003 23(2).

[3] GB/T 16143-1995 建筑物表面氩析出率的活性炭测量方法 [S].

[4] 马文彦. 活性炭对氩吸附行为的研究 [J]. 核电子学与探测技术, 2002 22(1).

[5] H. Kojima. The exhalation rate of radon in the atmosphere and the influencing factors [P]. Proc 7th Tohwa Univ Int Sympo Fukuoka Japan 1997 240-245.

(收稿日期: 2006-12-28)