氡在大气扩散数值模拟中的湿沉降参数研究

武旭阳[1],宋显澎[1,2],孙 娟[1],连国玺[1],张昊岩[1],沈洪艳[2]

(1.中核第四研究设计工程有限公司,河北 石家庄 050021;
2.河北科技大学 环境科学与工程学院,河北 石家庄 050000)

摘要:在以氡为特征污染物的大气扩散数值模拟中,因其湿沉降参数一般采用缺省值而造成了计算精度的不确定性。为了确定氡湿沉降参数的影响因素和特征值,自主研制了试验装置模拟降水过程,综合分析了初始氡活度浓度、降水强度、降水 pH 与氡湿沉降率和清除效率的关系。结果表明,氡在大气环境中的湿沉降率与初始氡活度浓度和降水强度呈线性相关($R^2>0.99$),清除效率与初始氡活度浓度、pH 均表现出弱相关性。以气相氡为典型对象,当湿沉降率在 31～2 653 Bq/(m² · h)时,可预测氡的清除效率保持在 0.55%～0.65%。研究得到的降水强度与湿沉降参数的指数函数关系式可为氡的大气扩散数值模拟提供参数依据。

关键词:氡;大气扩散;模拟降水;湿沉降

中图分类号:X753 **文献标志码**:A **文章编号**:1000-8063(2023)04-0053-05

DOI:10.13426/j.cnki.yky.2023.02.06

氡是镭衰变产生的放射性核素,是世界卫生组织公布的主要致癌物之一[1-2]。在自然界的花岗岩、铀含量丰富的磷酸盐岩及众多建筑材料中均能析出大量的氡,氡也是铀矿冶设施释放的主要气载流出物,其对环境的辐射影响不可忽视[3-4]。监测数据表明,尾矿库氡对环境空气的影响范围多为 0～3 km,近距离对环境影响更大。氡在大气环境中的扩散过程较为复杂,湿沉降是氡在环境中迁移和去除的重要影响参数。

目前国内外关于氡湿沉降过程的研究主要集中在含氮、硫等化合物的湿沉降方面,通过模拟自然降水过程,将配制的含氮、硫元素的溶液作用于受试材料上,观察受试材料的变化规律[5-6];收集湿沉降样品、分析大气中氮、硫湿沉降规律及湿沉降总量[7-8];分析温度和 pH 对氡在水中的溶解与析出的影响[9-10];监测酸雨情况,得出酸雨的时间特征及酸雨等级[11]。根据氮、硫化合物湿沉降的特点,结合氡的溶解与析出规律以及当地的酸雨情况,可为氡的湿沉降过程研究提供参考。

在大气扩散数值模型中,氡的湿沉降参数一般采用缺省值,这造成了数值模拟计算的不确定性。笔者采用自主设计的氡湿沉降试验装置,研究氡活度浓度、降水强度和 pH 条件对氡湿沉降过程的影响规律,以期为铀矿冶设施氡的大气扩散模拟提供湿沉降参数。

1 材料与方法

1.1 试验材料

氡的释放源项取自某铀尾矿库干滩面的铀尾矿,经自然干燥后备用,氡析出率为 6～8 Bq/(m² · s);模拟降水用水为去离子水。

1.2 试验装置及仪器

试验装置长×宽×高为 1.0 m×1.0 m×1.8 m,从下至上分为 3 部分(图 1)。尾矿填充箱体(高 0.5 m)为 10 mm 厚铁板材质,集气阀装置(高 0.5 m)和集气罩(高 0.8 m)均为亚格力材质,所有装置连接处均用 3M 密封胶密封处理。

模拟降水装置由喷淋管路及供水系统组成,喷淋管路装配于集气空间罩内顶部,供水系统由蠕动泵(型号为 BT 600-2J,1 台)、储水桶及若干硅胶软管构成。空气中氡、水中氡活度浓度测试选用 RAD7 便携式测氡仪。

收稿日期:2023-02-08

基金项目:国防科技工业局核能开发科研技术研究项目"铀尾矿库长期安全稳定性及环境影响评价技术研究"

第一作者简介:武旭阳(1992—),男,河北邢台人,硕士,工程师,主要从事辐射防护和环境保护相关研究。

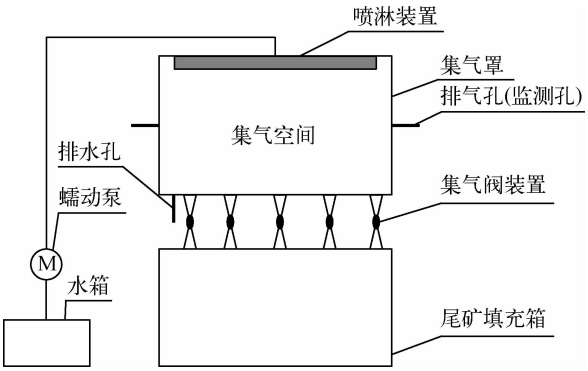


图 1 模拟氡湿沉降装置示意图

Fig. 1 Diagram of simulated radon wet deposition device

1.3 试验方法

研究初始氡活度浓度分别为 6、20、50、100、300、500 kBq/m³(浓度差控制在 10%～15%),降水强度分别为 50、70、90、110、130、150 mm/h,模拟不同 pH(4.5、5.0、5.5、6.0、7.0)降水时,对试验结果的影响。

试验开展前,通过控制集气阀对集气空间进行氡的采集,控制模拟降水用水的 pH,检测模拟降水用水中的氡活度浓度,作为本底值,并检测集气空间内的初始空气氡活度浓度。模拟降水时长设定为 1 h,在降水过程中通过集气空间底侧排水口采集水样,检测水中氡活度浓度,检测排水后集气空间内空气的氡活度浓度。氡在水中的溶解和析出主要受温度和压力影响,试验过程中认为集气空间内温度和压力不变,未考虑湿沉降后氡从水中析出及扩散情况;集气空间为封闭状态,不受外界大气风场影响,未考虑空气流动。

在考虑氡衰变的情况下,根据测量数据计算氡湿沉降率和清除效率[12]。

$$CV_1 = C_1V_1 + C_2V_2 + C_3V_1 , \quad (1)$$

$$N = N_0 \cdot 2^{-t/T} , \quad (2)$$

$$R_w = \frac{C_2V_2}{St} , \quad (3)$$

$$\eta = \frac{C_2V_2}{CV_1} , \quad (4)$$

式中:C 为降水前集气空间初始氡活度浓度,Bq/m³;C_1 为降水后集气空间氡活度浓度,Bq/m³;C_2 为降水冲刷的氡活度浓度,Bq/m³;C_3 为衰变的氡活度浓度(衰变的原子核数与集气空间体积比),Bq/m³;V_1 为集气空间体积,m³;V_2 为降水体积,m³;S 为降水面积,m²;N_0 是指初始时刻(t=0)时的原子核数;t 为降水时间(衰变时间);T 为半衰期,取 3.85 d;N 为衰变后留下的原子核数;R_w 为湿沉降率,Bq/(m² · h);η 为清除效率,%。

2 试验结果与分析

2.1 氡活度浓度与湿沉降率、清除效率的关系

在水合作用[13]下,气相的氡能自然溶解在流动降水中[14]。在集气空间内温度和压力保持不变的条件下,固定降水强度为 50 mm/h,模拟降水 pH 为 7.0,设定不同梯度的初始氡活度浓度进行试验,结果见表 1。可以看出,随着初始氡活度浓度升高,降水溶解的氡活度浓度也升高,单位体积降水中溶解的空气中氡的比例在 10%左右。初始氡活度浓度与降水后水中氡活度浓度呈线性相关。由试验结果可计算得出初始氡活度浓度与湿沉降率(图 2)及清除效率(图 3)的关系。

表 1 不同初始氡活度浓度条件下的试验结果

Table 1 Experimental results of different initial radon activity concentrations

C/(kBq/m³)	C_2/(kBq/m³)	C_1/(kBq/m³)	衰变总量(M)/kBq
6.303	0.624 0	6.075	0.151 0
21.37	2.008	20.70	1.193
50.57	4.828	48.65	1.292
118.3	9.318	106.7	8.841
299.9	27.05	270.0	21.85
535.0	53.06	501.0	24.55

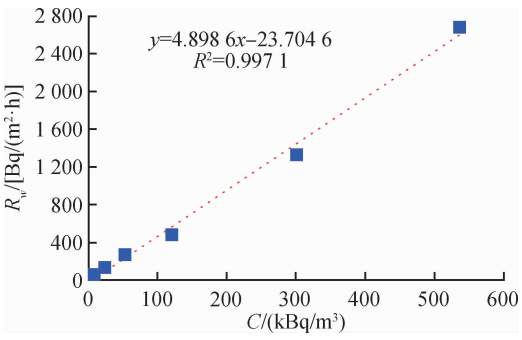


图 2 初始氡活度浓度与湿沉降率的关系

Fig. 2 Relationship between initial radon activity concentration and wet deposition rate

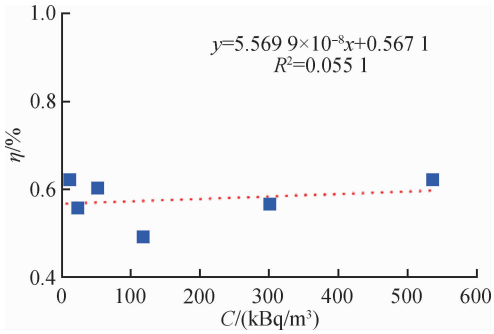


图 3　初始氡活度浓度与清除效率的关系

Fig. 3　Relationship between initial radon activity concentration and removal efficiency

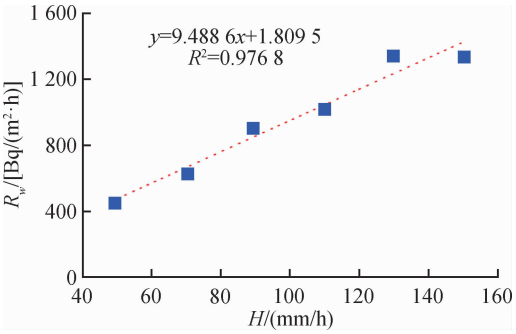


图 4　降水强度与湿沉降率的关系

Fig. 4　Relationship between precipitation intensity and wet deposition rate

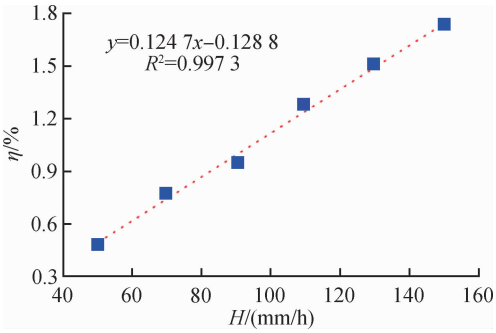


图 5　降水强度与清除效率的关系

Fig. 5　Relationship between precipitation intensity and removal efficiency

由图 2 可知，在降水强度、降水时长以及降水 pH 一定时，随着初始氡活度浓度升高，氡的湿沉降率逐渐增大，最小为 31 Bq/(m² · h)，最大为 2 653 Bq/(m² · h)，湿沉降率与初始氡活度浓度呈显著正相关。试验过程中，气相氡一直未达到饱和；随着集气空间内气相氡活度浓度的升高，其与水分子的水合作用增强，在水中溶解的氡也随之升高，氡的湿沉降率变大。

由图 3 可知，在降水强度、降水时长以及 pH 一定时，随着初始氡活度浓度升高，清除效率在 0.49%～0.65%波动，变化幅度较小，清除效率与初始氡活度浓度呈弱相关性。

2.2　降水强度与湿沉降率、清除效率的关系

初始氡活度浓度为 98～118 kBq/m³，模拟降水用水 pH 为 7.0。在不同降水强度条件下进行试验，结果见表 2。由表 2 试验结果可计算得出降水强度与湿沉降率(图 4)及清除效率(图 5)的关系。

表 2　不同降水强度条件下的试验结果

Table 2　Experimental results of different precipitation intensity

降水强度 (*H*)/(mm/h)	C_2/ (kBq/m³)	C_1/ (kBq/m³)	衰变总量 (*M*)/kBq
50	9.318	106.7	8.841
70	9.149	103.0	0.876 0
90	9.817	107.3	5.242
110	9.417	98.53	2.062
130	10.20	104.3	4.557
150	9.018	85.45	9.456

由图 4 和图 5 可知，在初始氡活度浓度与 pH 一定时，随着降水强度的提高，氡湿沉降率和清除效率逐渐增大，湿沉降率最小为 466 Bq/(m² · h)，最大为 1 353 Bq/(m² · h)；清除效率最小为 0.49%，最大为 1.73%，氡湿沉降率和清除效率与降水强度均呈显著正相关。根据水合作用原理，水分子中由氢键组成主体网格，网格内的各孔隙内存在气体分子[15]，随着降水强度增大，降水总量增多，增多的水分子能够溶解更多的气相氡，因此，氡的湿沉降率与清除效率均增大。

2.3　pH 与湿沉降率及清除效率的关系

初始氡活度浓度保持约 100 kBq/m³，降水强度为 50 mm/h，设定不同降水 pH 进行试验，结果见表 3。可以看出，随着 pH 升高，模拟降水后水中氡活度浓度基本保持不变。由试验结果可计算得到 pH 与湿沉降率(图 6)、清除效率(图 7)的关系。

表 3 不同模拟降水 pH 条件下的试验结果

Table 3 Experimental results of different simulated precipitation pH

pH	C_2/(kBq/m³)	C_1/(kBq/m³)	衰变总量(M)/kBq
7.0	9.318	106.7	8.841
6.0	9.687	97.90	8.129
5.5	9.593	103.5	4.454
5.0	9.337	93.95	4.107
4.5	9.504	101.5	3.125

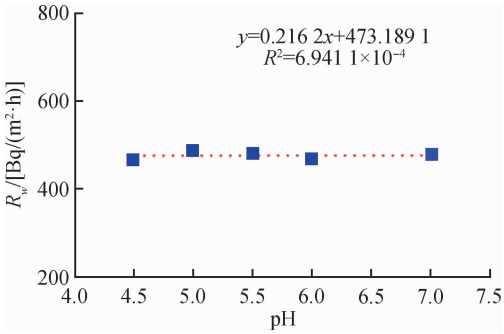


图 6 pH 与湿沉降率的关系

Fig. 6 Relationship between pH and wet deposition rate

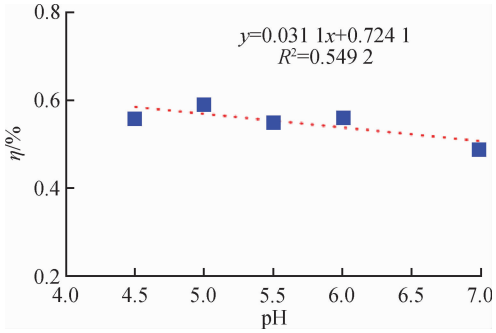


图 7 pH 与清除效率的关系

Fig. 7 Relationship between pH and removal efficiency

由图 6 和图 7 可知，在初始氡活度浓度和降水强度一定时，随着 pH 升高，湿沉降率在 460～485 Bq/(m² · h)波动，清除效率在 0.49%～0.59%波动，湿沉降率和清除效率随 pH 的变化不显著。根据分子间隙填充理论[9]40，pH 不影响水体中的分子间隙，因此氡在不同 pH 模拟降水中的溶解量基本不变，湿沉降率和清除效率与 pH 呈弱相关性。

3 模型中湿沉降参数的获取

对 Fluidyn 数值模拟软件中内嵌的湿沉降物理模型进行积分，可得到扩散浓度与湿沉降参数的关系为

$$C_1 = (C - C_3) \cdot (1 - \theta \cdot H \cdot t_1), \quad (5)$$

式中：H 为降水强度，mm/h；t_1 为降水时长，s；θ 为湿沉降参数，h/(mm · s)。

降水是影响湿沉降过程的主要因素，将所对应的试验结果依次代入式(5)计算，得到湿沉降参数随降水强度的变化趋势(图 8)。

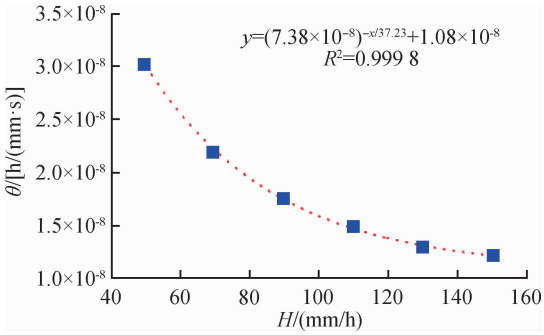


图 8 不同降水强度时的湿沉降参数

Fig. 8 Wet deposition parameters under different precipitation intensity

通过对上述试验变量进行参数拟合，可得到湿沉降参数与降水强度呈指数函数关系：

$$\begin{cases} \theta = 7.38 \times 10^{-8-\frac{H}{37.23}} + 1.08 \times 10^{-8} \\ H > 0, H \text{ 为整数} \end{cases} 。 \quad (6)$$

式(6)可用于铀尾矿释放氡的大气扩散数值模拟，根据实际气象观测的降水强度，确定相应的湿沉降参数。根据公式计算得到的湿沉降参数可与 Fluidyn 数值模拟软件中给定的参考值对应；而软件中的参考值只给出了单一值，本研究得到的公式对其在不同降雨强度下的参考值进行了补充完善。

4 结论

通过自主设计的试验装置，获取了氡沉降量及沉降速率的相关关系，明确了降水强度是影响湿沉降过程的主要因素。由试验参数拟合分析得出，湿沉降参数与降水强度呈指数函数关系。

参考文献：

[1] 张保增，马晓. 退役铀尾矿库保护性开放利用工程环境氡浓度调查研究[J]. 环境科学与管理，2021，46(6)：67-72.

[2] MCGRATH J A，BYRNE M A. An approach to predicting indoor radon concentration based on depressurisation measurements[J]. Indoor and Built Environment，2021，30(8)：1042-1050.

[3] 徐立鹏，邓晓钦，葛良全，等. 成都市城乡室内氡浓度和γ剂量率调查研究[J]. 辐射防护，2016，36(4)：224-231.

[4] VENOSO G，AMPOLLINI M，ANTIGNANI S，et al. Short-term annual variations of radon concentration in workplaces：some results in a research institute[J]. Radiation Protection Dosimetry，2020，191(2)：138-143.

[5] 王月，李学鹏，彭鸿旭，等. SO_2 湿沉降对桑树叶片的形态和其利用光能的影响[J]. 草业科学，2017，34(10)：2080-2089.

[6] 葛怡情，闫玉龙，梁艳，等. 模拟降水氮沉降对藏北高寒草甸土壤呼吸的影响[J]. 中国农业气象，2019，40(4)：214-221.

[7] 卢俊平，张晓晶，刘廷玺，等. 京蒙沙源区水库大气氮沉降变化特征及源解析[J]. 中国环境科学，2021，41(3)：1034-1044.

[8] 王攀，朱湾湾，樊瑾，等. 宁夏燃煤电厂周围降水降尘中硫氮沉降特征研究[J]. 生态环境学报，2020，29(6)：1189-1197.

[9] 代鑫涛. 铀矿冶含氡放射性水体氡的溶解与析出行为研究[D]. 衡阳：南华大学，2017.

[10] 陈翔，徐文平，李广悦，等. 氡的溶解与析出的试验研究[J]. 核技术，2010，33(6)：473-476.

[11] 姜磊. 2016—2020 年江西省酸雨特征分析[J]. 江西科学，2021，39(3)：490-494.

[12] 王祥云. 核化学与放射化学[M]. 北京：北京大学出版社，2015.

[13] 张炜，张新基. 地下水中逸出氡和溶解氡微动态特征的对比研究[J]. 中国地震，1994(2)：123-128.

[14] FU X T，WANG Z P，LU S F. Mechanisms and solubility equations of gas dissolving in water[J]. Science in China Series B-chemistry，1996，39(5)：500-508.

[15] 梁杰. 减压释放获取水中溶解氧供给呼吸的实验研究[D]. 哈尔滨：哈尔滨工业大学，2006.

Study on Wet Deposition Parameters of Radon in Numerical Simulation of Atmospheric Diffusion

WU Xuyang[1]，SONG Xianpeng[1,2]，SUN Juan[1]，LIAN Guoxi[1]，ZHANG Haoyan[1]，SHEN Hongyan[2]

(1. The Fourth Research and Design Engineering Corporation，CNNC，Shijiazhuang 050021，China；
2. School of Environmental Science and Engineering，Hebei University of Science and Technology，Shijiazhuang 050000，China)

Abstract：In the numerical simulation of atmospheric diffusion of pollutants characterized by radon，the default values of wet deposition parameters are generally adopted，which leads to the uncertainty of calculation accuracy. In order to determine the influence factors and characteristic values of radon wet deposition parameters，a self-developed experimental device was used to simulate the precipitation process，and the response relationship between initial radon activity concentration，precipitation intensity，precipitation pH and radon wet deposition rate and removal efficiency was comprehensively analyzed. The results show that the wet deposition rate of radon in atmospheric environment is linearly correlated with the initial radon activity concentration and precipitation intensity($R^2>0.99$)，while the removal efficiency is weakly correlated with the initial radon activity concentration and pH value. Therefore，taking gaseous radon as a typical object，when the wet sedimentation rate is in the range of 31～2 653 Bq/(m^2 · h)，it can be predicted that the removal efficiency of radon will remain at 0.55%～0.65%. The relationship between the final precipitation intensity and wet deposition parameters follows exponential function. The conclusion can provide parameter basis for numerical simulation of atmospheric diffusion of radon.

Key words：radon；atmospheric diffusion；simulate precipitation；wet deposition