

铀尾矿库氡析出率多点快速测量方法研究与应用

李志强¹, 肖德涛², 赵桂芝², 陈纪友¹, 周熠¹

(1. 衡阳师范学院, 衡阳 421002; 2. 南华大学, 衡阳 421001)

摘要: 基于开孔集氡室累积测氡析出率其氡的等效衰变常量近似不变的原理, 建立一种铀尾矿库表面氡析出率多点快速测量方法. 该方法是将集氡室扣在待测介质表面上, 经一定时间再将集氡室与氡析出率测量仪相连, 实现取样氡浓度计算得到待测介质表面氡析出率. 结果表明, 快速测量氡析出率的方法其测量值与南华大学氡析出率标准装置的参考值误差较小, 运用多点快速测量氡析出率的方法能够满足广区域的尾矿库表面氡析出率分布规律测量的需要.

关键词: 铀尾矿库; 氡析出率; 氡浓度; 快速测量

中图分类号: TL816.2 文献标识码: A 文章编号: 0490-6756(2018)06-1270-05

Multiple point rapid measurement method for radon exhalation rate in uranium tailings reservoir and its application

LI Zhi-Qiang¹, XIAO De-Tao², ZHAO Gui-Zhi², CHEN Ji-You¹, ZHOU Yi¹

(1. School of Physics and Electronic Engineering, Hengyang Normal University, Hengyang 421008, China;

2. School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang 421001, China)

Abstract: Based on the principle of that the equivalent decay constant of perforated accumulation chamber, we propose a new method to rapidly measure the surface radon exhalation rate with multi-point detection technique. In our method, we first place the radon accumulation chamber on the surface of the samples then collect and calculate the radon exhalation rate. After a certain time, the radon chamber is connected with the radon exhalation rate measuring monitor. Radon concentration is calculated and the radon exhalation rate is measured. The relative error of radon exhalation rate measured by us is smaller than that by the standard device of South China. Obviously, the proposed method here can meet the need to measure the radon exhalation rate distribution on the surface of tailings reservoir in a wide area. The revised method provides a feasible and believable means to measure the radon exhalation rate both rapidly and accurately.

Keywords: Uranium tailings reservoir; Radon exhalation rate; Radon concentration; Rapid measuring

1 引言

氡是一种可预防和可控制的环境因素, 对土壤和特殊环境如尾矿库表面氡析出的防护与减缓是降低周围环境氡浓度的关键和低成本的技术

措施^[1]. 氡析出率测量是铀矿冶设施退役治理中评价尾矿库防氡覆盖治理效果的关键环节, GB14586-93 规定尾矿库处置后最终氡析出率退役管理限值不超过 $0.74 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. 单点取样测量氡析出率的方式不能作为广区域决定尾矿的

收稿日期: 2018-07-09

基金项目: 湖南省自然科学基金(2018JJ2007); 湖南省教育厅项目(16A028); 衡阳师范学院产学研用项目(16CXYY05)

作者简介: 李志强(1978—), 男, 湖南衡阳人, 教授, 博士, 主要从事气载放射性测量及示踪技术研究.

通讯作者: 肖德涛. E-mail: 13307478601@189.cn

覆盖厚度的依据. 氡析出率常用的测量方法—活性炭吸附法^[2-4], 仅能较准确地测量稳定介质表面的氡析出率, 且需较长的取样时间和测量时间, 难以满足铀尾矿库变化氡析出率测量的需要. 因此, 针对铀尾矿库表面氡析出率分布不均的不同区域, 根据开孔带搅拌功能的集氡室累积测氡析出率其氡的等效衰变常量近似不变的原理, 建立一种铀尾矿库表面氡析出率多点快速测量方法. 本文介绍一种铀尾矿库氡析出率多点快速测量方法, 先对该方法的测量原理、可靠性实验验证方面进行阐述, 并运用多点快速测量方法来实现铀尾矿库表面氡析出率的分布规律测量, 为铀尾矿库的氡年释放量估算提供技术支持.

2 快速测量原理

氡析出率快速测量装置如图 1. 主要由 NRE-I 氡析出率测量仪和开孔带搅拌功能的集氡室构成. 其操作首先将体积为 $V-\Delta V$ 、底面积为 S 的侧面开小孔带搅拌功能的集氡室通过 2 根硅胶管将集氡室与测量室体积为 ΔV 的 NRE-I 氡析出率测量仪连成回路, 再将集氡室扣在待测的介质表面, 测量仪中的取样泵将集氡室与测量室内的氡混合均匀, 等周期测得集氡室内不同时刻的氡浓度, 其氡浓度随时间变化关系可用式(1)^[5-11]表示.

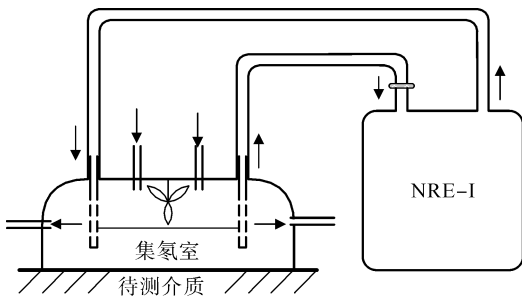


图 1 氡析出率快速测量装置

Fig. 1 Rapid measuring monitor for radon exhalation rate

$$\frac{dC}{dt} = \frac{JS}{V} - \lambda_e C \quad (1)$$

(1)式中: t 为集氡时间; C 为待测集氡室内 t 时刻的氡浓度; J 为待测介质表面的氡析出率; λ_e 为氡的等效衰变常量(氡的衰变常量和泄漏和反扩散率之和), 式(1)的解为:

$$C(t) = \frac{JS}{V\lambda_e}(1 - e^{-\lambda_e t}) + C_0 e^{-\lambda_e t} \approx \frac{JS}{V\lambda_e}(1 - e^{-\lambda_e t}) \quad (2)$$

相邻周期的氡浓度关系可化为:

$$C_{i+1} = \frac{JS}{V\lambda_e}(1 - e^{-\lambda_e t}) + C_i e^{-\lambda_e t} \quad (3)$$

令 $A = \frac{JS}{V\lambda_e}(1 - e^{-\lambda_e t})$, $B = e^{-\lambda_e t}$, 多次测量后, 运用最小二乘法计算出^[10]:

$$J = -V \frac{\sum_{i=1}^n C_{i+1} (\sum_{i=1}^n C_i^2) - \sum_{i=1}^n C_i (\sum_{i=1}^n C_i C_{i+1})}{n \sum_{i=1}^n C_i^2 - (\sum_{i=1}^n C_i)^2} \cdot \ln \frac{n(\sum_{i=1}^n C_i C_{i+1}) - \sum_{i=1}^n C_i (\sum_{i=1}^n C_{i+1})}{n \sum_{i=1}^n C_i^2 - (\sum_{i=1}^n C_i)^2} \quad (4)$$

$$\lambda_e = -\ln \frac{n(\sum_{i=1}^n C_i C_{i+1}) - \sum_{i=1}^n C_i (\sum_{i=1}^n C_{i+1})}{T \cdot n \sum_{i=1}^n C_i^2 - (\sum_{i=1}^n C_i)^2} \quad (5)$$

最小二乘法原理表明测量次数越多其误差越小. 根据公式(5)即可得到氡的等效衰变常量 λ_e 的值. (3)式中当 $e^{-\lambda_e t} = 0.05$ 时, 即集氡室内的氡累积个定时间 $t > \frac{\ln 500}{\lambda_e}$ 后, 集氡室内的氡浓度增加较为缓慢, (3)式可简化为:

$$C_{i+1} \approx \frac{J_{i+1} S}{V\lambda_e} \quad (6)$$

由(6)式可得:

$$J_{i+1} \approx \frac{C_{i+1} V\lambda_e}{S} \quad (7)$$

当集氡时间 $t > \ln 500/\lambda_e$ 时, 氡析出率可由测量的氡浓度直接计算得到. 开孔带搅拌功能的集氡室其泄漏和反扩散率 R 较大且可控, 氡的等效衰变常量 λ_e 主要由 R 决定, 运用公式(7)仅需单次测量氡浓度即可获得氡析出率, 氡析出率快速测量公式为:

$$J \approx \frac{CV\lambda_e}{S} \quad (8)$$

(8)式中, 待测介质的特点测量时, 在相同的测量条件下, 集氡室体积 V 和集氡室底面积 S , 氡析出率 J 为常量, λ_e 越大集氡时间 t 越快达到 $e^{-\lambda_e t}$, 同样氡浓度 C 和氡的等效衰变常量 λ_e 成反比关系, λ_e 越大其测量的氡浓度 C 必然会较小, 在待测介质表面析出率较小时, 测量氡浓度 C 时其计数值就会更小, 测量结果统计涨落较大, 会存在较大的

误差,铀尾矿库表面的氡析出率值较大,采用集氡室开孔快速测量氡析出率时集氡室的氡等效衰变常量 λ_c 为 10^{-3} 数量级,对测量结果的影响可以忽略不计,能够满足铀尾矿库表面氡析出率测量的需要。

3 结果与分析

为验证铀尾矿库表面多点氡析出率快速测量方法的可行性及其测量结果的可靠性,其可行性测试和可靠性测试均在南华大学氡室的氡析出率标准参考装置上进行,现场应用测试选取衡阳某尾矿库。

3.1 快速测量方法的可行性测试

南华大学研制的 NRE-I 氡析出率测量仪能够准确测量待测介质表面的氡析出率。氡析出率自动测量装置的总体积 V 为 0.0057 m^3 ,集氡室底面积 S 为 0.066 m^2 ,测量周期为 15 min 。相关研究结果表明集氡室与待测介质表面的密封程度不影响氡析出率的可靠测量^[12-13]。集氡室与待测介

质表面密封程度关系研究实验装置如图 2 所示,其中 a、b、c 三种不同的结构能够模拟集氡室与待测介质表面 3 种不同密封程度,其实验测试的氡浓度和氡析出率的结果如图 3 所示。其结果表明,集氡室与待测介质表面的密封程度不同,相同累积时间的氡浓度差别较大,但氡析出率的偏差却很小,表明引入了泄漏和反扩散率参数 R 后能够消除泄漏和反扩散对氡析出率测量的影响。图 3 结果显示泄漏和反扩散率 R 越大,集氡室内的氡浓度越快接近其累积的最大氡浓度。采用开孔带搅拌功能的集氡室经过 1 个测量周期集氡,其集氡室内的氡浓度接近累积最大值,其集氡室的等效衰变常量 $\lambda_c = 1.37 \times 10^{-3}\text{ s}^{-1}$,即开孔带搅拌功能的集氡室扣在待测介质表面 15 min 后,用硅胶管与测量仪相连进行取样并完成氡浓度的测量,实现氡析出的快速可靠测量。

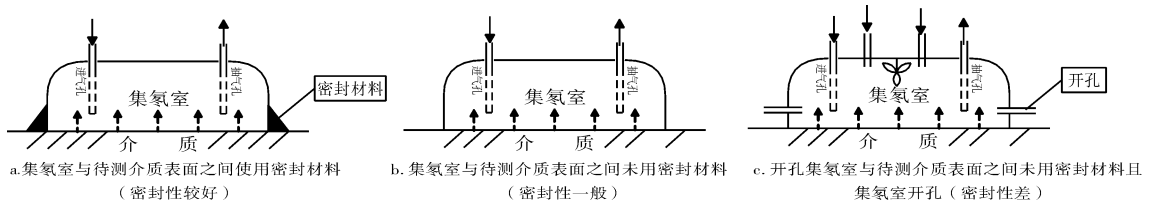


图 2 集氡室与待测介质表面密封程度关系

Fig. 2 Relationship between the sealing degree of the radon chamber and the surface of the medium to be measured

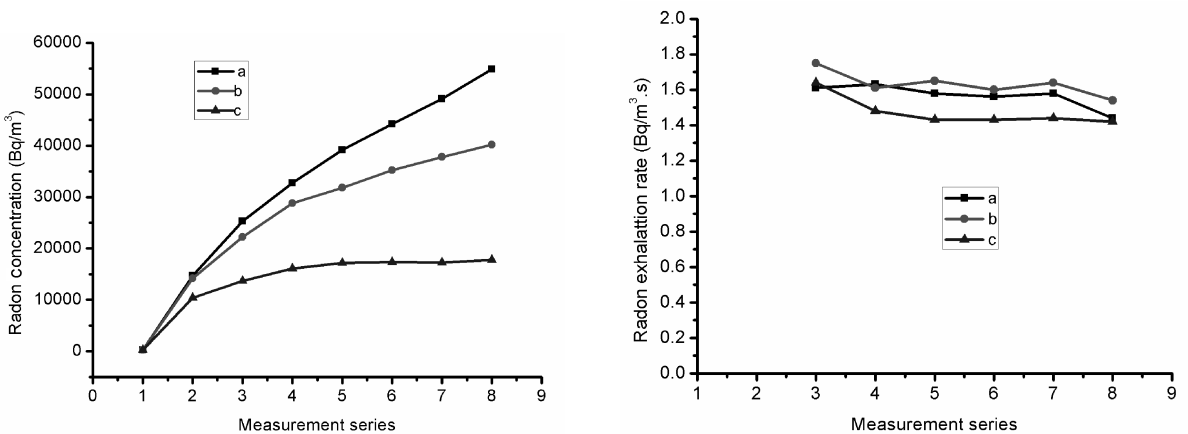


图 3 不同密封条件下测量的氡浓度与氡析出率

Fig. 3 The relationship between radon and radon exhalation rate

3.2 快速测量方法的可靠性测试

利用开孔带搅拌功能的集氡室实现铀尾矿库表面多点氡析出率快速测量方法的可靠性测试实验在南华大学氡析出率 1~3 号标准装置上开展。先将开小孔带搅拌功能的集氡室扣在氡析出率 1 号标准装置上,经 15 min 后用硅胶管将氡析出率

测量仪与集氡室相连,开启测量仪混气 5 min 完成取样, 10 min 完成氡浓度的测量即可计算出氡析出率值。重复上述操作在氡析出率 2 号和 3 号标准装置上测试。可靠性测试的结果如表 1 所示。

可靠性测试结果表明,该快速测量方法 15 min 内的测量误差在 6% 以内,完全能够满足铀尾矿不

表1 氡析出率标准装置快速测量结果

Tab. 1 Result of rapid measurement of radon exhalation rate in standard facility

标准装置	氡浓度 (Bq·m ⁻³)	氡析出率测量值 (Bq·m ⁻² ·s ⁻¹)	参考值 (Bq·m ⁻² ·s ⁻¹)	误差(%)
1号	12 086	1.43	1.48	-3.38
2号	22 650	2.68	2.62	2.29
3号	3465	0.41	0.39	5.12%

同区域多点氡析出率快速测量的需要。

3.3 现场实验验证

现场氡析出率测量选取衡阳某尾矿库,选定的尾砂区域测点和粘土区域测点测量,尾砂区域编号为1-14号,特殊点(草地)为15号和16号,处置后的粘土区域编号为17~21号,20号为草地,21号为灌木^[4]。测量时间为2015年5月12日。测量结果与活性炭盒测量的参考值如表2所示。

表2 铀尾矿库氡析出率快速测量结果

Tab. 2 The result of rapid measurement of radon exhalation rate in uranium tailings

测试点	氡浓度 (Bq·m ⁻³)	氡析出率测量值 (Bq·m ⁻² ·s ⁻¹)	活性炭盒测量 (参考值) (Bq·m ⁻² ·s ⁻¹)	误差(%)
1	11 833	1.40	1.42	-1.41
2	12 593	1.49	1.52	-1.97
3	33 131	3.92	3.61	8.59
4	45 808	5.42	5.19	4.43
5	9212	1.09	1.11	-1.80
6	5409	0.64	0.59	8.47
7	8620	1.02	0.95	7.37
8	19 270	2.28	2.15	6.05
9	22 735	2.69	2.55	5.49
10	30 849	3.65	3.33	9.61
11	30 933	3.66	3.47	5.47
12	22 143	2.62	2.38	10.09
13	13 607	1.71	1.44	11.80
14	13 100	1.55	1.47	5.44
15(草地)	13 269	1.57	1.48	6.08
16(草地)	22 228	2.63	2.41	9.13
17	1183	0.14	0.16	-12.50
18	1690	0.2	0.18	11.11
19	4394	0.52	0.49	6.12
20(草地)	2873	0.34	0.29	17.24
21(灌木)	5747	0.68	0.62	3.23

表2表明铀尾矿库表面氡析出率随区域的不同而分布不均,单点测量的氡析出率值不能代表广

区域铀尾矿库表面氡析出率的平均值,未治理区和治理区氡析出率相差较大;15 min的快速测量方法相对于24 h取样的活性炭盒测量的结果误差最大为18%,测量误差较大的测量点为氡析出率值小的测量点,其主要原因是由短时间内计数值低统计涨落造成的。表2数据显示利用开孔集氡室快速测量氡析出率的方法能够实现铀尾矿不同区域多点氡析出率快速测量需要。运用多点快速测量氡析出率来准确估算区域平均氡析出率,为研究铀尾矿库表面氡析出率的分布规律提供技术保障。

4 结论

利用开孔带搅拌功能的集氡室累积测氡析出率其氡的等效衰变常量近似不变的原理,建立一种铀尾矿库表面氡析出率多点快速测量方法。该快速测量方法在氡析出率标准装置验证结果与参考值误差较小,表明该快速测量方法能够满足铀尾矿库现场氡析出率快速测量需要;并运用多点快速测量方法来实现铀尾矿库表面氡析出率的分布规律测量,为铀尾矿库的氡年释放量估算提供技术支持。

参考文献:

- [1] 潘自强. 我国国民所受辐射照射增加的主要来源矿业和能源开发引起的天然辐射的增加[C]//中国辐射防护学会. 中国辐射防护年会会议论文集. [S. l.]: [s. n.], 2016.
- [2] Paewpanchon P, Chanyotha S. Development of the charcoal adsorption technique for determination of radon content in natural gas [J]. Radiat Prot Dosim, 2017, 177: 40.
- [3] Lee J, Chun J, Kim Y. Composite having metal fluoride and porous carbon, method for preparing the same, and lithium ion battery comprising the same: U. S. Patent Application 14/934, 273 [P]. 2016-5-12.
- [4] 肖高平,肖德涛,吕丽丹,等. 氡析出率测量的活性炭采样装置研究[J]. 核电子学与探测技术, 2015, 35: 1119.
- [5] Hosoda M, Ishikawa T, Sorimachi A, et al. Development and application of a continuous measurement system for radon exhalation rate [J]. Rev Sci Instrum, 2011, 82: 015101.
- [6] Zhang L, Guo Q, Sun K. Continuous measurement of radon exhalation rate of soil in Beijing [J]. J Radioanal Nucl Ch, 2015, 303: 1623.
- [7] Tan Y L, Xiao D T. A simple model for automati-

- cally measuring radon exhalation rate from medium surface [J]. *Radiat Meas*, 2014, 64: 44.
- [8] Tan Y L, Xiao D T, Liu X S, *et al.* Measuring radon exhalation rate by tracing the radon concentration of ventilation-type accumulation chamber [J]. *Radiat Meas*, 2013, 58: 33.
- [9] Tan Y L, Tokonami S, Hosoda M. On the calibration of a radon exhalation monitor based on the electrostatic collection method and accumulation chamber [J]. *J Environ Radioactiv*, 2015, 144: 9.
- [10] 李志强, 肖德涛, 赵桂芝, 等. 便携式氡析出率自动测量仪研究[J]. *原子能科学技术*, 2016, 50: 357.
- [11] Li Z Q, Xiao D T, Zhao G Z, *et al.* Rapid determination of radon monitor's calibration factors [J]. *Nucl Sc Tech*, 2016, 27: 188.
- [12] 李志强, 肖德涛, 赵桂芝, 等. 氡析出率快速测量的不确定度评定[J]. *核技术*, 2017, 40: 1.
- [13] 李志强, 肖德涛, 赵桂芝, 等. 泄露和反扩散对氡析出率测量的影响研究[J]. *核电子学与探测技术*, 2015, 35: 1255.

引用本文格式:

中文: 李志强, 肖德涛, 赵桂芝, 等. 铀尾矿库氡析出率多点快速测量方法研究与应用[J]. *四川大学学报: 自然科学版*, 2018, 55: 1270.

英文: Li Z Q, Xiao D T, Zhao G Z, *et al.* Multiple point rapid measurement method for radon exhalation rate in uranium tailings reservoir and its application [J]. *J Sichuan Univ: Nat Sci Ed*, 2018, 55: 1270.