

文章编号: 1007-4627(2016)01-0112-05

大气降雨俘获空气中短寿命氡子体实验研究

赖二平¹, 乐仁昌¹, 张鑫煌¹, 高志滨², 何志杰¹, 陈健梯¹

(1. 福建师范大学物理与能源学院, 福州 350117;

2. 漳州城市职业学院电子信息工程系, 福建 漳州 363000)

摘要: 为了研究降雨对空气中短寿命氡子体的清洗机制, 设计了分别模拟大气降雨的水汽凝结过程和雨粒下降过程的两个实验装置, 并进行了多次实验, 实验水样采用低本底 γ 能谱仪进行测量。实验结果表明: 凝结水的短寿命放射性计数与本底相近, 说明水汽凝结不能俘获短寿命氡子体。某一次自来水冲刷空气后获得了高出本底30.9%的初始 γ 计数, 其半衰期为35.7 min, 纯净水冲刷空气后获得了高出本底19.6%的初始 γ 计数, 这些计数主要是由氡子体 ^{214}Pb 和 ^{214}Bi 引起的。可见, 无论是自来水还是纯净水, 它们冲刷空气后都能俘获短寿命氡子体, 且半衰期和放射性核素种类均与雨水相似。这一实验结果充分说明: 大气降雨的短寿命放射性不是在水汽凝结阶段而是在降落阶段对空气的冲刷获得的, 是在降落过程中俘获了空气中的短寿命氡子体 ^{214}Pb 和 ^{214}Bi 而引起的。本次实验结果为降雨对空气中短寿命氡子体的冲刷清洗机制提供了最有利的证据。

关键词: 降雨; 短寿命氡子体; 氡; 冲刷

中图分类号: TL72 **文献标志码:** A **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.33.01.112

1 引言

^{214}Pb 和 ^{214}Bi 是氡衰变后的产物, 其产生的 γ 射线约占整个铀系的98%, 故认为对雨水进行测量时的 γ 计数主要由 ^{214}Pb 和 ^{214}Bi 所引起。由于大气中氡气不断衰减产生新的氡子体以及氡子体本身的衰减, 使得降雨对大气中放射性氡子体的清洗规律与降雨对气溶胶或其它非放射性颗粒物的清洗规律明显不同。在国内外, 人们很早就发现了雨水具有放射性(主要短寿命氡子体), 并且对雨水中短寿命氡子体浓度与空气中氡子体浓度、降雨量、降雨速度、降雨持续时间、两次降雨时间间隔等之间的关系进行了大量的研究, 并持续至今^[1-10], 结果表明, 雨水中短寿命氡子体浓度与空气中氡子体浓度、降雨量、降雨持续时间、两次降雨时间间隔、降雨的前后段等无关, 与降雨速度呈负相关关系。对于雨水中短寿命氡子体的来源问题, 较为普遍的观点有两个: 第一个是雨水形成时水汽凝结对空气中氡子体的收集浓缩; 第二个是雨水降落时对空气中氡子体的冲刷粘滞(包含对云层中氡子体和云层下方氡子体的冲刷两方面)。然而, 针对第二个来源中对云

层下方氡子体的冲刷这一观点, 则存在较大争议, 因为这一观点与观测结果“雨水中短寿命氡子体浓度与空气中氡子体浓度、降雨量、降雨持续时间、两次降雨时间间隔、降雨的前后段等无关”相矛盾。为了解决这个矛盾, Bhandari^[11]和Fujinami提出^[12-13]: 雨水中的氡子体并不是来自于雨水降落过程中对云层下空气的冲刷(Washout), 而是主要来自于雨水在形成过程中对云层中氡子体的清洗(Rainout)。Mercier等^[14]认为: 降水氡子体与降雨云团的来源和形成时间(历史)紧密相关, 气团运动路径可以很好地预测云团氡浓度。Mercier等的研究意味着“氡是在降雨前就已经进入云团”。国内的一些专家学者认为^[15-16]: 雨水下落过程中对空气中的氡及其子体的冲刷是雨水中短寿命氡子体的来源。

可见, 对于雨水中短寿命氡子体何时进入雨水, 不仅存在争议, 更重要的是缺乏实验验证。本文拟通过模拟实验研究降雨对空气中短寿命氡子体的清洗机制, 查清雨水中短寿命放射性的来源, 纠正人类对这一自然现象的模糊认识, 为研究降雨对其它天然核素以及大气污染物的清洗机制提供参考。

收稿日期: 2015-05-18; 修改日期: 2015-06-17

基金项目: 国家自然科学基金项目(10575022); 福建省自然科学基金项目(2012J01004)

作者简介: 赖二平(1989-), 男, 福建三明人, 硕士研究生, 从事粒子物理与原子核物理核探测技术研究; E-mail: 707901370@qq.com

通信作者: 乐仁昌, E-mail: lrc@fjnu.edu.cn.

2 材料与方法

2.1 汽凝结实验装置与方法

水汽凝结实验装置采用合肥美菱环保设备技术有限公司生产的SJ-60电脑型除湿机,其空气循环系统如图1所示。除湿机由压缩机、热交换器、风扇、盛水器、机壳及控制器组成,其工作原理是:由风扇将潮湿空气抽入机内,通过热交换器,此时空气中的水份冷凝成水珠,最后由内置水箱收集所产生的凝结水。

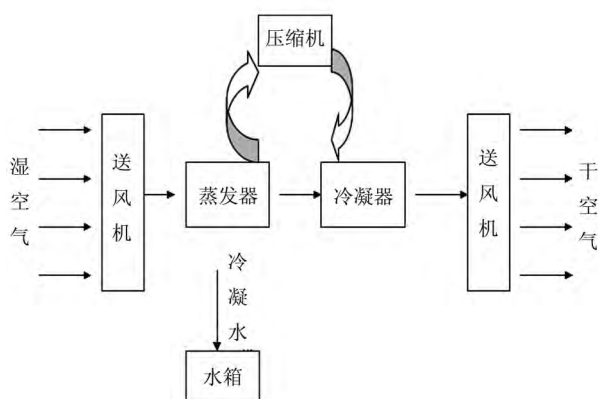


图1 水汽凝结装置示意图

为了保证在短时间(30 min以内)收集到足够的凝结水(200 g),需要选择空气湿度大于60%的时间段进行实验。实验方法:首先将内置水箱清空,然后启动除湿机,过一段时间后,从水箱中取凝结水样200 g,测定其 γ 能谱计数,同时测量等量的本底水(自来水)的 γ 能谱计数,测量时间300 s,连续测量3次,取平均值(考虑到冲刷实验将水送至检测室的时间,约2 min,凝结水实验也将在收集完毕2 min后开始测量)。

2.2 降雨冲刷实验装置与方法

实际的降雨高度一般都在千米级,要使实验用水从千米高度降落,水的收集比较困难。一种可行的解决方案是使实验用水循环降落,实验装置如图2所示。抽水泵(香港黑猫集团有限公司生产)的功率为1.6 kW,型号为XM-380,工作时流量为9.6 L/min;集水器是由防雨布制作而成的“锅”型装置,可集水面积约30 m²;雨粒发生器为一喷头,它能够将水流转化为细小的水粒。

拟通过以下两个实验来检测“干净”水冲刷空气后所获得的短寿命放射性。

(1)“干净”水冲刷空气后放射性衰减实验:首先取200 mL的自来水进行本底测量,然后取约10 L的自来水装入集水器中,启动抽水泵,使自来水连续冲刷空

气约30 min,此时自来水在空气中冲刷的总距离约450 m,取200 mL水样约两分钟后进行连续测量,测量时间300 s(实验时间:2013年12月6日,气温15℃,晴天,无风)。

(2)“干净”水冲刷空气后放射性能谱分析实验:文献[1]表明自来水等有微量的放射性,其本底高于纯净水(实验过程中两者本底差值在仪器测量误差范围内,后续不加以讨论)。首先取200 mL的纯净水进行本底测量,然后取约4 L的纯净水装入集水器中,启动抽水泵,使纯净水连续冲刷空气约15 min,此时纯净水在空气中冲刷的总距离约350 m,取200 mL水样约2 min后进行测量。(实验时间:2013年12月11日,气温15℃,阴天,无风)。

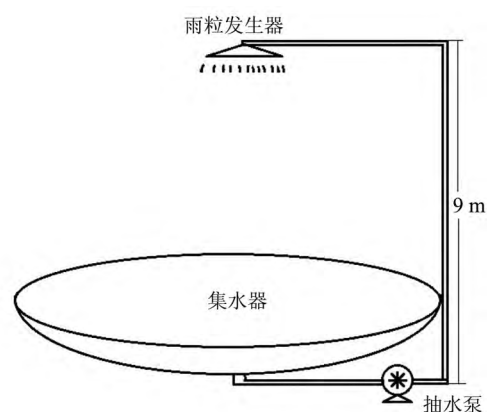


图2 模拟降雨实验装置

2.3 测量系统

实验中,水的放射性测量采用BH1936低本底多道伽玛能谱仪(北京核仪器厂),装水样品盒为圆柱形塑料盒,体积约200 mL;测量时,样品用铅室屏蔽以降低环境本底;测量系统统计误差为 $\pm 2.2\%$ 。

实验中采用总计数作为样品的放射性计数,总计数的能量峰的取值范围是4~2841 keV(即能谱仪的2~1022道之间的总计数)。

3 结果与分析

我们进行了多次水汽凝结短寿命放射性测量实验,收集时间控制在30 min,结果如表1所示。

可以看出,凝结水的短寿命放射性计数与本底水相近,与雨水的短寿命放射性计数(平均高出本底12%)相去甚远^[1]。但实验与雨滴形成时的水汽凝结存在一定的差别,因此在现有的实验条件及数据下无法明确判断降雨过程的水汽凝结阶段是否能够俘获空气中的氡子体。

表 1 空气中水汽凝结短寿命放射性实验结果

时间	气象条件	室内氡浓度/(Bq/m ³)	凝结水总计数	本底水总计数	增加幅度(%)
2015-12-22	室内, 阵雨, 温度15 °C, 湿度75%	20.9	1 196.7	1 174.7	1.87
2015-12-22	室内, 阵雨, 温度15 °C, 湿度74%	20.9	1 185.7	1 225.3	-3.23
2015-12-22	室内, 阵雨, 温度15.2 °C, 湿度78%	20.9	1 144.0	1 142.7	0.11
2015-12-22	室内, 阵雨, 温度15.5 °C, 湿度75%	20.9	1 183.3	1 153.3	2.60
2015-12-22	室内, 阵雨, 温度16 °C, 湿度74%	20.9	1 139.0	1 165.7	-2.29

²²²Rn 在大气中衰变产生 ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi 以及其它子体, 当子体形成后迅速地附着在空气中亚微米级气溶胶微粒上并开始环境生物地球化学运移^[17-19], 降雨过程中雨滴将附着有氡子体 (²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi) 的气溶胶冲刷至地面, 致使雨水带有放射性。

“干净”自来水冲刷空气后放射性衰减实验结果如图 3 所示。

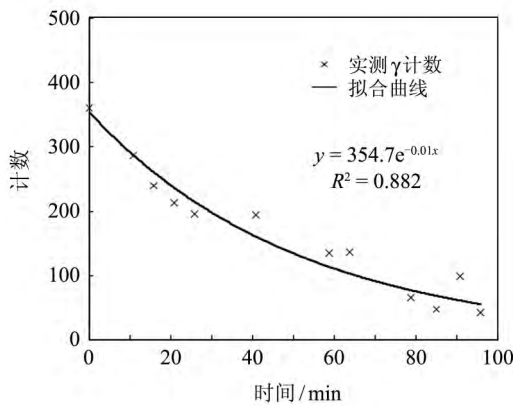


图 3 冲刷空气后自来水放射性衰减曲线

可以看出, 自来水经过约 30 min 的循环冲刷后, 300 s 测量所获得的初始 γ 能谱净计数为 359, 高出冲刷前的计数(即本底计数: 1 161)30.9%。其余几次实验取 8.5 L 自来水冲刷空气 30 min, 总冲刷距离约 530 m, 所得计数分别高出本底 25.9%, 18.5%, 16.3% 和 15.7%。可见, “干净”自来水冲刷空气能够有效俘获空气中的放射性物质, 但受实验环境影响而波动较大, 最大达 15.2%。冲刷空气后的自来水的 γ 能谱总计数随时间快速衰减, 约 90 min 后接近本底。采用最小二乘法对衰减曲线进行拟合, 可以得到其衰减常数为 0.0194 min^{-1} , 半衰期为 35.7 min, 与实测雨水的半衰期(变化范围为 24~60 min)^[8]一致。

“干净”纯净水冲刷空气后放射性能谱分析实验结果如图 4 所示。图中灰色部分表示纯净水的能谱, 灰色部分与黑色部分叠加后为纯净水冲刷空气后的能谱, 黑色部分表示冲刷空气后的纯净水 γ 能谱总计数相较

未冲刷前的纯净水 γ 能谱总计数增加量。纯净水经过约 15 min 的循环冲刷后, 测量 1 h 所获得的初始 γ 能谱总计数为 16 534, 高出冲刷前的计数(即本底计数: 13 825)19.6%。随后几次实验中取 4 L 纯净水冲刷空气 15 min, 总冲刷距离约 350 m, 测量时间 300 s, 高出本底计数分别为 21.8%, 9.56%, 11.9% 和 7.58%。图中黑色部分代表纯净水冲刷空气后 γ 能谱总计数增加部分, 每道黑色部分面积越大, 表示发射该能量 γ 射线的核素活度越大。可以看出, 冲刷空气后的纯净水在能量为 295, 352 和 609 keV 的地方出现明显的能量峰, 这是由核素 ²¹⁴Pb 和 ²¹⁴Bi 引起的, 实际冲刷过程中应该同时俘获了氡气及氡子体, 测量出的 γ 能谱既含有氡子体 ²¹⁴Pb 和 ²¹⁴Bi 的 γ 射线, 也该含有氡本身衰变的 0.51 MeV 的 γ 射线(每次衰变产生 0.076% 个), 但氡的半衰期(3.8 d) 远大于氡子体 ²¹⁴Pb 和 ²¹⁴Bi 的半衰期(26.8 和 19.9 min), 因此在测量时间里, 氡衰变产生的 0.51 MeV 的射线计数远小于氡子体 ²¹⁴Pb 和 ²¹⁴Bi 的 γ 射线的计数, 根据自来水冲刷空气后放射性衰减曲线图 3 可知, 其等效半衰期为 35.7 min, 明显与 ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi 相继衰变的等效半衰期一致, 说明冲刷空气后的纯净水俘获了空气中的氡子体 ²¹⁴Pb 和 ²¹⁴Bi。图 5 是某次实际测量得到的雨水中放射性能谱, 可以看出, 该能谱图的特征峰分布与图 4 很相似, 说明两种水所含放射性核素成分相同或相近。

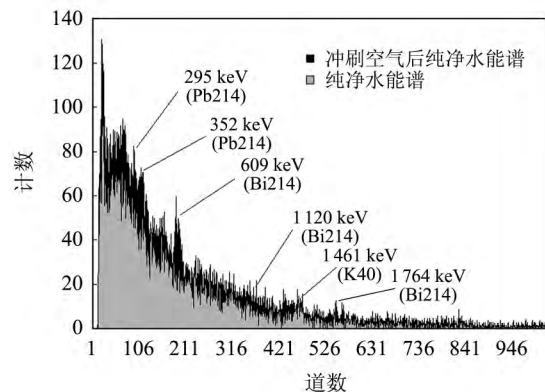


图 4 纯净水冲刷空气后放射性能谱图

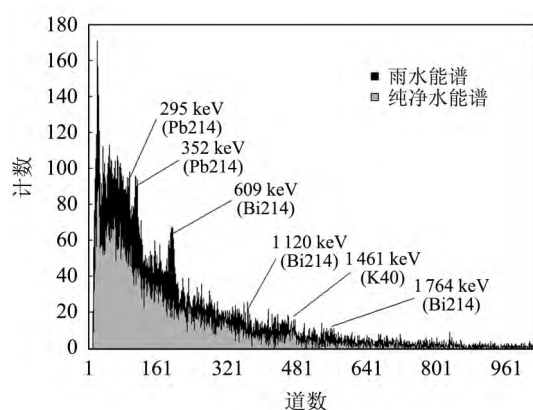


图 5 实测雨水放射性能谱图

将纯净水和自来水冲刷实验所得净计数结果换算成 3600 s 的测量计数, 自来水净总计数分别为 2773, 2257, 1616, 1450 和 1424, 每米冲刷获得的计数变化范围为 2.68 ~ 6.16, 平均为 3.78 计数/m。纯净水净总计数分别为 1923, 865, 1066, 703 和 2709, 每米冲刷获得的计数在 2.01 ~ 7.74 范围内波动, 平均每米获得 4.15 计数, 两者均值相差 0.37 计数/m。考虑到实验的时间不同, 其外部因素必定存在差异, 且冲刷实验过程中水有部分的流失, 无法得到精确的冲刷距离, 故此 0.37 计数/m 的差别无法有效地比较两者的区别。

4 结论

本次实验表明: 无论是自来水还是纯净水, 它们冲刷空气后都能获得短寿命放射性, 且半衰期和放射性核素种类均与雨水相似。这一实验结果充分说明: 大气降雨中的水汽凝结阶段能否获得短寿命放射性尚无定论, 但在对空气冲刷的降落阶段是明确的, 是在降落过程中俘获了空气中的短寿命氡子体 ^{214}Pb 和 ^{214}Bi 而引起的。该结论显然与 Bhandari 等^[11]和 Fujinami^[12]的研究结果相矛盾, Bhandari 和 Fujinami 的研究结果是基于对降雨放射性的观测结果推导出来, 是间接证据。本文的结论是基于模拟实验结果, 是直接证据, 因而更有说服力。

至于此结论与一些研究者的观测推导结果相矛盾问题, 矛盾的关键在于降雨带走了空气中的氡子体, 必定会使空气中氡子体浓度下降, 从而使得雨水中短寿命氡子体浓度“应该”与空气中氡子体浓度、降雨量、降雨持续时间、两次降雨时间间隔、降雨的前后段等有关。一种可能的解释是: 降雨加快了上下空气的对流, 使得高层空气中的氡子体快速补充到降雨区; 另外, 降雨往往伴有水平方向的空气对流(即风), 使得降雨区外空气

中的氡子体也会快速补充到降雨区, 尤其是降雨区比较小时, 这种补充效果更为显著。居于这些原因, 降雨时就很难观测到氡子体的明显变化。

参考文献:

- [1] LE Renchang. Chinese Journal of Nature, 2001, **23**(4): 203. (in Chinese)
(乐仁昌. 自然杂志. 2001, **23**(4): 203.)
- [2] FUJINAMI N, Esaka S, Minato S. J Radioanal Nucl Chem Lett, 1985, **95**(2): 111.
- [3] FUJINAMI N, ESAKA S, MINATO S. Nucl Geophys, 1993, **7**: 359.
- [4] MINATO S. J Radioanal Chem, 1983, **78**: 199.
- [5] RANGARAJAN C, EAPEN C D. J Geophys Res, 1985, **90**(D5): 8155.
- [6] TAKEYASU M, IIDA T, TSUJIMOTO T, *et al.* Measurements of Concentrations and its Ratio of Radon Decay Products in Rainwater by Gamma-ray Spectrometry with a Low Background Germanium Detector[C]. International Congress Series, 2005, **1276**: 289.
- [7] MASANORI Takeyasu, TAKAO IIDA, TADASHI TSUJIMOTO, *et al.* Journal of Environmental Radioactivity, 2006, **88**(1): 74.
- [8] LE Renchang, JIA Wenyi, FANG Fang, *et al.* Nuclear Techniques, 2001, **24**(6): 503. (in Chinese)
(乐仁昌, 贾文懿, 方方, 等. 核技术, 2001, **24**(6): 503.)
- [9] GUSEV A A, MARTIN I M, ALVES M A, *et al.* Modeling Earth Systems & Environment, 2015, **1**(3): 1.
- [10] GOMES M P, MARTIN I M, ALVES M A, *et al.* International Journal of Environment Ecology Family & Urban Studies, 2014, **4**(1): 119.
- [11] FUJINAMI N. Envir International, 1996, **22**(Suppl. 1): 181.
- [12] BHANDARI N, RAMA J J. Geophys Res, 1963, **68**: 3823.
- [13] FUJINAMI N. Japanese Journal of Health Physics, 2009, **44**: 89.
- [14] MERCIER J F, TRACY B L, AMOURS R D, *et al.* Journal of Environmental Radioactivity, 2009, **100**: 527.
- [15] HONG Jinquan, LE Renchang, HE Zhijie, *et al.* Journal of Fuqing Branch of Fujian Normal University, 2009(5): 22. (in Chinese)
(洪锦泉, 乐仁昌, 何志杰, 等. 福建师范大学福清分校学报, 2009(5): 22.)
- [16] XU Zhe. Influence of Atmospheric Rainfall to the γ Radiation Kerma Rate in Surface Air[D]. Suzhou: Soochow University, 2009: 19.
(许哲. 大气降雨对环境地表 γ 空气比释动能率测量影响规律的研究[D]. 苏州: 苏州大学, 2009: 19.)
- [17] GILLETTE D A, BLIFFORD I H, FENSTERC R. Journal of Applied Meteorology, 1972, **11**: 977.
- [18] APPLEBY P G, OLDFIELD F. Catena, 1978, **5**: 1.
- [19] GRAUSTEINW C, TUREKIAN K. Agricultural and Forest Meteorol, 1989, **47**: 199.

An Experimental Investigation on the Rainfall-Trapping of Short-lived Radon Daughters in the Atmosphere

LAI Erping¹, LE Renchang¹, ZHANG Xinhuang¹, GAO Zhibin², HE Zhijie¹, CHEN Jiandi¹

(1. College of Physics and Energy, Fujian Normal University, Fuzhou 350117, China;

2. Electronic and Information Engineering, Zhangzhou City Vocational College, Zhangzhou 363000, Fujian, China)

Abstract: To investigate the underpinning mechanism of rainfall-scavenging of the atmospheric short-lived radon daughters, two experiments simulating water vapor condensing procedure and raindrop falling procedure were conducted. The radioactivity of the tested water was measured by low-background γ spectrometry. The obtained results showed that the γ -ray counts of condensed water was on the same level as the background, which proved that water vapor condensation cannot trap short-lived radon daughters. In contrast, the initial γ -ray count of washout water (35.7 min half-life) was increased by 30.9% after washing the atmosphere with tap water. Similarly, the initial γ -ray count of washout water was increased by 19.6% after washing the atmosphere with purified water. These counts originated mainly from radon daughters ^{214}Pb and ^{214}Bi . Obviously, both tap water and purified water can trap short-lived radon daughters when washing the atmosphere. Furthermore, the half-life and the kinds of radioactive nuclides in the washout water are similar to that in the rainfall water. These experimental results are able to ascertain that short-lived radon daughters in precipitation come mainly from scavenging (washout) and not from water vapor condensation within the cloud. It is in the process of falling that raindrops trapped short-lived radon daughters ^{214}Pb and ^{214}Bi . The obtained results as demonstrated here provide a powerful evidence for understanding the washout mechanism of short-lived radon daughters from the atmosphere by rainfall.

Key words: precipitation; short-lived radon daughter; radon; washout

Received date: 18 May 2015; **Revised date:** 17 Jun. 2015

Foundation item: National Natural Science Foundation of China (10575022); Natural Science Foundation of Fujian province of China (2012J01004)

Corresponding author: LE Renchang, E-mail: lrc@fjnu.edu.cn.