

理想条件下氢及其子体运移新理论及其运移方程 *

乐仁昌¹⁾ 贾文懿²⁾ 吴允平¹⁾

¹⁾(福建师范大学物理系,福州 350007)

²⁾(成都理工大学核工系,成都 610059)

(2002 年 12 月 27 日收到 2003 年 1 月 29 日收到修改稿)

论述了氢及其子体运移的新理论,认为氢及其子体在垂直方向的运移机理是氢及其子体经 α 衰变所放出的 α 粒子减速后,将成为 He 核,He 核可与氢及其子体形成团簇,当团簇在介质中所受的浮力大于其重量时,团簇便能自行向上运移,否则团簇就向下运移.在此理论基础上建立了氢运移理论分布方程,并对运移方程进行了验证.

关键词: 团簇, 氢运移, 运移方程

PACC : 3640, 2390

1. 引言

自氢被发现以来,氢气的释放和运移就是研究内容之一.最早由 Fligge 和 Zimens(1939 年)提出氢运移是扩散引起的.它是建立在 Fick 定理基础上用于解释氢气运移的一种理论,至今仍被认为是氢运移的重要机理.随着氢气测量的广泛应用与深入研究,人们发现只用扩散理论是不能解释所观测到的众多现象的.为此,各领域又提出了其他一些假说^[1-3],主要有对流作用、地下水的作用、潮汐作用、抽吸作用、伴生气体的拖曳作用、渗流作用、地热作用、地应力作用等等,这些氢气运移的假说,均是就外部环境对氢气运移所起的作用进行研究的,而从内部条件或机理上来讨论研究多未涉及,因此很难认识氢运移的内在机理或原因.

2. 氢及其子体运移新理论

在理想条件下,氢及其子体的比重均比空气大,却具有明显向上运移能力,存在一种比扩散和重力沉降大得多的“上浮”运移机理^[3-7],这是目前已有理论所不能解释的.

团簇是指一个以上的原子或分子的集合体,是由分子或原子过渡到对应的宏观物质之间的过渡物

质形式.金属团簇大小一般在几十个原子以上,主要呈球状结构^[8,9].惰性气体包括氦气也能形成团簇,惰性气体组成的团簇,其间作用力较弱,主要借助 van der Waals 力维持,团簇可大可小,就⁴He 而言,⁴He 为玻色子,它能由两个⁴He 构成,也可多至 10⁶ 个⁴He;最新探测到的双原子 He₂ 团簇,其结合能仅为 10⁻⁷ eV,核间平均距离约 5.5 nm,团簇的大小与其他惰性气体团簇的大小也大不相同,氦团簇的结构完全可以通过量子理论计算得到;He 团簇极易掺入不同的原子和分子,包括其他惰性气体等等,即由惰性气体、金属等多种组分相互作用,构成复合团簇^[10-12].

Rn 经 α 衰变成为 Po, Bi, Pb 之后,将放出多个 α 粒子,即多个⁴He.以²²²Rn 为例,会出现 4 次 α 衰变,最后变成稳定的²⁰⁶Pb 而终止. α 衰变时,由于反冲现象的存在,能使介质中的一些物质从表面上发射出来,形成团簇.放射出的 α 粒子与介质相互作用时,不仅使其自身减速,还会轰击介质,将有中性的和电离的原子从介质表面发射出来,出现溅射现象,形成团簇,从而在 Rn 的周围出现 Po, Bi, Pb, Tl 甚至 U, Th, Ra 等金属原子微粒或团簇.这样,各种金属微粒与惰性气体,尤其是与⁴He 相互碰撞、相互作用而凝聚成团簇,且是成分不同,多种组分构成的复合团簇,并是气态与固态共存.

由于 He 很轻,当这一团簇的重量小于空气对

* 福建省自然科学基金(批准号:A0120001)资助的课题.

它的浮力时,便导致团簇自行上升,出现氢及其子体比重虽大,却具有“自身”向上运移的能力。

3. 氢及其子体运移方程的建立

通过氢运移的实验研究和运移机理研究^[3~7],结果表明:在理想条件下,氢及其子体在水平方向的运移主要是由分子热运动而引起的扩散运移;氢及其子体在向上向下的运移除了扩散运移外,主要是团簇上浮运移和重力下沉运移。当团簇的上浮力大于它的重力时,氢及其子体向上运移,反之就向下运移。

在理想条件下,当氢及其子体由氢源向水平方向运移时,在空气中的扩散运移方程^[13]为

$$N = N_0 e^{-\sqrt{\lambda/k} \cdot x}, \quad (1)$$

式中 x 为某位置点离氢源的距离; N 为离氢源 x 处的氢气浓度; λ 为氢气的衰变常数; k 为氢气在空气中的扩散系数; N_0 为接近氢源点位置的氢气浓度。

可见,氢浓度随离氢源的距离呈指数规律衰减。

当氢及其子体由氢源向上或向下运移时(如图1所示),在单位时间内 dx 层中氢气量的改变与通过 dx 层底面和顶面的氢气流之差,以及单位时间内 dx 层中衰变的氢气量有关。它们之间的关系可用以下微分式来表示:

$$\frac{d}{dt}(N \cdot S \cdot dx) = Q - (Q + dQ) - \lambda N \cdot S \cdot dx, \quad (2)$$

式中 N 为 dx 层中的氢气浓度; X 为氢源到 dx 层的距离; Q 为通过 dx 层底面的氢气流; $Q + dQ$ 为通过 dx 层顶面的氢气流; S 为 dx 层的面积; λ 为氢气的衰变常数; $N \cdot S \cdot dx$ 为 dx 层中的氢气量; $\lambda N \cdot S \cdot dx$ 为单位时间内 dx 层中衰变的氢气量。

氢及其子体在向上向下的运移除了扩散运移外,主要是团簇上浮运移和重力下沉运移,则单位时间内引起的氢气流为

$$Q = -k \frac{dN}{dx} \cdot S + N \cdot \bar{v} \cdot S, \quad (3)$$

则

$$dQ = -k \frac{d^2 N}{dx^2} \cdot dx \cdot S + \frac{d(N \cdot \bar{v})}{dx} \cdot dx \cdot S, \quad (4)$$

式中 k 为扩散系数,负号表示浓度梯度 dN/dx 是随 x 的增加而减少。 \bar{v} 为团簇上浮或重力下沉运移的平均速度。

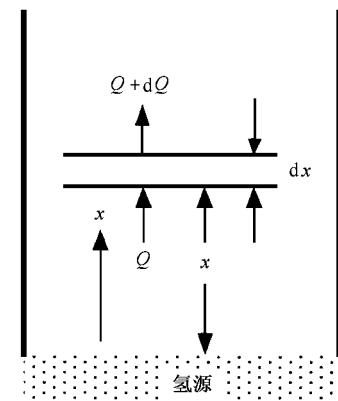


图1 推导氢及其子体运移公式示意图

把(4)式代入(2)式得

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}(N \cdot S \cdot dx) &= Q - Q - dQ - \lambda N \cdot S \cdot dx \\ &= k \frac{d^2 N}{dx^2} \cdot dx \cdot S - \frac{d(N \cdot \bar{v})}{dx} \\ &\quad \cdot dx \cdot S - \lambda N \cdot S \cdot dx, \end{aligned}$$

化简得

$$\frac{dN}{dt} = k \frac{d^2 N}{dx^2} - \frac{d(N \cdot \bar{v})}{dx} - \lambda N, \quad (5)$$

这就是氢及其子体向上向下的运移微分方程。

4. 氢及其子体向上向下运移方程讨论

由于氢-氦团簇的运动速度都能很快(毫微秒级以下)达到极大值,因此,方程(5)中的平均速度 \bar{v} 只与团簇的大小有关,而与时间 t 和距离 x 无关。当运移趋于稳定时,氢气浓度不随时间而改变,即 $dN/dt = 0$,则方程(5)变为

$$k \frac{d^2 N}{dx^2} - \bar{v} \frac{dN}{dx} - \lambda N = 0. \quad (6)$$

(6)式是一个二阶常系数齐次线性微分方程,其通解为

$$N = C_1 e^{\frac{\bar{v} + \sqrt{\bar{v}^2 + 4k\lambda}}{2k} \cdot x} + C_2 e^{-\frac{\sqrt{\bar{v}^2 + 4k\lambda} - \bar{v}}{2k} \cdot x}. \quad (7)$$

4.1. 氢及其子体在向上向下无限长空间的运移

由边界条件 1) $x = 0$ 时, $N = N_0$, 得 $C_1 + C_2 = N_0$; 2) $x \rightarrow \infty$ 时, N 有限, 得 $C_1 = 0$, $C_2 = N_0$, 代入(7)式, 得(6)式的解为

$$N = N_0 e^{-\frac{\sqrt{\bar{v}^2 + 4k\lambda} - \bar{v}}{2k} \cdot x}. \quad (8)$$

这就是运移稳定时氢及其子体在垂直无限长空

间,同时存在扩散运移和团簇运移条件下的运移方程.由于 $\sqrt{\bar{v}^2 + 4k\lambda} - \bar{v} > 0$,因此,氢及其子体在向上向下的理论分布呈指数规律衰减.

4.2. 氢及其子体在上下长为 h 且两端封闭空间的运移

1)当 $x = 0$ 时, $N = C_0$,

则

$$N = C_1 e^{-0} + C_2 e^0 = C_1 + C_2 = C_0,$$

$$C_2 = C_0 - C_1.$$

2)当 $x = h$ 时, 氢气单位面积的通量 q 为 0, 即

$$q = -k \frac{dN}{dx} + N \cdot \bar{v} \Big|_{x=h} = 0.$$

设 $b_1 = \frac{\bar{v} + \sqrt{\bar{v}^2 + 4k\lambda}}{2k}$, $b_2 = -\frac{\sqrt{\bar{v}^2 + 4k\lambda} - \bar{v}}{2k}$ 将(7)

式求导后代入上式并化简,得

$$C_1 = C_0 \frac{(kb_2 - \bar{v})e^{b_2 h}}{(\bar{v} - kb_1)e^{b_1 h} - (\bar{v} - kb_2)e^{b_2 h}}.$$

将 C_1, C_2 代入(7)式 并整理得

$$N = C_0 \frac{(kb_2 - \bar{v})e^{b_2 h + b_1 x} - (kb_1 - \bar{v})e^{b_1 h + b_2 x}}{(kb_2 - \bar{v})e^{b_2 h} - (kb_1 - \bar{v})e^{b_1 h}}. \quad (9)$$

这就是运移稳定时上下长为 h 且两端封闭空间,同时存在扩散运移和团簇运移条件下的运移方程.

由于 $b_1 > 0, b_2 < 0$ 且 $C_0 = N_0$, 当 $h \rightarrow \infty$ 时(9)式可退缩为(8)式, 可见(9)式可涵盖(8)式.

4.3. 不考虑扩散时氢及其子体在无限长空间的运移

由前面的实验结果可知, 氢及其子体在向上向下的运移以氢-氦团簇的运移为主, 扩散运移可以忽略不计. 当不考虑扩散运移时, 方程(6)变为

$$\bar{v} \frac{dN}{dx} + \lambda N = 0,$$

分离变量后得

$$\frac{dN}{N} = -\frac{\lambda}{\bar{v}} dx. \quad (10)$$

解方程(10), 并将边界条件 $N|_{x=0} = N_0$ 代入得

$$N = N_0 e^{-\frac{\lambda}{\bar{v}} \cdot x}, \quad (11)$$

这就是运移稳定时氢及其子体在垂直无限长空间,仅考虑团簇运移条件下的运移方程.

当取 $k \rightarrow 0$ 时, 则(8)式可退缩为(11)式, 这同时显示(9)式也涵盖了(11)式.

5. 运移方程的初步验证

由于氢及其子体所组成的团簇本身就是一种微粒, 它与一般的气溶胶类似, 或者说它本身就是一种气溶胶, 因此, 氢及其子体向下运移的平均速度应该与同粒径的一般气溶胶的极限沉降速度一致, 据此可以初步验证运移方程的正确性.

为了测定氢及其子体向下运移的平均速度, 我们在室内进行了一系列实验. 实验装置如图 2 图 3 所示, 其中氢气源分别为沥青铀矿石和液体镭源, 氢

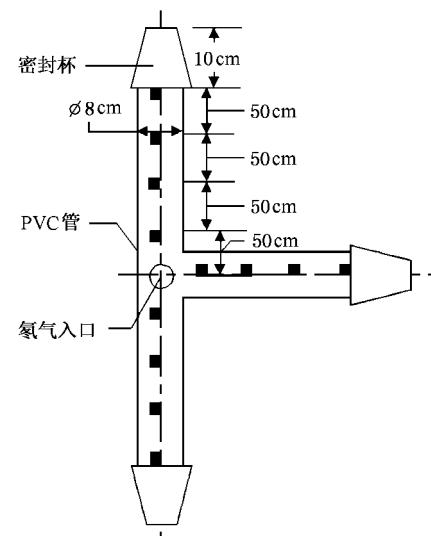


图 2 氢及其子体运移实验装置示意图(上、下及水平方向管长各 2 m)

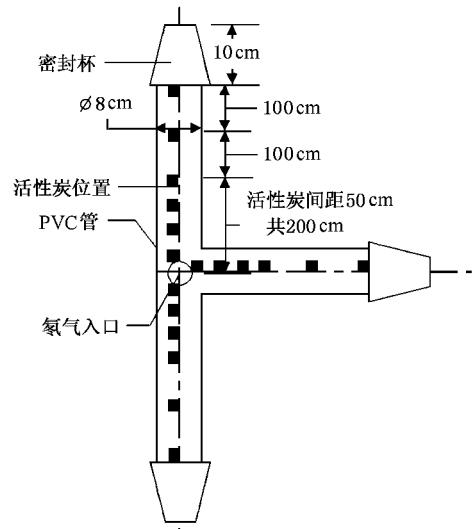


图 3 氢及其子体运移实验装置示意图(上、下及水平方向管长各 4 m)

气源积累时间为 4 天、7 天和 19 天, 分别测定 PVC 管中各活性炭所在位置点的氡气浓度, 由此可以得到氡浓度与距离关系的实验曲线。为简单起见(即不考虑扩散迁移且假定 PVC 管为无限长), 我们用方程(11)对实验曲线进行拟合, 可以得到各种条件下氡及其子体的平均迁移速度(如表 1 所示)。

根据文献[14—16]给出的放射性气溶胶或团簇的直径为 100—400 nm; 又根据文献[17]给出的气溶胶粒径与实测气溶胶极限沉降速度关系(见图 4)可知, 气溶胶粒径为 180—500 nm 时, 气溶胶极限沉降速度为 2×10^{-4} — 10×10^{-4} cm/s, 这一结果与表 1 给出的氡及其子体向下迁移的平均速度相吻合。

表 1 氡及其子体向上向下平均迁移速度

PVC 管长/cm	200						400		
	积累时间/d		4		7		4		19
迁移方向	向上	向下	向上	向下	向上	向下	向上	向下	向上
运移速度(矿石源) $\times 10^{-4}$ cm·s $^{-1}$	4.28	3.44	16.13	7.49	5.24	3.96	3.81	4.88	
运移速度(镭源) $\times 10^{-4}$ cm·s $^{-1}$	4.19	2.44	6.99	4.19	3.96	2.76	5.38	3.75	9.12
									4.99

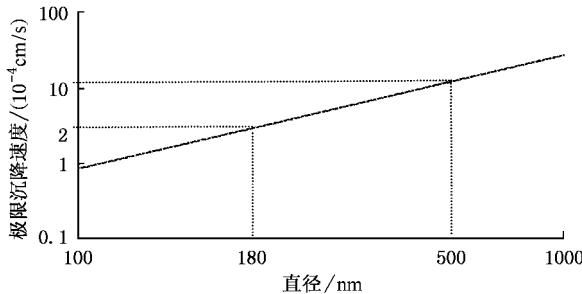


图 4 空气中球状颗粒直径与极限沉降速度的关系^[17]

6. 结 论

氦氢等团簇的形成, 从内因上解决了氡及其子体的运移机理问题, 它能很好地解释过去人们所遇到的众多现象。根据氡—氦团簇运移模型推导出的氡及其子体在空气中的理论运移方程, 具有一定的探索性, 并对氡气测量在地球科学、环境科学等领域的应用具有一定的指导意义。

- [1] Нешеткин О Б 1987 *Foreign Uranium Geology* **2** 42 (in Chinese) [马占中译 1987 国外铀矿地质 **2** 42]
- [2] Wu H S , Bai Y S , Lin Y F and Chang G L 1997 *Acta Geophysica Sinica* **40** 136 (in Chinese) [吴慧山、白云生、林玉飞、常桂兰 1997 地球物理学报 **40** 136]
- [3] Jia W Y , Fang F , Zhou R S et al 2000 *Nuclear Techniques* **23** 169 (in Chinese) [贾文懿、方方、周蓉生等 2000 核技术 **23** 169]
- [4] Jia W Y , Fang F , Zhou R S et al 1999 *Journal of Chengdu University of Technology* **26** 34 (in Chinese) [贾文懿、方方、周蓉生等 1999 成都理工大学学报 **26** 34]
- [5] Jia W Y , Fang F , Zhou R S et al 1999 *Journal of Chengdu University of Technology* **26** 171 (in Chinese) [贾文懿、方方、周蓉生等 1999 成都理工大学学报 **26** 171]
- [6] Liu H F 1997 *Doctoral Dissertation of Chengdu University of Technology* (in Chinese) [刘鸿福 1997 成都理工学院博士论文]
- [7] Le R C 2001 *Doctoral Dissertation of Chengdu University of Technology* (in Chinese) [乐仁昌 2001 成都理工学院博士论文]
- [8] Proceedings of the 5th International Meeting on Small Particles and Inorganic Clusters 1991 *Z. Phys. D.* **19**–**20** 1991
- [9] Proceedings of the 6th International Meeting on Small Particles and Inorganic Clusters 1993 *Z. Phys. D* **26** 263
- [10] Gordon W F Drake , Mandich M L 1995 *Atomic, Molecular, & Optical Physics Handbook* (American Institute of Physics Press)
- [11] Joppinen M , Karbach R and Moller T 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 2654
- [12] Miao J W , Shi M G , Yang B F et al 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1058 (in Chinese) [缪竞威、师勉恭、杨百方等 2000 物理学报 **49** 1058]
- [13] Chengdu Geological Institute 1974 *Radioactive Exploration for Uranium Deposits* [成都地质学院翻译 1974 铀矿床放射性勘探]
- [14] Porstendorfer J 1994 5th International symposium on the Natural Radiation Environment (ISSN 1018–5593 (Report EUR 14411 EN)) 231–235
- [15] Butterveck-Dempewol G 2000 *Aerosol Science and Technology* **33** 262
- [16] Morawska L et al 1997 *Aerosol Science and Technology* **26** 5
- [17] Richard Denis 1988 *Aerosol Handbook* (Beijing: Nuclear Energy Press) [理查特·丹尼斯(美) 1988 气溶胶手册(原子能出版社)]

A new theory of migration of radon and its daughters in the ideal condition and their migration equation^{*}

Le Ren-Chang¹⁾ Jia Wen-Yi²⁾ Wu Yun-Ping¹⁾

¹⁾(Department of Physics ,Fujian Teachers ' University , Fuzhou 350007 ,China)

²⁾(Department of Nuclear Technology and Engineering , Chengdu University of Technology , Chengdu 610059 ,China)

(Received 27 December 2002 ; revised manuscript received 29 January 2003)

Abstract

The study of radon release and migration is the basic theoretical issue for radon measurement , which has a close relationship with extensive applications in geoscience , environmental science and so on. In this paper , a new theory of migration of radon and its daughters has been discussed. The mechanism of vertical migration of radon and its daughters is : after α - particles emitted by radon and its daughters decelerate , they become He nucleus. The He nuclei can combine with radon and its daughters and form clusters. Because He is very light , it can make the specific gravity of the clusters lower than their buoyancy in the medium. As a result , the clusters will rise of their own accord. When the specific gravity of the clusters is higher than their buoyancy , the clusters will drop down. The theoretical distribution equation is established to describe radon migration and proved by experiment as well.

Keywords : cluster , migration of radon , migration equation

PACC : 3640 , 2390

^{*} Project supported by the Natural Science Foundation of Fujian Province ,China(Grant No. A0120001).