

对理想条件下 Rn 及其子体垂直运移 实验数据的再分析*

洪锦泉 乐仁昌† 何志杰 叶全意 陈健 周宝庸

(福建师范大学物理与光电信息科技学院, 福州 350007)

(2008 年 10 月 17 日收到, 2008 年 11 月 7 日收到修改稿)

当 1 个 Rn 与 8 个以上的 He 原子结合成团簇后, 该团簇可以克服重力向上运移; 当与 1 个 Rn 结合的 He 原子少于 8 个时, 该团簇将向下运移. 因此向上运移的 RnHe 团簇的平均原子数要明显大于向下运移的 RnHe 团簇的平均原子数. 对 Rn 及其子体的长距离运移实验数据进行分析表明: 在不考虑扩散的情况下, 平均每个 Rn 需要与 7.5 个 He 原子结合, 则铀矿石源所能提供的 He 原子数量可能不够; 如果考虑扩散的情况, 平均每个 Rn 只需与 4.26—5.57 个 He 原子结合, 则铀矿石源可以提供足够数量的 He. 这一推导结果说明, 在采用团簇运移机制解释 Rn 及其子体垂直运移实验结果时, 不能忽略扩散运移的存在.

关键词: Rn, 垂直运移, RnHe 团簇

PACC: 3640, 3120, 2390

1. 引 言

在 20 °C 和 1 个标准大气压下, 根据 1 mol 理想气体的体积为 22420.7 cm³, 可以推算出空气密度为 1.293 × 10⁻³ g/cm³, Rn 气密度为 9.902 × 10⁻³ g/cm³, He 气密度为 1.784 × 10⁻⁴ g/cm³. 显然, Rn 气的密度比空气大很多, 但 Rn 气可以在空气中快速向上运移, 这已经被 Rn 有关的实验所证实. 虽然国内外学者提出了多种假设(例如对流运移机制、以其他上升气体为载体的运移机制、微气泡运移机制等)来解释这一 Rn 气运移现象^[1-3], 但这些假设只能部分解释所观测到的现象, 而无法解释在理想条件下 Rn 气的运移实验结果. 为此, 我们提出了 Rn 气团簇运移机制, 即 Rn 及其子体和母体多为 α 辐射体, 它们放出的 α 粒子减速后成为 ⁴He, ⁴He 又能与 Rn 及其子体和母体形成复合团簇; 由于 He 气很轻, 当复合团簇浮力大于重力时, 团簇便会自行上升, 这就是 Rn 及其子体向上快速运移的内因^[4-11]. 但是文献 [12] 根据我们的实验数据进行了推导, 否定了 Rn 气团簇运移机制的存在. 对此, 我们存有异议, 该文几乎所有的推导都是基于(9)式. 文献 [12] 的作者认为,

向上向下的团簇半径是相同的, 但事实上, 向下运移的团簇一定小于向上运移的团簇, 即向下运移的团簇都小于 9 个原子, 而向上运移的团簇均大于 9 个原子. 因此无论从该文的(5)式还是(6)式均无法推导出(9)式. 另外, 文献 [12] 是在假设不存在扩散运移的前提下推导出“α 粒子数量远远不够”的结论, 我们认为这是不合适的. 事实上, 扩散无处不在, 因此, 如果考虑 Rn 的扩散, 则推导出来的结论可能完全不一样.

2. 不考虑扩散时 Rn 垂直运移所需 α 粒子数的估算

文献 [10, 11] 给出了 RnHe 团簇在极短的时间内所能达到的最大运移速度公式

$$v = \pm \frac{2C_c(\rho - \rho') \times r^2}{9\eta}, \quad (1)$$

式中, C_c 为滑动修正系数, 与 RnHe 团簇或气溶胶的大小有关; r 为球形 RnHe 团簇的半径; η 为空气的黏滞系数; ρ 为 RnHe 团簇的密度; ρ' 为空气的密度 (1.293 × 10⁻³ g/cm³).

向上运移与向下运移的 RnHe 团簇运移速度之

* 国家自然科学基金(批准号: 10575022)和福建省自然科学基金项目(批准号: 2007J0349)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: lre@fjnu.edu.cn

比与滑动修正系数 C_c 有关,而 C_c 与 RnHe 团簇的半径 r 有关.为了简化,我们暂且忽略滑动修正系数对运移速度的影响.根据(1)式可以得到团簇向上向下平均运移速度之比为

$$\frac{\bar{v}_u}{\bar{v}_d} = \frac{(\rho_u - \rho')r_u^2}{(\rho_d - \rho')r_d^2}, \quad (2)$$

式中 \bar{v}_u 、 ρ_u 和 r_u 分别为向上运移的团簇的平均速度、平均密度和平均半径, \bar{v}_d 、 ρ_d 和 r_d 分别为向下运移的团簇的平均速度、平均密度和平均半径.

假设 Rn 和 He 的原子半径同为 r_0 ,Rn 与 He 结合成团簇后,团簇体积为各原子体积之和,且为球形,向上运移团簇的平均原子数为 m_u (其中包括 1 个 Rn 和 $m_u - 1$ 个 He 原子),向下运移团簇的平均原子数为 m_d (其中包括 1 个 Rn 和 $m_d - 1$ 个 He 原子), ρ_{Rn} 和 ρ_{He} 分别为 Rn 气和 He 气的密度($\rho_{Rn} = 9.902 \times 10^{-3} \text{ g/cm}^3$, $\rho_{He} = 1.784 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$),则向上运移的团簇半径和密度分别为

$$r_u = m_u^{1/3} r_0, \quad (3)$$

$$\rho_u = \frac{\rho_{Rn} + (m_u - 1)\rho_{He}}{m_u}. \quad (4)$$

同样地,向下运移的团簇半径和密度分别为

$$r_d = m_d^{1/3} r_0, \quad (5)$$

$$\rho_d = \frac{\rho_{Rn} + (m_d - 1)\rho_{He}}{m_d}. \quad (6)$$

将(3)–(6)式代入(2)式得

$$\frac{\bar{v}_u}{\bar{v}_d} = \left(\frac{m_d}{m_u}\right)^{1/3} \frac{\rho_{Rn} + m_u\rho_{He} - \rho_{He} - m_u\rho'}{\rho_{Rn} + m_d\rho_{He} - \rho_{He} - m_d\rho'}. \quad (7)$$

设

$$L = \frac{\bar{v}_u}{\bar{v}_d}, \quad (8)$$

$$P = \frac{\rho_{Rn} - \rho_{He}}{\rho' - \rho_{He}}. \quad (9)$$

将相应的数值代入(9)式可得 $P = 8.724$.

由 $\rho_u - \rho' < 0$ 可得 $\rho_{Rn} + (m_u - 1)\rho_{He} < m_u\rho'$,

即

$$m_u > P. \quad (10)$$

同样,由 $\rho_d - \rho' < 0$,可得 $\rho_{Rn} + (m_d - 1)\rho_{He} < m_d\rho'$,

即

$$0 < m_d < P. \quad (11)$$

将(7)(9)式代入(8)式可得

$$L = \left(\frac{m_d}{m_u}\right)^{1/3} \frac{P - m_u}{P - m_d},$$

即

$$L \frac{P - m_d}{P - m_u} = \left(\frac{m_d}{m_u}\right)^{1/3}.$$

又由于 $\frac{m_d}{m_u} < 1$,则

$$L \frac{P - m_d}{P - m_u} < 1. \quad (12)$$

结合(10)式,将(12)式整理后可得

$$m_u - Lm_d > P(1 - L). \quad (13)$$

同样引用文献[12]中的表3或文献[13]中的表1的实验数据,表1给出

表1 Rn 及其子体在 1300 cm 长的 PVC 管中向上和向下运移的原子总数

位置/cm	50	100	150	200	300	400	600	900	1300
向上运移的情况	14228	12665	11706	9112	8378	5813	2370	1402	520
向下运移的情况	12535	11140	9834	7640	9041	7360	4869	3809	4763

假设向上向下运移的 Rn 全部都是团簇机制引起,则计算得到^[12] $L = -0.748$,代入(13)式可得

$$m_u + 0.748m_d > 15.25.$$

结合(10)(11)式,对上式进行讨论可得向上向下运移的团簇的平均原子数(若要使 Rn 气与 He 气混合的密度大于空气的密度,则要求一个 Rn 原子必须至少与 7.724 个以上的 He 原子结合成团簇,才能够向上运移,由此可推得 $m_u \geq 9$).如表 2 所示.

表2 向上运移与向下运移团簇的平均原子数

m_u	m_d
9	8
10	7
11	6
12	5

由表 2 可知,向上运移与向下运移团簇的平均原子数为 8.5.说明复合而成的团簇中,平均每个 Rn 原子至少要与 7.5 个 He 原子结合.根据 U 的衰变过程可知,从一个²³⁸U 原子衰变到²²²Rn,再由²²²Rn 衰变到半衰期较长的²¹⁰Pb 的过程中,经过了 7 次 α 衰变,有 7 个 He 产生,也就是平均每产生 1 个 Rn 最多只能产出 7 个 He 原子.这说明仅考虑团簇运移不考虑扩散对 Rn 运移所需 α 粒子(He 原子)数量进行估算是不合理的.

3. 考虑扩散时 Rn 垂直运移所需 α 粒子数的估算

在 Rn 运移实验中,扩散作用是存在的,也是不可以忽略的.下面就对在扩散条件下 RnHe 团簇垂直运移所需要的 α 粒子数进行讨论.

设因扩散而向上运移的团簇数为 n_{dif} ,因团簇运移机制(即浮力)而向上运移的团簇数为 n_{mig} ,向上运移总的团簇数为 n ($n = n_{\text{dif}} + n_{\text{mig}}$),因扩散而向下运移的团簇数为 n'_{dif} ,因团簇运移机制(即重力)而向下运移的团簇为 n'_{mig} ,向下运移总的团簇数为 n' ($n' = n'_{\text{dif}} + n'_{\text{mig}}$),且每个团簇只有 1 个 Rn,则有

$$\bar{v}_u = \frac{n_{\text{dif}} \bar{v}'_{\text{dif}} + n_{\text{mig}} \bar{v}_{\text{mig}}}{n}, \quad (14)$$

$$v'_{\text{d}} = \frac{n'_{\text{dif}} \bar{v}'_{\text{dif}} + n'_{\text{mig}} \bar{v}'_{\text{mig}}}{n'}, \quad (15)$$

式中 \bar{v}_u 和 v'_{d} 分别为所有向上和向下运移团簇的平均速度, \bar{v}'_{dif} 和 v'_{d} 分别为因扩散运移所引起团簇向上和向下运移的平均速度; \bar{v}_{mig} 和 \bar{v}'_{mig} 分别为因团簇运移机制所引起团簇向上和向下运移的平均速度.

很显然(14)和(15)式中只有与团簇运移机制有关的 RnHe 团簇的平均运移速度才可以采用(1)式进行计算,而因扩散机制而产生运移的 RnHe 团簇的平均速度则采用 Rn 的扩散系统进行估算.

对于 \bar{v}_{mig} 和 \bar{v}'_{mig} 的估算,可以采用本文上述推导结果.对比(7)式,可以得到

$$\frac{\bar{v}_{\text{mig}}}{\bar{v}'_{\text{mig}}} = \left(\frac{m'_{\text{mig}}}{m_{\text{mig}}} \right)^{1/3} \frac{\rho_{\text{Rn}} + m_{\text{mig}} \rho_{\text{He}} - \rho_{\text{He}} - m_{\text{mig}} \rho'}{\rho_{\text{Rn}} + m'_{\text{mig}} \rho_{\text{He}} - \rho_{\text{He}} - m'_{\text{mig}} \rho'}, \quad (16)$$

式中 m_{mig} 和 m'_{mig} 分别为团簇运移机制引起的向上和向下运移团簇的平均原数.

$$\text{同样假设 } L' = \frac{\bar{v}_{\text{mig}}}{\bar{v}'_{\text{mig}}} \text{ 和 } P = \frac{\rho_{\text{Rn}} - \rho_{\text{He}}}{\rho' - \rho_{\text{He}}} = 8.724,$$

$$\text{代入(16)式可得 } L' = \left(\frac{m'_{\text{mig}}}{m_{\text{mig}}} \right)^{1/3} \frac{P - m_{\text{mig}}}{P - m'_{\text{mig}}},$$

即

$$\frac{(P - m'_{\text{mig}})^3}{m'_{\text{mig}}} = \frac{(P - m_{\text{mig}})^3}{m_{\text{mig}} L'^3}. \quad (17)$$

根据表 1 的 Rn 及其子体在 1300 cm 长的 PVC 管内的向上、向下运移实验数据进行非线性数据拟合,可得到 Rn 及其子体运移 12d 以后,向上($x > 0$)

运移方程为^[12]

$$N_1 = 15946.04302 \times e^{-0.00232x}. \quad (18)$$

向下($x < 0$)运移方程为^[12]

$$N_2 = 13085.82857 \times e^{0.00173x}. \quad (19)$$

运移稳定时 Rn 及其子体在垂直无限长空间,考虑团簇运移条件下的运移方程为^[9]

$$N = N_0 e^{-\frac{\lambda}{v} x} \quad (20)$$

式中 λ 为 Rn 气的衰变常数($\lambda = 2.1 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$),结合(18)(19)式可求得所有向上运移的 RnHe 团簇平均速度为 $\bar{v}_u = \frac{2.1 \times 10^{-6}}{0.00232} = 9.05 \times 10^{-4} \text{ cm/s}$.所有向

下运移的 RnHe 团簇平均速度为

$$\bar{v}_{\text{d}} = -\frac{2.1 \times 10^{-6}}{0.00173} = -1.21 \times 10^{-3} \text{ cm/s}.$$

对(18)式积分可得所有向上运移的团簇数为 n

$$= \int_0^{1300} N_1 dx = 6536524.876. \text{ 对(21)式积分可得所有}$$

向下运移的团簇数为 $n' = \int_{-1300}^0 N_2 dy = 6766018.763.$

Rn 及其子体运移的扩散运移方程^[10]为

$$N = N_0 e^{-\sqrt{\lambda/k} \cdot x}. \quad (21)$$

设 Rn 在空气中的扩散系数 $k = 0.05 \text{ cm}^2/\text{s}$,且 $n_{\text{dif}} = n'_{\text{dif}}$,取 $x = 0$ 时的总计数 $N_0 = (15946 + 13086)/2 = 14516$,可求得因扩散机制引起的向上和向下运移的团簇数为 $n'_{\text{dif}} = n_{\text{dif}} =$

$$14516 \int_0^{1300} e^{-\sqrt{2.1 \times 10^{-6}/0.05} \cdot x} dx = 2239376.4134.$$

对比(20)和(21)式,可以估算因扩散机制引起的团簇向上和向下运移的平均速度分别为 $\bar{v}_{\text{dif}} = \sqrt{k\lambda} = \sqrt{0.05 \times 2.1 \times 10^{-6}} = 3.24 \times 10^{-4} \text{ cm/s}$, $v'_{\text{dif}} = -\sqrt{k\lambda} = -\sqrt{0.05 \times 2.1 \times 10^{-6}} = -3.24 \times 10^{-4} \text{ cm/s}$.

将相应的值代入(14)式可得 $\bar{v}_{\text{mig}} = 1.21 \times 10^{-3} \text{ cm/s}$.将相应的值代入(15)式可得 $\bar{v}'_{\text{mig}} = -1.65 \times 10^{-3} \text{ cm/s}$.

则 $L' = \frac{\bar{v}_{\text{mig}}}{\bar{v}'_{\text{mig}}} = -0.733.$

将 L' 和 P 的值代入(17)式可以求得团簇运移机制引起的向上团簇的平均原子数 m_{mig} 和向下团簇的平均原子数 m'_{mig} 的关系为

$$\frac{(8.724 - m'_{\text{mig}})^3}{m'_{\text{mig}}} = -\frac{(8.724 - m_{\text{mig}})^3}{0.39m_{\text{mig}}}. \quad (22)$$

表 3 列出了 m_{mig} 和 m'_{mig} 的取值.

表 3 团簇运移机制引起的向上向下运移团簇的平均原子数的取值关系

m_{mig}	m'_{mig}
9	7.9719
10	5.6280
11	3.8557
12	2.5884
13	1.7266
14	1.1607
> 15	< 1

通过上述的假设与讨论,可以计算出每个团簇的平均原子数

$$Q = \frac{m_{\text{dif}} n_{\text{dif}} + m_{\text{mig}} n_{\text{mig}} + m'_{\text{mig}} n'_{\text{mig}} + m'_{\text{dif}} n'_{\text{dif}}}{n + n'}. \quad (23)$$

由 $m_{\text{dif}} n_{\text{dif}} = m'_{\text{dif}} n'_{\text{dif}}$, 则(23)式可简化为

$$Q = \frac{2m_{\text{dif}} n_{\text{dif}} + m_{\text{mig}} n_{\text{mig}} + m'_{\text{mig}} n'_{\text{mig}}}{n + n'}. \quad (24)$$

将相应的值代入(24)式,并考虑 $n = n_{\text{dif}} + n_{\text{mig}}$ 和 $n' = n'_{\text{dif}} + n'_{\text{mig}}$, 可得

$$Q = 0.337m_{\text{dif}} + 0.33m_{\text{mig}} + 0.323m'_{\text{mig}}. \quad (25)$$

由于扩散是由分子热运动引起,扩散的 Rn 可以与任意个 He 原子结合成 RnHe 团簇. 为了方便起见,我们分别取 $m_{\text{dif}} = 1, 2$ 和 3 , 根据表 3 和(25)式可得每个团簇的平均原子数的取值范围分别为

$5.26 \leq Q \leq 5.89, 5.60 \leq Q \leq 6.23$ 和 $5.93 \leq Q \leq 6.57$. 其物理含义如下:有部分 Rn 原子与 0, 1 或 2 个 He 原子结合成团簇而自行扩散运移,其余的 Rn 原子则需要与多个 He 原子结合成团簇进行团簇运移. 就所有的 Rn 原子而言,平均每个 Rn 原子分别需结合 4.26—4.89, 4.60—5.23 和 4.93—5.57 个 He 原子.

可见,当扩散运移所带走的 He 原子较少时,就表 1 所示实验数据而言,平均每个 Rn 原子只需与 4.26—5.57 个 He 原子结合. 实验采用的是铀矿石源,根据 U 放射性衰变过程可知,从 ^{238}U 衰变到 ^{210}Pb 每个 Rn 最多可释放出 7 个 He 原子,这完全可以满足 He 原子数量的要求.

事实上,如果采用 Rn 在空气中的扩散系数的经典值($0.1 \text{ cm}^2/\text{s}$)进行重新估算,He 原子数量将更加充裕.

4. 结 论

本文分别给出不考虑扩散和考虑扩散时 Rn 垂直运移所需 He 原子数的估算方法. 就表 1 所列的实验数据而言,在不考虑扩散的情况下,平均每个 Rn 原子需要与 7.5 个 He 原子结合,铀矿石源所能提供的 He 原子数量可能不够,说明在采用团簇运移机制解释 Rn 及其子体垂直运移实验结果时,不能忽略扩散运移的存在. 在考虑扩散的情况下,平均每个 Rn 原子只需与 4.26—5.57 个 He 原子结合,则铀矿石源可以提供足够数量的 He 原子.

[1] Wu H S, Bai Y S 1997 *Chin. J. Geophys.* **40** 136 (in Chinese) [吴慧山、白云生 1997 地球物理学报 **40** 136]

[2] Kristianson K, Malmqvist L 1982 *J. Geophys.* **47** 1444

[3] Cao L L, Wang Z L, Liu Y W 2005 *J. Seism. Res.* **28** 302 (in Chinese) [曹玲玲、王宗礼、刘耀炜 2005 地震研究 **28** 302]

[4] Jia W Y, Fang F, Zhou R S, Ma Y J, Qiu Y D, Hou X S, Wu Y P, Zu X L, Wang X Q 1999 *J. Chengdu Univ. Technol.* (Sci. Technol. Ed.) **26** 171 (in Chinese) [贾文懿、方方、周蓉生、马英杰、邱元德、侯新生、吴允平、祖秀兰、王小琴 1999 成都理工大学学报(自然科学版) **26** 171]

[5] Jia W Y, Fang F, Zhou R S, Ma Y J, Qiu Y D, Hou X S, Wu Y P, Zu X L, Wang X Q 2000 *Nuclear Technol.* **23** 169 (in Chinese) [贾文懿、方方、周蓉生、马英杰、邱元德、侯新生、吴允平、祖秀兰、王小琴 2000 核技术 **23** 169]

[6] Jia W Y, Fang F, Zhou R S, Ma Y J, Le R C, Wang X Q 2002 *J. Chengdu Univ. Technol.* (Sci. Technol. Ed.) (自然科学版) **29** 61 (in Chinese) [贾文懿、方方、周蓉生、马英杰、乐仁昌、王小琴 2002 成都理工大学学报(自然科学版) **29** 61]

[7] Le R C, Jia W Y, Wu Y P 2002 *Radiat. Prot. Dosis.* **22** 175 (in Chinese) [乐仁昌、贾文懿、吴允平 2002 辐射防护 **22** 175]

[8] Jia W Y, Fang F, Zhou R S, Ma Y J, Le R C, Wang X Q 2002 *J. Chengdu Univ. Technol.* (Sci. Technol. Ed.) **29** 561 (in Chinese) [贾文懿、方方、周蓉生、马英杰、乐仁昌、王小琴 2002 成都理工大学学报(自然科学版) **29** 561]

[9] Le R C, Jia W Y, Wu Y P 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 2457 (in Chinese) [乐仁昌、贾文懿、吴允平 2003 物理学报 **52** 2457]

[10] Le R C 2001 *Ph. D. Dissertation* (Chengdu: Chengdu University of Technology) (in Chinese) [乐仁昌 2001 博士学位论文(成都

- 理工大学)] Chinese)[谭延亮、肖德涛、赵桂芝 2008 物理学报 57 5452]
- [11] Le R C ,Lin G Y 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 4113(in Chinese)[乐仁昌、林刚勇 2005 物理学报 54 4113]
- [12] Tan Y L ,Xiao D T ,Zhao G Z 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5452 in Chinese
- [13] Le R C ,Jia W Y ,He Z J 2006 *J. Chengdu Uni. Technol. (Sci. Technol. Ed.)* **33** 536(in Chinese)[乐仁昌、贾文懿、何志杰 2006 成都理工大学学报(自然科学版) 33 536]

Re-analysis of the experiment data of vertical migration of radon and its daughters under ideal condition^{*}

Hong Jin-Quan Le Ren-Chang[†] He Zhi-Jie Ye Quan-Yi Chen Jian-Di Zhou Bao-Yong

(*School of Physics and Opto-Electronic Technology , Fujian Normal University , Fuzhou 350007 , China*)

(Received 17 October 2008 ; revised manuscript received 7 November 2008)

Abstract

Helium-radon clusters will migrate upwards provided the clusters are made up of one radon atom and more than 8 helium atoms. With less than 8 the atoms, the specific gravity of the helium-radon clusters will be heavier than their buoyancy and the clusters will migrate downwards. Hence the average number of atoms will be greater 1a upwards-migrating clusters. The mathematical calculation has been done to obtain the average atomicity of clusters from experimental radon data. The results show that the number of α particles provided by uranium ore is insufficient, if not considering the diffusion of radon, because one radon atom needs to combine with 7.5 helium atoms. But if the diffusion of radon is taken into account, there will have enough number of α particles because one radon atom needs to combine with just 4.26—5.57 helium atoms. Therefore, the diffusion of radon cannot be ignored when we apply the migration mechanism of helium-radon clusters to explain the vertical migration experiment data of radon and its daughters.

Keywords : Rn , vertical migration , helium-radon cluster

PACC : 3640 , 3120 , 2390

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10575022) and the Natural Science Foundation of Fujian Province , China (Grant No. 2007J0349).

[†] Corresponding author. E-mail :lrc@fjnu.edu.cn