

氡的溶解与析出的试验研究

陈翔 徐文平 李广悦 丁德馨

(南华大学核资源与安全工程学院 衡阳 421001)

摘要 在不同温度和压力下测量自制试验装置内气相部分的氡浓度, 计算氡在对应温度和压力下的溶解度系数, 并用自适应神经模糊推理系统(ANFIS)建立了根据温度和压力预测氡溶解度系数的 ANFIS 模型。结果表明, 氡在水中的溶解度系数随温度升高而降低, 随压力降低而降低。预测氡在水中溶解度系数的 ANFIS 模型能够给出足够精度的预测结果, 为预测氡的溶解度系数开辟了新途径。

关键词 氡, 溶解, 析出, 溶解度系数, 自适应神经模糊推理系统

中图分类号 P631.6

原地爆破浸出采铀的工艺过程, 是先开挖一定规模的爆破补偿空间, 用凿岩爆破技术将铀矿石原地爆破破碎到预定块度, 并就地形成待浸矿堆; 再向矿堆注入溶浸剂, 有选择地浸出矿石中的铀金属; 最后将含铀金属的浸出液输送到地面加工厂, 回收其中的铀金属^[1]。由上述工艺过程, 铀矿堆中的气相与溶浸剂液相间存在压力梯度及矿堆中氡不断衰变, 随溶浸剂流动, 铀矿堆气相中的氡会产生溶解与析出现象^[2]。因此, 研究氡在各种温度和压力条件下的溶解与析出规律对模拟原地爆破浸出采铀采场铀矿堆中氡的析出与运移过程至关重要。

众多学者根据大量的实验结果研究了气体的溶解现象^[2-10], 先后提出气体间隙填充溶解机理和气体水合作用溶解机理。前者认为水分子间存在间隙, 气体因其分子填充于水分子间隙而溶解于水中; 后者认为气体因其分子与水分子的水合作用而溶解于水中。

张炜等^[11]证实氡在水中溶解为气体水合作用的结果, 并提出氡的溶解度系数 α 随温度 $t(^{\circ}\text{C})$ 的升高而降低:

$$\alpha = 0.1057 + 0.405e^{-0.0502t} \quad (1)$$

目前, 关于氡的溶解度在温度和压力联合作用下的变化规律在国内外尚未见报导。为此, 本文采用自制的氡的溶解与析出试验装置研究了温度及压力对氡的溶解与析出的影响, 并用自适应神经模糊推理系统(ANFIS)建立了根据温度及压力预测氡的溶解度系数的 ANFIS 模型。

1 材料与方法

1.1 试验装置

本试验采用自制的试验装置, 材质为厚 10 mm 铁皮(图 1), 箱体体积 5.3 L($\Phi 150 \text{ mm} \times 300 \text{ mm}$), 所有连接处用广东强力公司生产的专业 AB 胶密封。

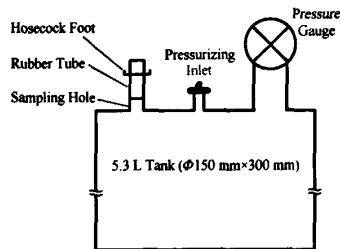


图 1 氡气溶解与析出试验装置

Fig.1 Schematic view of the tester for radon dissolution and emanation.

1.2 测量仪器

采用 5 mL 针筒注射器取样, 用北京核仪器厂生产的 FH463B 型自动定标器及 FD-125 型氡钍分析仪进行测量。试验时将装置置于可调节温度的空气浴摇床中, 以便控制温度和搅拌试样。

1.3 试验过程

(1) 检查装置气密性。(2) 加样。将 1/3 装置体积的蒸馏水注入装置, 设定空气浴摇床温度, 加入氡(南华大学氡计量标定中心处抽取)至压力表产生

读数 P1，启动摇床搅拌。(3) 试验及数据测量。取样测量时间间隔 3 h，每次取样抽取 5 mL 氡，并记录取样对应时刻的压力表读数。(4) 不同温度梯度的试验。排除装置内的残氡，24 h 后重复试验步骤 (1)–(3)。

2 结果与分析

2.1 氡溶解度系数的计算

氡在水中的溶解度系数为：

$$\alpha = C_{\text{liquid}}/C_{\text{gas}} \tag{2}$$

式中， C_{liquid} 与 C_{gas} 分别为液相与气相中的氡浓度 (Bq/m³)。

测量试验装置中等时间间隔 T 时的气相中氡的浓度 C ，用加入试验装置中总的氡量扣除对应时间取样和衰变的氡量，计算出对应时间、对应浓度和压力下溶解于水中的氡量，将其换算成水中的氡浓度，用式(2)计算氡溶解度系数(表 1)。

表 1 不同压力和温度下氡的溶解度系数的试验结果
Table 1 Test results of radon dissolution coefficient under different temperature and pressure.

温度 $T/^{\circ}\text{C}$	压力 Pressure /kPa	溶解度系数 α	对应氡浓度 /Bq·m ⁻³ Rn concentration	初始浓度 /Bq·m ⁻³ Initial Rn concentration	相对误差 /% Relative error
18	2.2	0.98	23496	35956	4.24
	1.6	0.88	24480		
	1.4	0.84	25288		
	1.2	0.78	25900		
	0.9	0.70	27468		
20	2.4	0.98	28785	40752	5.35
	2.0	0.85	29980		
	1.5	0.79	31025		
	1.0	0.68	31640		
	0.5	0.48	34058		
23	1.8	0.85	15352	21574	3.84
	1.5	0.68	15950		
	1.2	0.60	16420		
	1.0	0.56	16984		
	0.8	0.51	17658		
27	2.8	0.99	26950	40244	3.96
	2.4	0.90	27248		
	2.2	0.85	27920		
	2.1	0.76	28640		
	1.8	0.70	29580		
30	1.80	0.69	19820	27830	4.79
	1.50	0.64	20820		
	1.30	0.58	21290		
	1.10	0.54	21940		
	0.90	0.50	22410		
32	2.80	0.84	19250	25974	5.53
	2.00	0.77	20095		
	1.80	0.71	20972		
	1.50	0.64	21778		
	0.70	0.47	23086		
35	1.40	0.65	12920	18187	6.87
	1.10	0.52	13860		
	0.90	0.48	14300		
	0.70	0.43	14860		
	0.60	0.40	15310		
40	1.80	0.69	36452	45208	7.62
	1.50	0.64	37220		
	1.30	0.58	38078		
	1.10	0.54	38912		
	0.90	0.50	39574		

2.2 氡的溶解度系数与温度的关系

表 1 数据表明, 氡的溶解度系数虽也随温度升高而降低, 但由于压力的变化, 氡的溶解度系数不再满足式(1)^[11]。

氡溶解度系数随温度升高而降低, 是因为氡由于水合作用溶解于水中, 氡原子与水分子暂时结合, 但这种结合过程不稳定, 随温度升高, 分子运动加快, 这种结合平衡被打破, 溶解于水中的氡缓慢析出, 因而氡的溶解度系数逐渐降低。

2.3 温度与压力对氡的溶解与析出的影响

表 1 表明, 氡的溶解度系数随压力增大而增大。当温度一定时, 气体的溶解在低压时服从 Henry 定律^[2]。氡在压力作用下溶解度增大, 溶解到水中的氡与水分子暂时结合。但由于氡自身有衰变特性, 且氡在空气中的扩散系数比在水中的大 4 个数量级, 因而气相中氡承受的分压逐渐减小, 液相中氡逐渐析出。

2.4 预测氡的溶解度系数的 ANFIS 模型

以压力 P 和温度 T 为输入, 以氡溶解度系数 α 为输出, 根据表 1 的实际数据, 构建 40 组数据对。选取 32 组对 ANFIS 训练, 得到预测氡的溶解度系数 α 的 ANFIS 模型, 如图 2 所示。

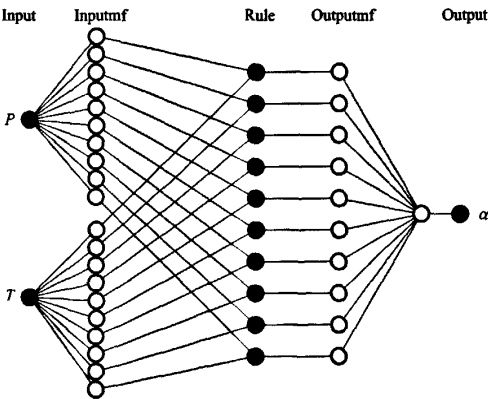


图 2 预测氡的溶解度系数的 ANFIS 模型
Fig.2 ANFIS model for predicting radon dissolution coefficient.

模型的输出隶属度函数用一阶 Sugeno 模型, 训练用混合学习算法。当训练误差与预测误差达到最佳时结束训练, 训练总次数为 5 次, 训练数据的最小均方根误差为 0.012033。

采用预测模型对余下 8 组数据对预测, 预测结果如表 2 所示。

表 2 试验结果与预测值的比较
Table 2 Comparison of test results with predicted results.

温度 $T/^{\circ}\text{C}$	压力 /kPa Pressure	溶解度系数 Dissolution coefficients		相对误差 Relative error /%
		测量值 Measured	预测值 Predicted	
18	1.4	0.84	0.87	3.2
20	1.5	0.79	0.80	1.2
23	1.2	0.60	0.58	3.0
27	2.2	0.85	0.80	5.8
30	1.3	0.58	0.59	1.1
32	1.8	0.71	0.71	0.2
35	0.9	0.48	0.47	1.2
40	1.5	0.53	0.54	4.3

3 结论

(1) 氡的溶解与析出受温度和压力两者影响; (2) 压力一定时, 氡的溶解度系数随温度升高而降低; (3) 温度一定时, 溶解度系数随压力增大而增大, 反之随压力减小而减小; (4) 氡的溶解度系数与温度、压力之间的关系为高度非线性关系, 难以用传统数学方法描述; (5) 用 ANFIS 建立根据温度和压力预测氡溶解度系数的 ANFIS 模型, 其预测精度高达 94% 以上, 可满足工程应用的要求, 为预测氡溶解度系数开辟了新途径。

参考文献

1 丁德馨, 邹国和. 低品位铀矿床留矿-原地浸出试验研究. 北京: 原子能出版社, 1998. 9-11
DING Dexin, ZHOU Guohe. A case study of shrinkage-in place leaching of low grade uranium ore deposit. Beijing: Atomic Energy Press, 1998. 9-11

2 付晓泰, 王振平. 中国科学, 1996, (4): 124-130
FU Xiaotai, WANG Zhenping. Science in China, 1996, (4): 124-130

3 Colin Barker. AAPG, 1987, (11): 1404-1413

4 Namiot A, Skripka V, Ashmyan. Influence of Water-dissolved salt upon methane solubility under the temperatures 50-350 $^{\circ}\text{C}$. Moscow: Geokhimiya, 1979, (1): 147-149

5 Garcia-Vindas J R, Monnin M M. Radiat Meas, 2005, (39): 319-322

6 童景山, 李 辉. 工程热物理学报, 1988, (11): 307-309
TONG Jingshan, LI Hui. J Eng Thermophys, 1988, (11): 307-309

7 付晓泰, 王振平. 石油学报, 1998, (1): 79-84
FU Xiaotai, WANG Zhenping. Acta Pet Sin, 1998, (1):

- 79-84
- 8 刘晨光, 阙国和. 炼油设计, 1999, (29): 33-36
LIU Chenguang, QUE Guohe. Pet Refinery Eng, 1999, (29): 33-36
- 9 马 军, 邵丽莉. 化工设计, 2006, (5): 21-24
MA Jun, SHAO Lili. Chem Eng Des, 2006, (5): 21-24
- 10 高雅琴. 川西坳陷须家河组天然气溶解、脱气物理化学机理研究. 成都, 2008
GAO Yaqin. Physical and chemical mechanism on dissolving and evolved gas of water soluble natural gas at west Sichuan depression Xujiahe. Chengdu, 2008
- 11 张 哲. 氡的析出与排氧通风. 北京: 原子能出版社, 1982. 13-14
ZHANG Zhe. The radon emanation and exhaust ventilation. Beijing: Atomic Energy Press, 1982. 13-14
- 12 张 伟, 张新基. 中国地震, 1994, (7): 223-240
ZHANG Wei, ZHANG Xinji. China Earthquake, 1994, (7): 223-240

Experimental studies on radon dissolution and emission

CHEN Xiang XU Wenping LI Guangyue DING Dexin

(School of Nuclear Resource and Safety Engineering, Nanhua University, Hengyang 421001, China)

Abstract Radon concentrations were measured in an apparatus at different temperatures and pressures. Radon dissolution coefficient was calculated at corresponding temperature and pressure. ANFIS model was established to predict radon dissolution coefficient at different temperatures and pressures. The results show that radon dissolution coefficient in water decreases with pressure, but increases with decreasing temperatures. The ANFIS model can predict the radon dissolution coefficient accurately.

Key words Radon, Dissolution, Emanation, Dissolution coefficient, ANFIS

CLC P631.6