

稳定元素 Sr 在土柱中的迁移

杨月娥, 李洋, 潘伟, 王志明, 倪世伟

(中国辐射防护研究院, 山西太原 030006)

摘要:文章涉及稳定元素 Sr 在现场进行的水平土柱示踪实验和在实验室进行的垂直土柱模拟实验的实验方法和实验结果。实验结果表明:黄土对 Sr 有较强的吸附能力;实验室垂直土柱模拟实验的轴心纵向延迟系数略小于外侧纵向的数值;含水层水平土柱中 Sr 的延迟系数略小于实验室垂直土柱模拟实验的结果,这可能是由于土柱中的水流速度和土壤的密度不同而造成的。

关键词:土柱; Sr; 实验场示踪实验; 实验室模拟实验; 延迟系数

中图分类号: TL942.1

文献标识码: A

文章编号: 1000-6931(2006)03-0292-05

Migration of Stable Element Sr in Soil Columns

YANG Yue-e, LI Yang, PAN Wei, WANG Zhi-ming, NI Shi-wei

(China Institute for Radiation Protection, P. O. Box 120, Taiyuan 030006, China)

Abstract: The methods and results of field tracer experiment in horizontal soil columns and laboratory-simulation experiment in vertical soil columns were presented. The results show that loess has stronger sorption ability for Sr, and longitudinal retardation coefficient at central axis is less than that at outer wall at laboratory simulation experiment in vertical columns. Retardation coefficient of Sr in horizontal columns in aquifer is slightly less than that of laboratory simulation experiment in vertical columns, which is possibly caused by the different densities of soil and flow velocity in columns.

Key words: soil column; Sr; field tracer experiment; laboratory simulation experiment; retardation coefficient

研究放射性核素在地质介质中的迁移行为对放射性废物最终处置的安全评价极为重要。使用放射性核素进行实验,从整个实验过程到实验样品的测量,对操作人员、工作场所、实验设施和测量设备均需进行防护,这给实验工作带来了很大困难。用稳定元素代替放射性核素研究放射性核素的迁移行为,则可简化某些工作程序,并可减小工作量。因此,在对放射性核

素进行研究的同时,进行稳定元素在地质介质中迁移行为的研究同样重要。

包气层中元素主要通过降水入渗沿垂向进行迁移,而在含水层则主要沿地下水水平运动进行迁移。本文主要介绍实验场水平土柱实验和实验室垂直土柱模拟实验所采用的实验方法,比较两种方法的实验结果,分析稳定元素 Sr 在土壤中的迁移行为及土柱中水流速度对

Sr 延迟系数的影响。

1 实验场水平土柱示踪实验

1.1 实验设施

现场示踪实验在中国辐射防护研究院(CIRP)野外实验场进行。该实验场位于 CIPR 正东 15 km 处。实验场地表以下 60 m 内的含水层可分为上部潜水含水层和下部承压含水层。本实验在距地面下 31 m 处的潜水含水层进行。潜水含水层介质为带有钙质结核的亚粘土(粉土),属弱含水层。含水层中的潜水矿化度一般低于 0.5 mg/L,为 $\text{HCO}_3\text{-Na}$ 型或 $\text{HCO}_3\text{-Na, Ca, Mg}$ 型地下水。实验场土壤主要为黄土,其矿物成分一般包括重矿物、轻矿物和胶体分散矿物。土壤中以石英、长石类为主,粘土类及方解石次之。土壤颗粒以粉土为主,粒径主要分布在 0.005~0.01 mm 范围内。阳离子交换容量范围为 0.12~0.28 meq/g。土壤的干容重为 1.62 g/cm³;有效孔隙度为 25.4%;使用冲击实验测得该含水层的渗透系数为 $(4.7\sim 6.6)\times 10^{-4}$ cm/s。

实验场的地下研究设施(URF)^[1] 专为进行含水层现场示踪实验而建造。URF 主洞底板埋深 29 m,位于地下水水位之上 2 m 处。水平土柱迁移实验在 URF 的实验竖井^[2] 中进行。水平土柱^[2] 由两段未扰动土柱、法兰盘、取样端盘和取样管组成。

1.2 示踪源

示踪元素为 Sr、Nd、Ce 和 Br⁻,其中,Br⁻ 作为不吸附示踪剂,用于测定地下水的流速。示踪剂分别为 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{NdCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{CeCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 和 NaBr。

本实验的示踪源载体为石英砂,其粒径为 $(1.77\sim 4.20)\times 10^{-4}$ m。根据土柱实验中对示踪剂浓度的要求确定示踪剂的总量^[2]。将所需 Sr、Nd、Ce 的氯化物和 NaBr 溶于一定体积的蒸馏水中,配制成示踪剂溶液;将该溶液滴注到石英砂中,然后混合均匀;稳定元素示踪剂的含水率为 7.52%。制备好的示踪剂^[3] 封装在双层塑料袋内备用。

本实验采用的示踪源层为面源。示踪剂的投放方法为:将一段土柱置于直立位置,刮平土柱内的土壤表面;将封装在塑料袋内的示踪剂

投放到土壤表面,整平示踪源层;在示踪源层上部回填同类型扰动土。将铺设源层后的土柱与另一段土柱对接,作为实验所用的水平土柱。

示踪源投放在 1[#] 土柱中,土柱尺寸为 $\phi 10.8\text{ cm}\times 100\text{ cm}$,Sr 用量为 4.524 g,示踪源层尺寸为 $\phi 10.8\text{ cm}\times 0.5\text{ cm}$ 。

1.3 实验方法

将装入示踪剂的土柱通过实验竖井壁水平插入含水层,使其一端直接与含水介质紧密相接,借助于水头差让天然地下水流过土柱,使预先装入土柱的示踪剂在水动力作用下迁移,从另一端的取样管接取水样;通过测量实验期间采集的水样和实验结束后切割的土壤样品中示踪剂的浓度得到示踪剂的迁移数据。

本实验采用 721 型分光光度仪测量水中的 Br⁻。

实验结束后,从竖井插孔取出土柱,并将其沿轴向(纵向)切割成所需规格的土壤样品,经风干后用等离子发光谱仪(ICP)对土壤中 Sr 的分布进行测量。土壤样品采用 CIRP 自行研制的切割装置进行切割,切割厚度均为 3 mm。

1.4 实验结果

1) 水流速度

图 1 示出了 1[#] 土柱流出液中 Br⁻ 的穿透曲线。通过 Br⁻ 的穿透曲线可得出土柱中的水流速度。在实验期间,1[#] 土柱的水流速度为 1.36 cm/d^[4]。

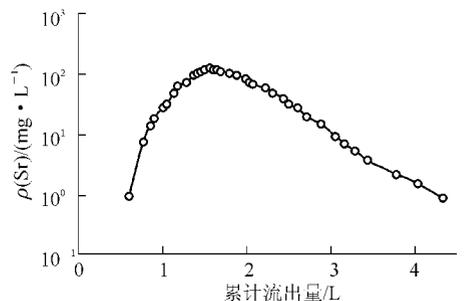


图 1 1[#] 水平土柱流出液中 Br⁻ 的穿透曲线
Fig. 1 Breakthrough curve of Br⁻ in effluent of horizontal column 1[#]

2) 实验期间示踪元素的迁移速度和延迟系数

示踪元素的迁移速度可用下式计算:

$$u_N = X_{\max} / t \quad (1)$$

式中: u_N 为示踪元素的迁移速度, cm/d; X_{max} 为质心的位移, cm; t 为示踪元素的迁移时间, d。

示踪元素的延迟系数为:

$$R_d = \frac{u_w}{u_N} \quad (2)$$

式中: R_d 为延迟系数, 无量纲; u_w 为水流速度, cm/d。

示踪元素浓度分布的质心和方差用矩方法进行计算。用一次矩计算质心的位置, 用二次矩计算浓度分布的方差。

图2示出了Sr在1#土柱土壤中的浓度分布。Sr的迁移速度为质心位移除以迁移时间的商, 它与水流速度有关。因此, 用延迟系数 R_d 能更清楚地表达元素的吸附性能。Sr在1#土柱中的延迟系数为94, 浓度分布方差为 98 cm^2 。

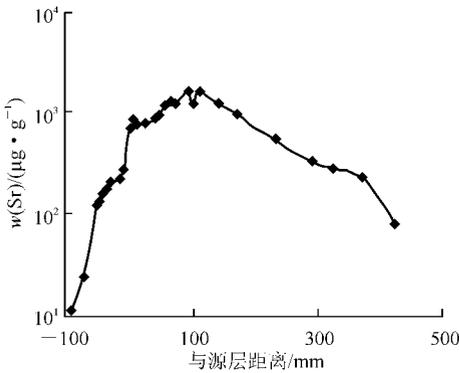


图2 1#水平土柱土壤中稳定元素Sr的分布

Fig. 2 Concentration distribution

of stable element Sr in horizontal soil column 1#

2 包气带模拟实验

2.1 模拟实验设施

包气带土柱模拟实验在实验室垂直土柱中进行。模拟实验设施由实验土柱、人工降雨喷淋器、土柱旋转装置及 γ 射线测量系统等组成。设施示意图示于图3。在实验装置的下端(土柱出水口处)嵌入1个“芯吸管”装置^[5], 在其作用下, 使实验土柱处于含水率较低的、均匀稳定的非饱和状态。

实验室使用的土柱装填的是从CIRP野外实验场采集的包气带原状土壤。实验土壤的干容重为 1.35 g/cm^3 。

2.2 人工喷淋

为增大模拟实验土柱中示踪剂的迁移速

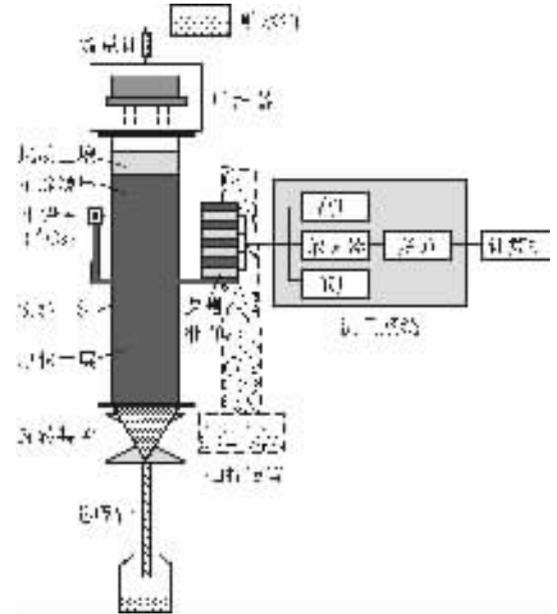


图3 模拟实验土柱装置图

Fig. 3 Column device of modeling test

度, 对土柱采用人工喷淋方式, 以获得较强的非饱和和入渗水流。

喷淋器由外壳、振动发生器、针头和流量计等组成。喷淋面积与土柱横截面积相同。喷淋器和实验土柱上端均由喷淋器外壳密封, 避免在实验期间的水分蒸发。实验用水为蒸馏水, 喷淋强度为 $5.5 \sim 5.6 \text{ mm/d}$ 。

2.3 示踪剂

示踪元素为Sr、Nd和Ce, 示踪剂分别为 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{NdCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 和 $\text{CeCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 。示踪源载体及示踪剂的制备与现场示踪实验的制备方法相同。模拟土柱内示踪剂的用量列于表1。

在实验土柱中建立稳定的非饱和流场后, 把混合好的载源石英砂缓慢倒入预定的土柱柱面, 用刮平器刮平, 形成7 mm厚的示踪源层; 然后, 在示踪源层上覆盖10 cm厚的扰动土壤层; 最后, 装入3.5 cm厚的石英砂层。

2.4 实验土柱的稳定流场

1) 含水量分布

土柱中的含水量分布采用 γ 射线透射的强度衰减测定法。该方法在不破坏土壤结构、不影响土柱内流场的前提下, 可对土柱中的土壤含水量进行时间和空间上的连续测量。该方法测量范围大、灵敏度高, 能有效降低土柱中示踪

表 1 模拟土柱的主要参数

Table 1 Main parameters of simulative soil column

模拟土柱	土柱尺寸	示踪层尺寸	Sr 用量/g	喷淋强度/(mm · d ⁻¹)
3 [#]	φ280 mm×1 200 mm	φ280 mm×7 mm	16.50	5.5
4 [#]	φ150 mm×1 000 mm	φ150 mm×7 mm	4.73	5.6

元素的干扰。

在标定的基础上,对投放有放射性示踪剂的 2[#] 模拟土柱的含水量进行了测定,2[#] 土柱的喷淋强度为 5.6 mm/d。在该土柱的示踪剂迁移段(0~35 cm),体积含水量的测定范围介于 19.8%~21.6%之间,平均值为 21%^[5]。

2) 水流速度

在 C[#] 土柱中,通过¹³¹I 示踪实验测量出的水流速度(4.4~4.5 cm/d)与由式(1)估算的流速值(4.3 cm/d)基本相同。水流速度的差异是由不同的喷淋强度和含水量引起的。在上述含水量范围内,由式(1)可估算出模拟土柱中的水流速度。利用 3[#] 和 4[#] 模拟土柱的喷淋强度(5.5~5.6 cm/d)估算得出的水流速度为 2.6 cm/d。这一水流速度可用于土柱中示踪剂迁移实验结果的分析。

2.5 土柱的解体与样品测量

3[#] 模拟土柱的解体是沿土柱径向不同距离处取 3 个土芯样。土芯样的直径为 4.5 cm,土壤样品厚度为 0.5~1.0 cm。土芯样的位置分别为土柱中心(A)、距土柱中心 7.2 cm 处(B)和 9.7 cm 处(C)。取样工具为小型手动压入式土壤取样器。4[#] 模拟土柱是通过沿土柱轴向(纵向)切割土壤样品。样品直径为 15 cm,厚度为 0.2 cm。经风干后的土壤样品用等离子发光谱仪(ICP)进行测量。

2.6 实验结果

图 4 示出了 3[#] 模拟土柱中编号为 A、B、C 的 3 个取样柱中 Sr 的垂向浓度分布。图 5 示出了 4[#] 模拟土柱 Sr 的垂向浓度分布。Sr 在 3[#]、4[#] 模拟土柱中延迟系数的拟合结果列于表 2。

从表 2 可以看出,3[#] 和 4[#] 模拟土柱的延迟系数基本相同;3[#] 模拟土柱轴心纵向延迟系数略小于外侧的数值。

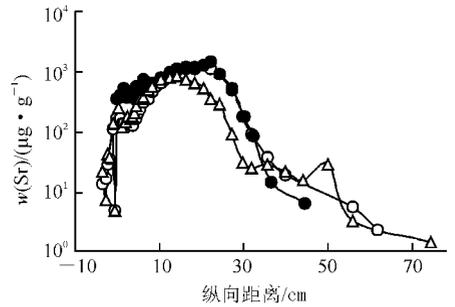


图 4 3[#] 模拟土柱中 Sr 的垂向浓度分布
Fig. 4 Concentration distribution of Sr along vertical direction in simulative soil column 3[#]
迁移时间 821 d

○——取样点 A; ●——取样点 B; △——取样点 C

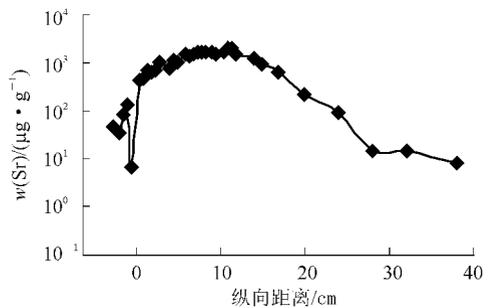


图 5 4[#] 模拟土柱中 Sr 的垂向浓度分布
Fig. 5 Concentration distribution of Sr along vertical direction in simulative soil column 4[#]
迁移时间 455 d

表 2 Sr 延迟系数 R_d 的拟合结果

Table 2 Fitted result of retardation coefficient(R_d) of Sr

土柱编号	取样点	实验时间/d	R _d	浓度分布方差 σ _x ² /cm ²
3 [#]	A	821	117	54.8
	B	821	127	57.0
	C	821	140	63.6
4 [#]		455	118	29.8

3 结论

1) 无论是在饱水还是非饱水黄土中, Sr 的延迟系数均在 90 以上, 表明 Sr 的迁移速度约是水流速度的百分之一, 这说明黄土对 Sr 有较强的吸附能力。

2) 实验室垂直土柱模拟实验获得的延迟系数大于实验场水平土柱示踪实验的结果, 这可能是由于实验室模拟实验土柱的水流速度大于实验场示踪实验土柱的水流速度所致, 也可能与实验场水平土柱内的容重大于实验室垂直模拟土柱内土壤的容重有关。这一结果与文献[6]的结论吻合。

参考文献:

- [1] 李书绅, 王志明, 赵英杰, 等. 地下研究设施 (URF) 的设计与建造: CIRP/073, ZL/2001-0005/P64[R]. 太原: 中国辐射防护研究院, 2001.
LI Shushen, WANG Zhiming, ZHAO Yingjie, et al. Design and construction of underground research facility (URF): CIRP/073, ZL/2001-0005/P64[R]. Taiyuan: China Institute for Radiation Protection, 2001 (in Chinese).
- [2] 杨月娥, 王志明, 刘春立, 等. 核素在水平组件迁移的现场示踪试验[J]. 辐射防护, 2003, 23(1): 30-36.
YANG Yuee, WANG Zhiming, LIU Chunli, et al. Field tracer migration test in horizontal assembly. Radiation Protection, 2003, 23(1): 30-36(in Chinese).
- [3] 郭亮天, 郭择德, 赵英杰, 等. 示踪源的制备与示踪剂的测量: CIRP/073, ZL/2001-0005/X82 [R]. 太原: 中国辐射防护研究院, 2001.
GUO Liangtian, GUO Zede, ZHAO Yingjie, et al. Preparation of tracer sources and measurement of tracer: CIRP/073, ZL/200-0005/X82 [R]. Taiyuan: China Institute for Radiation Protection, 2001 (in Chinese).
- [4] 王志明, 李书绅, 杨月娥, 等. 核素在含水层迁移的现场示踪实验: CIRP/073, ZL/2001-0008/X82[R]. 太原: 中国辐射防护研究院, 2001.
WANG Zhiming, LI Shushen, YANG Yuee, et al. Field tracer migration test of nuclides in aquifer: CIRP/073, ZL/2001-0005/X82 [R]. Taiyuan: China Institute for Radiation Protection, 2001 (in Chinese).
- [5] 郭择德, 倪世伟, 李书绅, 等. 包气带中核素迁移模拟实验: CIRP/073, ZL/2001-0011/X82[R]. 太原: 中国辐射防护研究院, 2001.
GUO Zede, NI Shiwei, LI Shushen, et al. Modeling test of nuclide migration in aerated zone: CIRP/073, ZL/2001-0011/X82 [R]. Taiyuan: China Institute for Radiation Protection, 2001 (in Chinese).
- [6] 王志明, 郭谦, 李书绅, 等. 水流速度对锶迁移影响的实验研究[J]. 原子能科学技术, 2003, 37(4): 320-324.
WANG Zhiming, GUO Qian, LI Shushen, et al. Experiment on effect of water flow velocity on the migration of strontium[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2003, 37(4): 320-324 (in Chinese).