

放射性核素在饱和浙江红粘土中的迁移*

白庆中, 聂永丰, 李国鼎 (清华大学环境科学与工程系, 北京 100084)

摘要: 用分层土柱法研究放射性核素在浙江红粘土介质中的迁移规律. 通过为期28d的饱和土柱动态吸附-解吸实验, 测定了 ^{137}Cs 、 ^{85}Sr 、 ^{60}Co 、 ^{144}Ce 、 ^{155}Eu 和 ^{237}Np 6种放射性核素在浙江红粘土样品中的垂直剖面浓度分布及其迁移速度. 为便于根据实际场址的入渗水通量确定这些核素的滞留因子, 进行了氡弥散实验, 测定了土壤有效孔隙率和土壤中水运移速度. 根据土柱装填密度、有效孔隙率和土壤中水运移速度, 计算出上述核素在红粘土中的吸附分配系数和滞留因子. 结果表明: 浙江红粘土对 ^{137}Cs 、 ^{85}Sr 、 ^{60}Co 、 ^{144}Ce 、 ^{155}Eu 和 ^{237}Np 6种核素均有较大的吸附分配系数和滞留因子; 对 ^{137}Cs 的吸附分配系数和滞留因子分别为 $2388\text{ m}^3\cdot\text{g}^{-1}$ 和7732, 对 ^{85}Sr 的吸附分配系数和滞留因子分别为 $1432\text{ m}^3\cdot\text{g}^{-1}$ 和4645.

关键词: 红粘土, 核素迁移, 分配系数, 滞留因子, 有效孔隙率.

中图分类号: X837 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2000)01-0071-04

Radioactive Nuclide Migration Experiment in Saturated Zhejiang Red Clay

Bai Qingzhong, Nie Yongfeng, Li Guoding (Department of Environmental Science and Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084)

Abstract: This paper probes into the radioactive nuclide migration mechanism in the red clay by layered clay column method. The vertical section concentration distribution and their migration velocity of six kinds of radioactive nuclides, such as ^{137}Cs , ^{85}Sr , ^{60}Co , ^{144}Ce , ^{155}Eu and ^{237}Np , were measured by 28 days saturated clay column dynamic adsorption-desorption experiment. In order to calculate the retardation factor of these nuclides according to the water infiltration flux in site the diffusion experiment was conducted, and the flow velocity and the soil coefficient porosity were also measured. And the retardation factor and adsorption distribution coefficient of these nuclides in red clay were calculated by clay column loading density, effective porosity, and flow velocity in soil. The results showed that Zhejiang red clay has high adsorption distribution coefficients and retardation factors to ^{137}Cs , ^{85}Sr , ^{60}Co , ^{144}Ce , ^{155}Eu and ^{237}Np . The adsorption distribution coefficients and retardation factor to ^{137}Cs are $2388\text{ m}^3\cdot\text{g}^{-1}$ and 7732 respectively, and the adsorption distribution coefficients and retardation factor to ^{85}Sr are $1432\text{ m}^3\cdot\text{g}^{-1}$ and 4645 respectively.

Keywords: red clay, nuclides migration, distribution coefficient, retardation factor, effective porosity.

核素在包气带土层中的迁移参数, 是核废物安全处置场选址和工程设计的基础资料. 而核素在包气带土层中的迁移速度, 与土壤中的水通量和核素在土壤中的吸附滞留有关. 我国东南部地区不但降水量大, 而且地表包气带土壤多为红土, 目前尚无放射性核素在红土介质中的吸附滞留数据可用. 本研究通过饱和和动态土柱吸附-解吸实验, 对混合放射性核素在红土介质中迁移规律进行了研究.

1 核素在土壤中迁移及参数测定的基本原理

核素在包气带中迁移, 是土壤水运动和核素与土壤间各种物理化学作用的结果. 由于大气降水是通过包气带土层垂直下渗进入地下水层, 故可用一维迁移方程来描述核素在包气带中迁移规律.

* 国家环境保护总局科研基金资助项目
作者简介: 白庆中(1946~), 男, 硕士, 副教授, 主要研究方向为固体废物控制及核环境工程.
收稿日期: 1999-06-29

假设包气带土壤为均匀多孔介质,核素在土壤-水之间的平衡吸附符合亨利定律,则在均匀一维流场中,核素在包气带土层中的迁移转化的基本规律可用下述一维溶质迁移方程来描述.

$$R_d \frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} - v \frac{\partial c}{\partial z} - \lambda R_d c$$

$$\text{或 } R_d \frac{\partial S}{\partial t} = D \frac{\partial^2 S}{\partial z^2} - v \frac{\partial S}{\partial z} - \lambda R_d S \quad (1)$$

式中, t 为时间; z 为垂向坐标, 向下为正; D 为水力弥散系数; v 为土壤水的实际运移速度; λ 、 R_d 分别为放射性核素的衰变常数及在土壤介质中的滞留因子; c 和 S 则分别为 t 时刻在位置 z 处核素在土壤水中的浓度和在土壤中的吸附量.

放射性核素在土壤介质中的滞留因子 (R_d), 定义为:

$$R_d = \frac{\text{土壤水实际运移速度}}{\text{核素在土壤中的迁移速度}} = \frac{v}{v'} \quad (2)$$

滞留因子 R_d 与吸收分配系数 K_d , 土壤有效孔隙率 η_e 和堆积密度 ρ_b , 有下述关系:

$$R_d = 1 + K_d \rho_b / \eta_e \quad (3)$$

根据室内饱和土柱氚弥散实验和核素吸附-解吸实验结果, 解迁移方程逆问题, 可以确定出土壤水运移速度、有效孔隙率、水力弥散系数, 以及核素在饱和土壤介质中的滞留因子和吸附分配系数. 也可通过氚弥散流出曲线和核素在土柱中的垂直剖面浓度分布曲线, 采用下述简单公式来确定土壤水运移速度 v 和核素在土壤中的迁移速度 v' , 然后用式(2)求出滞留因子.

$$v = z/t_p \quad (4)$$

$$v' = z_p/t \quad (5)$$

式中, t_p 为氚弥散实验流出曲线出现峰值时间, z 为土柱长; t 为核素吸附-解吸持续时间, z_p 为核素在土柱中垂直剖面浓度分布曲线上出现峰值的垂直坐标.

为求吸附分配系数, 可由土壤水运移速度 v 和实验过程的达西水流通量 q 求出土壤有效空隙率 η_e , 然后通过式(3)来计算, 即为:

$$\eta_e = q/v \quad (6)$$

$$K_d = (R_d - 1)\eta_e/\rho_b \quad (7)$$

在确定实际场址地点的核素滞留因子时, 应采用实验所得吸附分配系数值, 根据其土壤堆积密度和有效空隙率, 用式(3)来计算确定.

2 实验装置及实验样品

实验装置如图1所示. 土柱壳体由28片5mm厚、外径84mm、内径48mm的有机玻璃片叠加组合, 用 $\phi 6$ mm螺栓连接并固定. 土柱下端法兰盘内嵌有一微孔塑料板以支撑土壤和收集土壤水; 土柱上法兰盘与土壤之间留有一厚2mm的空间, 以保证进水、进样的均布. 进水进样单元由用三通阀与柱顶进水管连接在一起的马氏管和马氏瓶组成, 马氏瓶用于维持长时间稳定恒定进水, 马氏管用于加入实验的样品溶液, 三通阀则用于切换水和样品溶液的加入.

实验用土样取自浙江金华地表1m下红粘土, 风干后压碎过筛, 重量含水率为6.35%.

实验用水样以1AW废液为基础, 加入 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 和 ^{85}Sr 等放射性核素, 并加水稀释, 其放射化学组成如表1所示.

表1 示踪溶液放射化学组成

核素	半衰期	比放射性强度/ $\mu\text{Ci}\cdot\text{L}^{-1}$
^{60}Co	5.27a	2.058
^{85}Sr	65d	3.00
^{137}Cs	30.1a	107.754
^{144}Ce	284.2d	1.079
^{155}Eu	1.7a	2.08
^{237}Np	$2.14 \times 106\text{a}$	2.82

3 实验过程及结果

3.1 装柱与洗柱

按土壤干堆积密度 $1.20\text{g}/\text{cm}^3$ 分层装填土样. 每层厚1cm, 压实后扰动表层土面后再继续向上装填. 土柱装满后封柱, 与进水进样单元相连, 进行洗柱, 使柱内土壤的物化性质趋于稳定.

3.2 氚弥散实验及结果

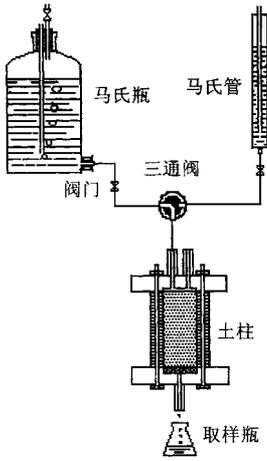


图1 分层土柱试验装置简图

弥散实验样品中氚的浓度用液体闪烁法检测,所用仪器为 FJ-2101 型双道液体闪烁仪,其测量极限为比放射性强度 $> 0.37\text{Bq/ml}$ 。氚弥散实验流出曲线如图2所示。

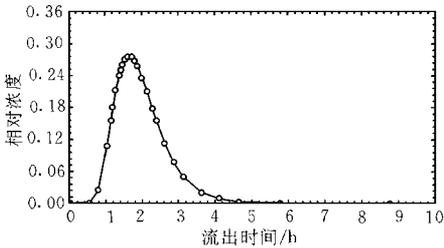


图2 饱和浙江红土柱氚弥散实验曲线

3.3 放射性核素迁移实验

采用等浓度加样方式,加入放射性溶液 200ml ,加样时间为 3h 。解吸实验延续 24d 。在整个实验过程中,出水流量波动不大,平均值为 $Q = 1.12\text{ml/min}$ 。核素迁移实验结束后,分层拆开土柱,用 ND-66 多道 γ 谱仪测量每层土样中的各核素计数。将土样自圆片中取出送至烘箱内在 110°C 下烘干 24h ,再置于干燥皿内冷却到室温后称重。最后计算出每层土壤的比放射性强度。根据测定结果所绘制出的放射性核素在饱和红粘土柱中的垂直剖面浓度分布示于图3中。

4 实验结果讨论

4.1 土壤水运移速度及土层有效孔隙率

在氚弥散实验中,土壤水流量恒定为 $q = 3.648\text{cm/h}$ 。弥散曲线出现最大浓度的流出时间 $t_p = 98\text{min}$,土壤水流速 $v = 9.80\text{cm/h}$,土壤有效孔隙率 $\eta_e = 0.372$ 。

根据实验结果,采用解迁移方程逆问题的方法求出柱参数如下:土壤水流速度 $v = 9.71\text{cm/h}$,土壤有效孔隙率 $\eta_e = 0.376$,水动力弥散系数 $D = 12.22\text{cm}^2/\text{h}$,水力弥散度 $\alpha = 1.26\text{cm}$ 。2种方法所得的数值一致,说明可以用简化的公式来确定土壤水流速度和土壤有效孔隙率。

4.2 核素在饱和浙江红粘土中的迁移参数

从 ^{137}Cs 、 ^{85}Sr 、 ^{60}Co 、 ^{144}Ce 、 ^{155}Eu 和 ^{237}Np 在土柱中的垂直剖面浓度分布曲线上找出各核素峰值位置 z_p ,根据各核素峰值位置 z_p 和吸附-解吸实验时间计算出的核素迁移速度 v' 、滞留因子 R_d 以及吸附分配系数 K_d 列于表2中。在实验过程中的土壤水运移速度 $v = 242\text{cm/d}$ 。

表2 核素在饱和浙江红土柱中的迁移参数

核素	峰值位置/cm	核素迁移速度 / $\text{cm} \cdot \text{d}^{-1}$	滞留因子 R_d	吸附分配系数 $K_d/\text{ml} \cdot \text{g}^{-1}$
^{137}Cs	0.75	0.0313	7732	2388
^{85}Sr	1.25	0.0521	4645	1432
^{60}Co	2.75	0.1146	2112	651
^{144}Ce	5.75	0.2396	1010	312
^{155}Eu	6.75	0.2813	860	265
^{237}Np	6.75	0.2813	860	265

由表2所列数据可知,所研究的这6种核素在浙江红土中的分配系数和滞留因子都很大,均在 10^2 数量级以上。其中 ^{137}Cs 的分配系数和滞留因子最大, ^{155}Eu 和 ^{237}Np 迁移最快。

5 结论

(1) 在氚弥散实验中,当土壤干密度为 1.2g/cm^3 ,水力梯度为 7.625 时,测得浙江红粘土的空隙流速为 9.8cm/h ,土壤有效孔隙率为 0.372 。

(2) 土柱迁移实验表明,浙江红粘土对 ^{137}Cs 、 ^{85}Sr 、 ^{60}Co 、 ^{144}Ce 、 ^{155}Eu 和 ^{237}Np 6种核素均

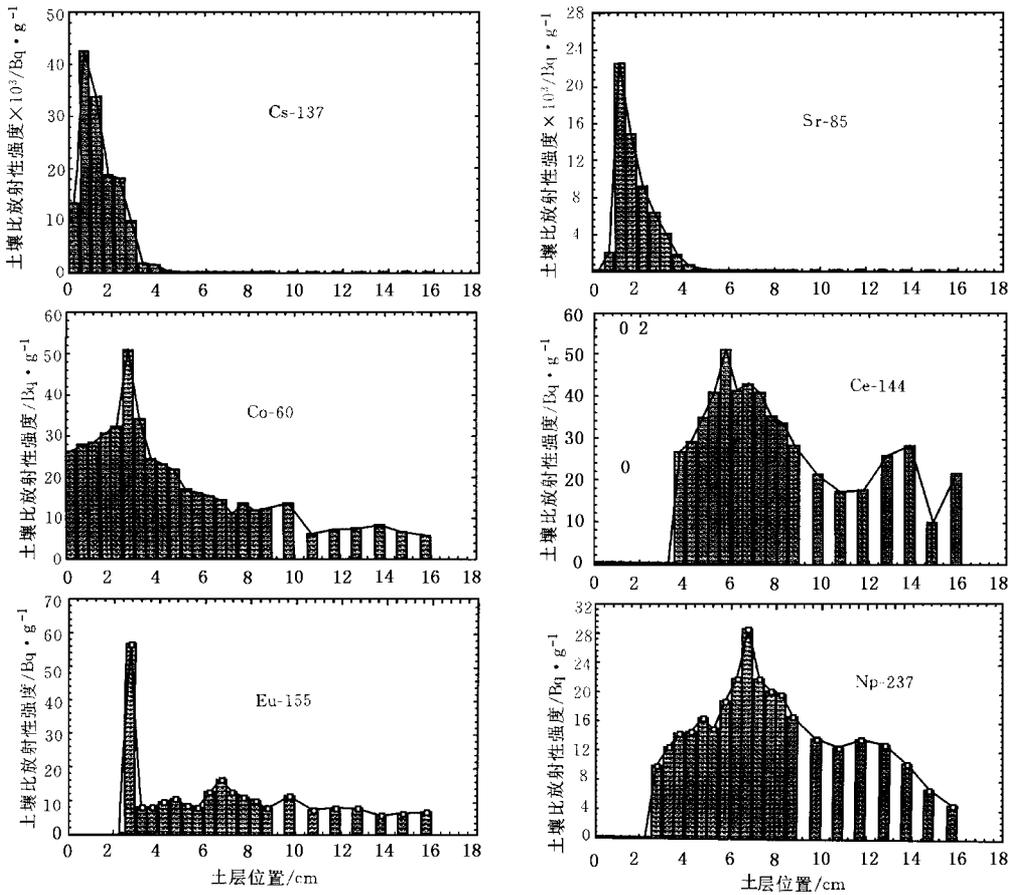


图3 放射性核素在浙江红土饱和土柱中垂直剖面浓度分布

有较大的吸附分配系数和滞留因子。

(3)在6种混合核素中,红粘土对 ^{137}Cs 和 ^{85}Sr 的吸附分配系数和滞留因子最大, ^{137}Cs 和 ^{85}Sr 在红粘土中迁移速度较慢;对 ^{155}Eu 和 ^{237}Np 的吸附分配系数和滞留因子最小,迁移速度较快。

参考文献

- 1 白庆中,袁光钰.放射性Cs、Sr在土壤中迁移的研究.清华大学学报,1989,29(6):69~74
- 2 孙荣印.放射性元素在水和岩石中的分配系数的测定以及裂变产物在地下水中的迁移.辐射防护,1983