³H 和⁹⁰Sr 示踪剂在土壤包气层示踪 实验中的应用

武清华,冀绍伟,刘莲英,赵英杰,张华,王玉兵,李云峰,黄庆春 (中国辐射防护研究院,山西太原 030006)

摘要:本工作测定了土壤包气层中³ H 和⁹⁰ Sr 在天然条件和人工喷淋条件下的扩散系数,并研究了³ H 和⁹⁰ Sr 示踪剂在黄土包气层中的迁移行为。结果表明,在华北地区黄土高原天然条件下,包气层中氘 示踪剂以 0.03 cm/d 速度迁移,纵向扩散系数 D_x 为 0.52 cm²/d;在 2 m×2 m 实验坑中,以 5 mm/h 喷淋强度每天喷淋 3 h 的条件下, 氚示踪剂以 2.27 cm/d 的速度向下迁移, 纵向扩散系数 D_x 为 7.75 cm²/d。包气层中天然条件下⁹⁰ Sr 基本没有迁移; 人工喷淋条件下, ⁹⁰ Sr 以 3.7×10⁻³ cm/d 速度迁移, 纵向扩散系数 D_x 为 0.03 m²/d。

关键词:³H;⁹⁰Sr;示踪实验;土壤包气层

中图分类号:0615.4;TL942 文献标识码:A 文章编号:1000-7512(2001)03~04-0179-05

包气层是指从地表到潜水位之间的非饱和带。根据我国低水平放射性废物浅地层处置规定的要求,处置设施必须在潜水位之上。因此,在处置设施工程屏障性能变差之后,泄漏的核素首先要进入包气层。在安全分析中,必须注意到包气层所产生的两方面影响:一方面,包气层的滞留作用使进入含水层的长寿命核素的浓度可能降低几个至十几个数量级,保护了含水层,降低了通过含水层途径造成的辐射影响;另一方面,包气层的滞留作用会使泄漏出的具有较高延迟系数的长寿命核素长期停留在近地表范围内,这是处置设施关闭后的意外闯入和场址再利用安全分析中应重视的问题。研究包气层中核素迁移对处置设施的工程设计具有指导意义。

核素在地层中迁移行为受尺度和自然环境的影响明显,实验室测定的延迟系数和野外实际相差较大,只有在野外长期观测才能得到水分运移资料和核素的相关延迟系数。描述示踪剂迁移的时间、空间变化的参数为弥散系数。弥散方程首先必需确定出方程中的水动力弥散系数,即对流弥散系数和分子扩散系数。无论是在含水层还是包气层中,引起核素迁移的主要机制是水分运移。与含水层相比较,包气层中水分运移的规律截然不同。对同一种均匀孔隙介质含水层而言,含水量、渗透系数和弥散系数为常数;但是,即使对同一种均匀孔隙介质包气层而言,含水量随位置和时间变化,非饱和渗透系数和弥散系数均随含水量变化而变化。

收稿日期:20(**C**)**\$**-994**6尚白期**: **biou**o**Aca**demic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. ht **作者简介**:武清华(1955~),男(汉族),山西太原人,副研究员,环境化学专业

本工作拟在黄土包气层中用³H、⁹⁰Sr核素作为示踪剂,研究³H和⁹⁰Sr在黄土包气层中的迁移 行为。示踪实验分别在天然条件下和人工喷淋条件下进行,后一种条件是为了加速核素迁移。

1 野外核素迁移示踪实验

1.1 天然条件

中国辐射防护研究院野外实验场址位于太原盆地东北缘,切割中等程度的黄土台塬上,海 拔高度 953 m。年均降雨量和水面蒸发量分别为 434 mm 和 2 325 mm,年均气温为 9.3℃,冬 季最大冻土深 0.81 m。

1997年11月20日在天然黄土层50 cm 深处铺设³H、⁹⁰Sr示踪层,1998年8月13日 采集土柱样品,土芯柱取出后切割样品,进行 分析。

2.2 人工喷淋条件

1997 年 6 月在野外实验大厅 50 cm 深处 土壤包气层中铺设氚示踪剂。为了加速核素 迁移速度,7 月 1 日开始人工喷淋,强度 5 mm/d,每天 3 h,大厅蒸发量 7、8、9 月均值为 1.84 mm/d。分别在示踪层下端 100 cm、150 cm 处安装吸水器,每天吸水 5~10 mL,吸水



图 1 吸水器工作原理

装置示于图 1。其操作步骤为:①关闭 V² 开启 V¹;②转动 V³、V⁴,使 A~D 通畅;③开泵抽真 空;④达到预定真空后关闭 V¹,停真空泵;⑤维持一段时间负压;⑥转动 V³、V⁴,使 A~B、D~ E 通畅;⑦开启 V²。氚水示踪剂用 Packard 公司 Tri-card²²⁵⁰CA 液体闪烁计数器分析。

结果与讨论

污染物在包气层介质中迁移的基本方程是:

$$C_{i}(x,y,z) = \frac{1}{\mathbf{TR}_{d}} X(x) Y(y) Z(z) e^{-\lambda}$$
(1)

本实验一维简化的解析式为:

$$C(x) = \frac{C_0}{4\pi p_{xt}/R_d} e^{-\frac{(X-V \cdot t/R_d)^2}{4p_{xt}/R_d}}$$
(2)

(2)式中:C为污染物在液相中的浓度(Bq/L);C0为示踪剂浓度(Bq/L); D_x 为纵向弥散系数 (cm^2/d);t为测量时间(d); R_d 为示踪剂的滞后系数(无量纲);V为水分运移速度(cm/d);X为核素质心迁移距离(cm)。

天然条件下,包气层的含水量示于图 2。无论是在含水层还是包气层中,引起核素迁移的 主要机制是水分运移,干旱少雨地区核素迁移缓慢。天然条件下 266 天、379 天、614 天氚浓度 的实验值和由(2,式计算所得拟合曲线示于图 3,拟合结果列于表 1。人工喷淋条件下⁹⁰Sr 垂向 (C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House, All rights reserved 浓度分布示于图 4,曲线出现凹下去部分是石英砂示踪层。由图 4 可知,石英砂层对示踪剂的 吸附能力小于黄土。天然条件下,土壤包气层中⁹⁰Sr 垂向分布示于图 5。由图 5 可知,1 088 天 时,⁹⁰Sr 质心没有迁移。

天然条件下和人工喷淋条件下氚示踪剂的浓度分布和拟合曲线分别示于图 6、7。由图 6、7可知,实测值和理论计算值误差不超过 5%,可见所用计算模式是实用的。人工喷淋条件下氚示踪剂拟合结果列于表 2。







图 4 人工喷淋条件下⁹⁰Sr 垂向浓度分布



图 6 天然条件³H 垂向浓度分布 (C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House, All rights reserved. 图 7 人工喷淋条件 H 垂向浓度分布 1--1 m 深处;2--1.5 m 深处



图 3 天然条件³H 的垂向浓度分布和拟合曲线 1--266 天;2--379 天;3--614 天



图 5 天然条件下⁹⁰Sr 垂向浓度分布



ht

| t/d | $10^{-5} C_0 / \text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ | L/cm | $V/\mathrm{cm} \cdot \mathrm{d}^{-1}$ | $D_x/\mathrm{cm}^2\cdot\mathrm{d}^{-1}$ |
|-----|---|-------|---------------------------------------|---|
| 266 | 1.64 | 13.3 | 0.05 | 0.45 |
| 379 | 1.20 | 11.37 | 0.03 | 0.52 |
| 614 | 0.85 | 18.42 | 0.03 | 0.52 |

表1 天然条件下³H 迁移的拟合结果

表 2 人工喷淋条件下³H 迁移的拟合结果

| t/d | $10^{-9} C_0 / \mathrm{Bq} \cdot \mathrm{g}^{-1}$ | L/cm | $V/\mathrm{cm} \cdot \mathrm{d}^{-1}$ | $D_x/\mathrm{cm}^2\cdot\mathrm{d}^{-1}$ |
|-----|---|------|---------------------------------------|---|
| 22 | 2.3 | 50 | 2.27 | 7.75 |

以 5 mm/h 喷淋强度每天喷淋 3 h, $1 079 \text{ 天时}^{90} \text{Sr}$ 通过 7 mm 厚石英砂的迁移结果示于 图 8 。由图 8 可知, $1 079 \text{ 天}^{90} \text{Sr}$ 质心迁移距离 4 cm, 计算结果列于表 $3 \text{ .}^{90} \text{Sr}$ 示踪层侧垂向浓度 分布示于图 9 。由图 9 可知, 9 Sr 没有通过 7 mm 厚石英砂, $1 079 \text{ 天时}^{90} \text{Sr}$ 质心迁移距离 13.5 cm, 9 . 由图 9 可知, 9 Sr 没有通过 7 mm 厚石英砂, $1 079 \text{ 天时}^{90} \text{Sr}$ 质心迁移距离 13.5 cm, 9 Sr 以 $1.25 \times 10^{-2} \text{ cm/d}$ 速度迁移 。即人工喷淋条件下, 7 mm 厚石英砂有阻水作用, 可 使9 Sr 垂向迁移速度滞后 3.4 信。表明石英砂在废物处置中有利用价值。





图 9 人工喷淋条件⁹⁰Sr 示踪层侧垂向浓度分布



| t/d | 10^{-5} C ₀ /Bq · g ⁻¹ | L/cm | $V/\mathrm{cm} \cdot \mathrm{d}^{-1}$ | $D_x/\mathrm{cm}^2\cdot\mathrm{d}^{-1}$ |
|-------------|--|------|---------------------------------------|---|
| 1 079(垂向) | 3.60 | 4.0 | 3.7×10^{-3} | 0.03 |
| 1 079(侧垂向) | 0.04 | 13.5 | 13×10^{-3} | 3.0 |

表 3 人工喷淋条件下⁹⁹Sr 迁移的拟合结果

(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. ht

3 结 论

在华北地区黄土高原天然条件下,包气带中氚示踪剂以 0.03 cm/d 速度迁移,纵向扩散系数 D_x 为 $0.52 \text{ cm}^2/d$;在 $2 \text{ m} \times 2 \text{ m}$ 实验坑中,以 5 mm/h 喷淋强度每天喷淋 3 h 的条件下,氚 示踪剂以 2.27 cm/d 的速度向下迁移,纵向扩散系数 D_x 为 $7.75 \text{ cm}^2/d$ 。包气带中天然条件下 90 Sr 基本没有迁移,人工喷淋条件下,90 Sr 以 $3.7 \times 10^{-3} \text{ cm/d}$ 速度迁移,纵向扩散系数 D_x 为 $0.03 \text{ m}^2/d$ 。

参考文献:

- [1] Vidal M, Rauret G. Asequential Extraction Scheme to Ascertain the Role of Organic Matter in Radionuclide Retention in Mediterranean Soils[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 1993, 173 (1):79~86.
- [2] Vidal M, Tent T, Liaurado M, et al. Study of Evolution Radionuclide Distribution in Soil Using Sequential Extraction Schems[J]. Journal of Radioecology, 1993, (1):49~55.
- [3] Triay IR, Robinson BA, Lopea RM, et al. Neptunium Retardation With Tuffs and Roundwaters From Yucca Mountain [A]. International High-level Radioactive Waste Management Conference [C]. Las Vegas, Nevada: Los Alams notional Labortary. April 26~30,1993.
- [4] Furuya H. Migration of Cesium, Strontium and Cobalt in Water-Saturated Inada Granite [J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 1992, 29(5): 454~460.

The Application of ³H and ⁹⁰Sr Tracer in Soil Aerated Zone Tracing Experiment

WU Qing-hua, JI Shao-wei, LIU Lian-ying, ZHAO Ying-jie, ZHANG Hua, WANG Yu-bing, LI Yun-feng, HUANG Qing-chun

(China Institute for Radiation Protection, Taiyuan 030006, China)

Abstract: Diffusivity of ³H and ⁹⁰ Sr are measured in soil aerated zone on both natural condition and artificial rainfall condition. The migration regularity of ³H and ⁹⁰Sr are studied in loess aerated zone at the same time. The results show that the migration velocity of ³H tracer in aerated zone is 0.03 cm/d on natural condition in loess plateau of Huabei Region, the vertical diffusivity D_x is $0.52 \text{ cm}^2/\text{d}$; In the experiment pit, the migration of ³H is 2.27 cm/d on artificial rainfall condition (the sprinkling intensity is 5 mm/h, 3 hours each day), the vertical diffusivity D_x is $7.75 \text{ cm}^2/\text{d}$. The ⁹⁰Sr tracer in aerated zone haven't migrated, the migration velocity is $3.7 \times 10^{-3} \text{ cm/d}$, the vertical diffusivity D_x is $0.03 \text{ cm}^2/\text{d}$. Key words: ³H; ⁹⁰Sr; soil aerated zone, tracing experiment