

DOI: 10.11766/trxb201608160166

不同喷淋强度对核素Sr-90在土壤中迁移的影响*

朱 君 邓安嫦 石云峰 陈 超 刘团团 张艾明†

(中国辐射防护研究院, 太原 030006)

摘 要 基于室内土柱法, 建立120 ml d⁻¹、60 ml d⁻¹、30 ml d⁻¹三种不同喷淋强度下放射性核素Sr-90在砂土介质中的动态土柱迁移试验, 试验时间分别为51 d、102 d、204 d, 研究不同喷淋强度对Sr-90迁移规律的影响。结果表明, 三种不同喷淋强度下Sr-90的浓度峰在土柱体中的迁移距离分别为42.3 cm、46.2 cm、44.4 cm, 迁移距离基本一致, 与喷淋强度和时间成正比。此外, Sr-90在土柱体剖面的浓度分布曲线均存在明显的不对称性和拖尾, 即Sr-90从源层上洗脱下来后, 受到砂土介质的吸附作用, 待浓度峰值通过后, 更多的Sr-90从之前的砂土介质中解吸出来, 使得很长时间内土柱体中保持相对较高的浓度。应用Hydrus-1d软件建立平衡吸附、非平衡吸附两种模式下的核素迁移数值模型, 发现在非平衡吸附模式中考虑一级速率系数 β 能更好地描述浓度分布曲线的拖尾, 通过与实测浓度值拟合得到Sr-90的分配系数为0.73 ml g⁻¹、0.70 ml g⁻¹、0.72 ml g⁻¹, 喷淋强度对分配系数影响不大。

关键词 喷淋强度; 土柱试验; 核素迁移; 平衡吸附; 非平衡吸附

中图分类号 X53 **文献标识码** A

核素迁移能力是放射性废物处置场选址、设计、建造和安全评估的一个重要参考指标, 分配系数作为衡量核素迁移能力的一个关键参数, 现阶段其测量方法分为静态批式法和动态土柱法。静态法忽略了固相介质的孔隙度、水流速度、固液比等因素对分配系数的影响, 尤其是“固体浓度效应”^[1-2]。动态土柱法则较切合实际更具优势, 是研究核素迁移行为及迁移参数的主要手段。但是由于延迟作用^[3-4], 动态土柱法往往需要较长的试验周期才能得到结果, 通常采用加速喷淋的办法。放射性废物处置场多位于西北干旱、半干旱地区, 实际年降雨量远远小于加速喷淋的水量, 加速喷淋的试验结果能不能反应实际条件下的核素迁移规律, 一直是争论的焦点问题。关于上述问题的研究, 国内报道并不多见, 且有关内容主要集中在利用浓度穿透曲线的峰值迁移速率^[5-6], 反映喷淋强度对核素迁移行为的影响。

放射性废物处置场中的关键核素锶-90 (以

下简称Sr-90), 因为半衰期长、毒性大, 参与钙代谢, 对骨骼有亲合力, 引起白血病和骨癌而被关注。于静^[5]和王志明^[6]等采用室内土柱试验, 通过底部流出液, 分别得到了不同喷淋强度下Sr-90在沙土和黄土中的穿透曲线, 发现喷淋强度与Sr-90浓度峰的迁移速率基本呈线性关系, 但是没有从迁移理论和模型更加深入地分析现象原因。Li等^[7]通过土柱试验的穿透曲线, 发现Sr-90在石英砂中的迁移是一个非平衡过程, 应用非平衡吸附模式^[8-12]计算得到的结果较平衡吸附模式^[13-15]能更好地与穿透曲线吻合。但利用浓度穿透曲线研究核素迁移模型和喷淋强度对核素迁移行为、参数的影响, 只考虑了液相中的核素浓度, 忽略了被滞留在土柱体固相介质中的浓度, 无法全面地反映核素在土壤剖面的迁移过程和参数。在探讨喷淋强度对核素迁移规律的影响时, 应考虑滞留在土壤介质中的那部分浓度, 并结合迁移模型分析进一步开展研究。本文采用室内土柱法, 设计三种不同的喷淋强

* 中国辐射防护研究院院基金项目 Supported by the Foundation of China Institute for Radiation Protection

† 通讯作者 Corresponding author, E-mail: 13834508698@163.com

作者简介: 朱 君 (1985—), 男, 湖南衡阳人, 硕士, 研究实习员, 主要从事核素在地表水环境、地下水环境、土壤环境中吸附和迁移研究。E-mail: 405400881@qq.com

收稿日期: 2016-08-16; 收到修改稿日期: 2016-12-18; 优先数字出版日期 (www.cnki.net): 2017-03-03

度, 充分考虑固相滞留作用, 根据Sr-90在土柱体垂直剖面的浓度分布曲线, 并结合核素迁移数值模型, 研究加速喷淋对Sr-90在砂土介质中迁移的影响, 为干旱区放射性废物处置场的安全评估提供参数支持。

1 材料与方法

1.1 供试材料

土壤样品取自甘肃嘉峪关, 为棕漠土(正常

干旱土), 土壤pH8.34, 有机质含量 1.7 g kg^{-1} , 全氮、全磷、全钾含量分别为 94 mg kg^{-1} 、 315 mg kg^{-1} 、 11.6 g kg^{-1} , 容重 $1.56 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ 。土壤质地为砂土, 其中砂粒含量98.44%、粉粒含量1.01%、黏粒含量0.55%。土壤矿物、化学成分见表1。

1.2 试验设计

采用室内土柱法, 根据喷淋强度不同设置3个试验土柱, 编号为ST-1、ST-2、ST-3, 对应喷淋强度分别为 120 ml d^{-1} 、 60 ml d^{-1} 、 30 ml d^{-1} 。试验装置如图1, 由三部分组成: (1) 喷淋装置, 包括

表1 供试土样矿物、化学成分分析

Table 1 Mineral and chemical composition of test soil (%)

土壤 Soil	石英 Quartz	云母 Mica	斜长石 Plagioclase	钾长石 Potash feldspar	绿泥石 Chlorite	角闪石 Hornblende	方解石 Calcite	高岭石 Kaolinite	未检出 Not detected
棕漠土 Brown desert soil	50 ~ 55	6	15 ~ 20	7	3	—	10 ~ 15	2	1
土壤 Soil	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	K ₂ O	Na ₂ O	CaO	MgO	—	—
棕漠土 Brown desert soil	68.60	6.70	2.02	1.40	1.60	8.30	1.90	—	—

供水装置和用于控制流量的蠕动泵; (2) 土柱装置; (3) 底部流出物收集装置。试验用水为蒸馏水, 喷淋装置由蠕动泵控制注入流量。土柱体为有机玻璃材质, 厚度0.5 cm, 高85 cm, 横截面内径为11 cm的圆形。管的顶部、底部各留5 cm的空间, 便于顶部喷淋水的下渗和防止底部流出液的淤积。

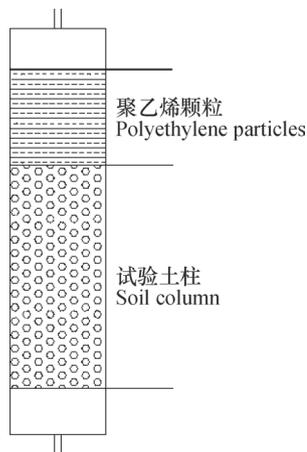


图1 土柱试验装置

Fig. 1 Soil column experiment device

土柱填装时, 在距管底部5 cm高度处的多孔板上放置一张纱网, 将土样分10层装入土柱, 每层装填高度6 cm, 总装填高度60 cm, 装填量由土样的容重和土柱的体积计算得到, 在两两层土之间, 打毛土壤界面。蠕动泵控制蒸馏水流量, 分别对三个试验土柱自上而下进行喷淋, 待土柱底部流出量达到稳定后铺放示踪源层。源层用放射性核素Sr-90(总量 $1.24 \times 10^6 \text{ Bq}$)与80目的石英砂(约75 g)混合均匀后平铺在土柱体上端面, 示踪源层厚约3 mm。最后在示踪源层上铺放14.7 cm的聚乙烯细颗粒, 目的是使喷淋水能均匀下渗, 且不吸附Sr-90。

ST-1、ST-2、ST-3土柱喷淋时间分别为51 d、102 d、204 d, 试验过程中每天在底部收集流出液并测量体积和Sr-90的浓度。试验周期的确定原则上是保证Sr-90迁移曲线的浓度峰不穿透土柱体, 而在土柱中有完整的浓度分布曲线。试验结束后, 以源层为零点, 向下为正, 将土柱解体为每层3 mm的样品, 并测量Sr-90的浓度。具体为先用 6 mol L^{-1} 的盐酸浸取砂土, 草酸沉淀钙、镁、铁等

金属离子，再用 3 mol L^{-1} 的硝酸溶解沉淀，过Sr-spec树脂柱，最后用蒸馏水将Sr-90洗脱，草酸沉淀 Sr^{2+} ，质量法计算Sr的化学回收率，溶解沉淀并用低本底液体闪烁谱仪测量Sr-90的浓度。另外，取6、12、18、24、30、36、42、48、54、60 cm处的样品，用烘干法测量含水率，得到土柱体垂向上的含水率分布情况，作为实测资料用于核素迁移水分模型的验证数据。

1.3 土壤水力参数测定

土壤水力参数包括土壤水分特征曲线与饱和导水率。土壤水分特征曲线采用砂性漏斗法和机械张力计法相结合的方式测定，土壤吸力较小时，采用砂性漏斗法；土壤吸力较大时，采用张力计法。通过试验得到了8个不同体积含水率下的土壤吸力值。采用Van Genuchten (1980)模型对饱和含水率 θ_s 、残余含水率 θ_r 、进气值倒数 α 和拟合参数 n 进行了求解。参数结果如表2。

此外由于砂土介质的渗透性较好，饱和导水率测定采用定水头法。从土柱底端通水，使整个土柱体饱和，上部安装定水头装置（如图2），调整入水口供水量，使试验期间水头差 H 保持不变，记录时间 Δt 和底部出口流量 Q 。

表2 土壤水力参数

Table 2 Soil hydraulic parameters					
类型 Type	θ_s ($\text{cm}^3 \text{ cm}^{-3}$)	θ_r ($\text{cm}^3 \text{ cm}^{-3}$)	α (cm^{-1})	n	K_s (cm s^{-1})
砂土 Sand	0.32	0.0023	0.0165	2.6846	2.90×10^{-4}

2 结 果

2.1 不同喷淋强度土柱含水率

三个土柱体中含水率分布从上到下逐渐增大，越靠近底部越接近饱和含水率。ST-1土柱含水率为 $0.167 \sim 0.324 \text{ cm}^3 \text{ cm}^{-3}$ 、ST-2土柱含水率为 $0.172 \sim 0.334 \text{ cm}^3 \text{ cm}^{-3}$ 、ST-3土柱含水率为 $0.170 \sim 0.332 \text{ cm}^3 \text{ cm}^{-3}$ （表3）。分析原因是，砂土介质的渗透系数远大于喷淋强度，水迅速下渗并在土柱底部累积，当达到饱和含水率后在重力作用下排出。虽然喷淋量强度不同，但是当含水率达到稳定后，三个土柱体中垂向含水率的分布基本相同，

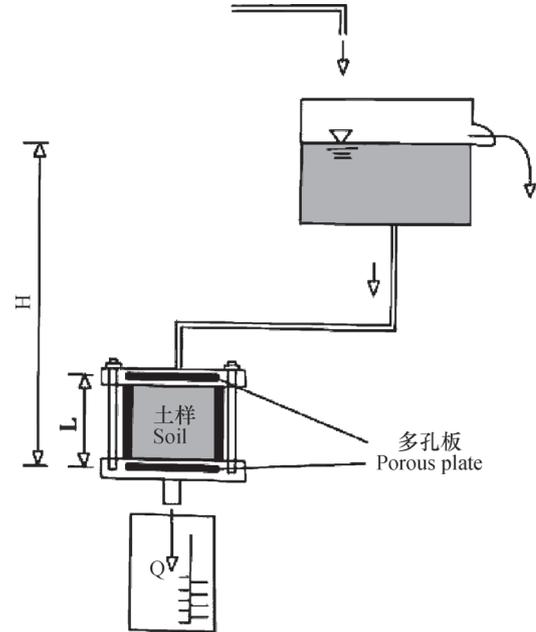


图2 饱和导水率测定试验装置

Fig. 2 Test device for measuring saturated water conductivity

区别在于喷淋量越大，含水率越快达到稳定。

2.2 不同喷淋强度下Sr-90在土柱中的迁移

ST-1土柱喷淋51 d后，Sr-90浓度峰垂直向下迁移约42.3 cm，峰值浓度为 415.8 Bq cm^{-3} （图3）。ST-2土柱喷淋102 d后，Sr-90浓度峰向下迁移约46.2 cm，峰值浓度为 289.6 Bq cm^{-3} 。ST-3土柱喷淋204 d后，Sr-90浓度峰向下迁移约44.4 cm，峰值浓度为 323.9 Bq cm^{-3} 。

三种喷淋强度下Sr-90的浓度峰在砂土介质中的迁移距离基本一致，迁移距离与喷淋强度、时间成正比。但是三个土柱上部0~40 cm深度范围内Sr-90的浓度并没有很快递减为零，依然保持约 $100 \sim 200 \text{ Bq cm}^{-3}$ ，浓度分布曲线存在拖尾的特征，说明Sr-90从源层上被洗脱下来后，被吸附并滞留至砂土介质上，而浓度峰值通过后，更多的Sr-90从砂土介质中解吸出来，使得很长时间内土柱体上部保持相对较高的浓度。ST-2、ST-3土柱中Sr-90的浓度分布曲线和峰值浓度基本一致，而ST-1土柱明显大于前两者，意味着喷淋强度越大，Sr-90更容易从源层上洗脱下来，而当喷淋强度降低到 60 ml d^{-1} 时，影响变小。从污染场地的修复治理和剂量估算的角度考虑，当Sr-90进入砂土介质后，高浓度污染将会是一个持续过程。

表3 实测土柱体含水率分布

Table 3 Measured moisture content in soil column

深度Depth (cm)	含水率Water content ($\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$)		
	ST-1	ST-2	ST-3
6	0.167	0.172	0.170
12	0.215	0.178	0.170
18	0.231	0.211	0.165
24	0.225	0.189	0.212
30	0.234	0.220	0.232
36	0.254	0.220	0.228
42	0.276	0.246	0.248
48	0.309	0.253	0.236
54	0.314	0.261	0.298
60	0.324	0.334	0.332

注: ST-1、ST-2、ST-3对应喷淋强度分别为 120 ml d^{-1} 、 60 ml d^{-1} 、 30 ml d^{-1} 。下同 Note: The corresponding spray intensity of ST-1、ST-2、ST-3 are 120 ml d^{-1} , 60 ml d^{-1} , 30 ml d^{-1} . The same below

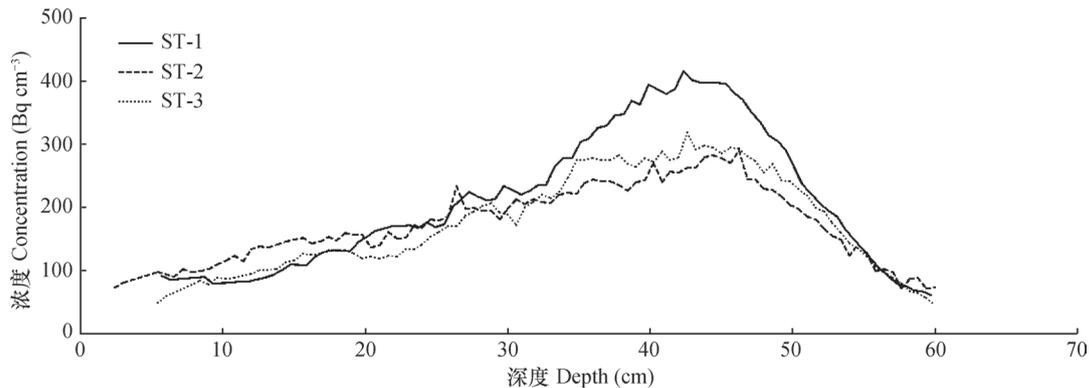


图3 土柱体剖面Sr-90实测浓度分布曲线

Fig. 3 Concentration distribution curve of Sr-90 in soil column profile

3 核素迁移的数值模拟

3.1 水流模型的建立及含水率验证

为了更加深入地分析上述现象, 首先应用Hydrus-1d软件建立垂向上的一维饱和-非饱和水流模型, 然后分别加入平衡吸附迁移模式和非平衡吸附迁移模式。从迁移模式和迁移参数两个方面探讨不同喷淋强度对核素Sr-90在砂土中迁移的影响。

首先, 根据Richard方程建立垂向上的一维饱和-非饱和水流模型, 空间上将模型离散为3 mm的单元格, 时间步长为90 s。将试验得到的土壤物理参数、土壤水力参数、喷淋强度、底部流出量代

入模型, 计算得到土柱体垂向上含水率分布值, 同样选取6、12、18、24、30、36、42、48、54、60 cm处的计算值。目的是与试验得到的实测含水率值对比, 验证水流模型的可靠性。

$$\begin{cases} \frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left[K(h) \frac{\partial h}{\partial z} \right] \\ -K(h) \left(\frac{\partial h}{\partial z} + 1 \right) = V_1(z, t), z = 0, t \geq 0 \\ \theta(z, t) = V_2(z, t), z = H, t > 0 \\ \theta(z, t) = \theta_0, 0 \leq z \leq H, t = 0 \end{cases}$$

式中, θ 为体积含水率 ($\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$), t 为水分运移时间 (d), h 为非饱和带压力水头 (cm), z 为空

间坐标, $K(h)$ 为非饱和导水率 (cm d^{-1}), θ_0 为初始含水率 ($\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$), V_1 为入渗通量 (cm d^{-1}), V_2 为底部流出量 (cm d^{-1}), H 为土柱体高度 (cm)。

从含水率计算结果来看 (表4), 模型中含水率分布也是由上至下逐渐增大, 靠近底部接近饱和含水率。ST-1土柱含水率为0.187~0.317

$\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$, 与实测值的偏差为-5.58%~11.98%。ST-2土柱含水率为0.156~0.298 $\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$, 与实测值的偏差为-12.80%~8.81%。ST-3土柱含水率为0.148~0.290 $\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$, 与实测值的偏差为-12.94%~8.90%。对比结果发现两者基本吻合, 所建水流模型精度基本达到要求, 能反映实际水流运动情况。

表4 模型含水率计算结果及验证

Table 4 Calculation results and verification of moisture content by model

深度 Depth (cm)	ST-1 ($\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$)		ST-2 ($\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$)		ST-3 ($\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$)	
	计算值	偏差	计算值	偏差	计算值	偏差
	Calculation value	Deviation	Calculation value	Deviation	Calculation value	Deviation
6	0.187	11.98%	0.156	-9.30%	0.148	-12.94%
12	0.203	-5.58%	0.168	-5.62%	0.161	-5.29%
18	0.220	-4.76%	0.184	-12.80%	0.175	6.06%
24	0.237	5.33%	0.200	5.82%	0.190	-10.38%
30	0.254	8.55%	0.217	-1.36%	0.206	-11.21%
36	0.271	6.69%	0.234	6.36%	0.223	-2.19%
42	0.287	3.99%	0.251	2.03%	0.240	-3.23%
48	0.300	-2.91%	0.268	5.93%	0.257	8.90%
54	0.309	-1.59%	0.284	8.81%	0.275	-7.72%
60	0.317	-2.16%	0.298	-10.78%	0.290	-12.65%

注: 偏差为正值, 表示计算值偏大; 负值, 表示计算值偏小 Note: Deviation is positive, the calculated value is large; Deviation is negative, the calculated value is small

3.2 平衡与非平衡吸附模式的对比及迁移参数拟合

目前, 核素在土壤中的迁移模式分为平衡吸附模式和非平衡吸附模式。平衡吸附模式, 意味着核素在固相介质中能很快达到吸附、解吸平衡或者是有足够长的时间让吸附相与溶解相之间达到平衡, 但实际上对于吸附能力弱或者没有足够长时间与固相介质接触的核素, 其浓度分布曲线往往存在不对称性和拖尾。而非平衡吸附模式能更好地描述这种现象。

20世纪50年代, 对流—弥散理论开始用于描述溶质的迁移运动, 其迁移行为是物理、化学等一系列复杂过程综合作用的结果^[16-20]。Yeh和Tripathi^[21]以及Mangold和Tsang^[22]将对流—弥散和多组分化学反应耦合建立了溶质的非平衡迁移方程, 它有效地融入了化学非平衡和物理非平衡两种

过程。化学非平衡过程考虑了不同形式的吸附作用, 物理非平衡过程考虑了不同形式的水流运动, 尽管基于理论的不同, 但是在一定的假设前提下, 化学非平衡过程和物理非平衡过程可以耦合成统一的数学形式, 为非平衡吸附模式的发展和应用创造了条件。

平衡吸附模型^[13-15]认为核素在固相介质中能很快达到吸附平衡, 此时固相中核素浓度是分配系数与液相中核素浓度的乘积, 数学模型如下:

$$\frac{\partial S^k}{\partial t} = K_d \frac{\partial C}{\partial t}$$

非平衡吸附模型^[8-12] (单点吸附模型) 与平衡吸附模式的区别是, 迁移方程中引入了一级速率系数 β , 认为核素在迁移过程中被固相介质吸附不会瞬时完成, 而是存在吸附速率的问题。数学模型如下:

$$\begin{cases} \theta \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\theta D \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial z} (qC) - \rho \frac{\partial S^k}{\partial t} \\ \rho \frac{\partial S^k}{\partial t} = \beta \left(C - \frac{S^k}{K_d} \right) \end{cases}$$

初始条件和边界条件如下:

$$\begin{cases} C(z, t) = C_0(z, t), 0 \leq z \leq L, t = 0 \\ C(z, t) = 0, L < z \leq H, t = 0 \\ C(z, t) = C_1(z, t), z = H, t \geq 0 \end{cases}$$

式中, θ 为体积含水率 ($\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$), t 为核素运移时间 (d), z 为空间坐标, D 为弥散系数 ($\text{cm}^2 \text{d}^{-1}$), ρ 为容重 (g cm^{-3}), C 为溶解相浓度 (Bq cm^{-3}), S^k 为吸附相浓度 (Bq cm^{-3}), K_d 为平衡吸附时的分配系数 ($\text{cm}^3 \text{g}^{-1}$), β 为溶解相与吸附相之间的一级速率系数 (d^{-1}), H 为土柱体高度 (cm), L 为源层厚度 (cm), C_0 为初始浓度 (Bq cm^{-3}), C_1 为流出液浓度 (Bq cm^{-3})。

分别建立平衡吸附、非平衡吸附(单点吸附模型)两种模式下的核素迁移一维垂直入渗数值模型。计算得到两种模式下Sr-90在土柱体中的计算浓度分布曲线,将实测分布曲线与计算分布曲线进行对比分析,根据拟合程度,求得Sr-90在砂土中的分配系数 K_d 、弥散度 D 、一级速率系数 β 。

从浓度计算结果来看(表5),ST-1土柱平衡吸附模式的计算峰值约634.3 Bq cm^{-3} ,非平衡吸附模式的计算峰值约396.4 Bq cm^{-3} ,分配系数为0.73 ml g^{-1} , β 为1.46 d^{-1} 。ST-2土柱平衡吸附模式的计算峰值约523.2 Bq cm^{-3} ,非平衡吸附模式的计算峰值约253.3 Bq cm^{-3} ,分配系数为0.70 ml g^{-1} , β 为0.56 d^{-1} 。ST-3土柱平衡吸附模式的计算峰值约695.2 Bq cm^{-3} ,非平衡吸附模式的计算峰值约317.5 Bq cm^{-3} ,分配系数为0.72 ml g^{-1} , β 为0.36 d^{-1} 。

平衡吸附模式计算的浓度分布曲线呈明显的对称性,高于实测浓度,且在浓度峰值通过后,很快递减为零,无法描述实测浓度分布曲线的拖尾特征。非平衡吸附模式考虑了溶解相与吸附相之间的一级速率系数 β ,计算的浓度分布曲线与实测浓度点吻合程度较好(图4)。3种喷淋强度下,Sr-90的浓度峰在土柱体中的迁移距离基本一致,而非平衡吸附模式中所定义的分配系数为线性平衡吸附时的分配系数,按照理论只要介质相同,其值应该一致。本次试验拟合得到的分配系数为0.70~

0.73 ml g^{-1} ,基本上变化不大,符合理论,同时说明Sr-90在砂土介质中的迁移距离与喷淋强度和um时间成比例。核素在土壤介质中的分配系数受pH和有机质含量的影响较大,但是本次三个试验土柱的土样来自同一种土壤介质,经过测量土壤中pH、有机质含量、氮、磷、钾含量基本上相同。ST-2土柱砂土有机质含量较ST-1、ST-3土柱少约16%,因此该土柱Sr-90浓度峰迁移的距离较其他2个土柱稍远,分配系数稍小。

三种喷淋强度下,三个土柱体的弥散度为0.08~0.24 cm。这是由于本次试验采用的是扰动土,装填存在非均质性导致。

表5 Sr-90迁移参数

Table 5 Migration parameters of Sr-90

土柱 Soil column	分配系数 K_d Distribution coefficient (ml g^{-1})	弥散度 D Dispersion (cm)	一级速率系数 β First order rate coefficient (d^{-1})
ST-1	0.73	0.08	1.46
ST-2	0.70	0.10	0.56
ST-3	0.72	0.24	0.36

4 结论

在实验室内建立了120 ml d^{-1} 、60 ml d^{-1} 、30 ml d^{-1} 三种不同喷淋强度下Sr-90在砂土土柱中的迁移试验(对应试验时间分别为51 d、102 d、204 d),对比分析了不同喷淋强度对核素Sr-90在砂土中迁移的影响。得出以下主要结论:

- (1) 三种喷淋强度下, Sr-90浓度峰的迁移距离基本一致,迁移距离与喷淋强度和时间成正比。
- (2) 三组试验的喷淋强度和试验时间均不同,但是喷淋的总水量一致,说明淋洗水量对Sr-90的迁移更为重要。
- (3) 三种喷淋强度下, Sr-90的浓度分布曲线均明显存在拖尾,浓度峰值过后,更多的Sr-90会从砂土介质中被解吸出来,使得很长时间内保持较高的浓度。
- (4) 应用平衡吸附模式已经无法对Sr-90浓度分布曲线的拖尾进行准确描述,而采用非平衡吸附模式,引入一级速率系数 β 后,能更好地描述该现象。

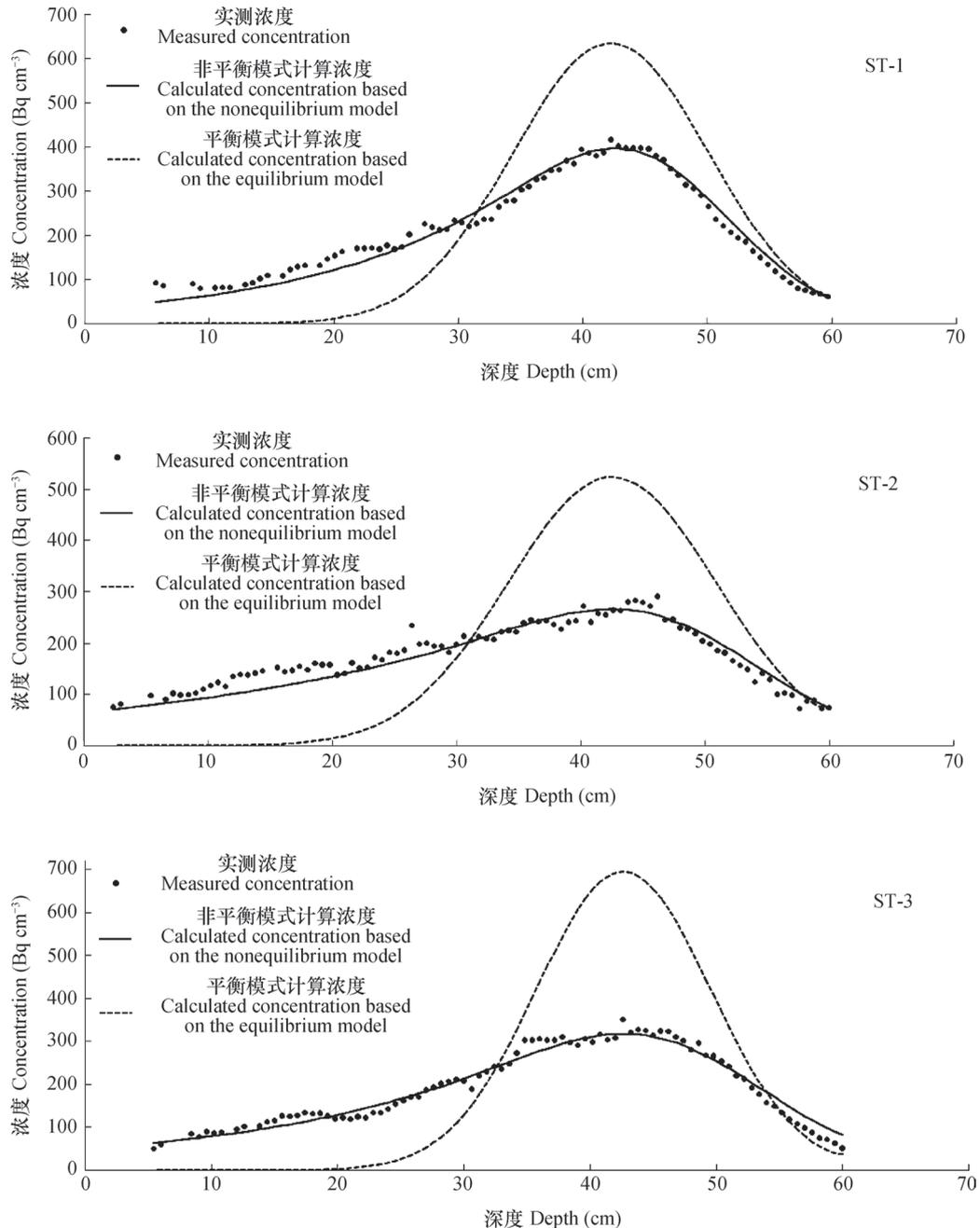


图4 土柱Sr-90浓度拟合计算

Fig. 4 Fitting of Sr-90 concentration

参考文献

- [1] 李静, 张美一, 潘纲, 等. 不同吸附模式对As (V) 在TiO₂颗粒上亚稳态吸附的影响. 物理化学学报, 2013, 29 (7): 1541—1549
Li J, Zhang M Y, Pan G, et al. Influence of adsorption model on metastable equilibrium adsorption of As (V) on TiO₂ particles (In Chinese). Acta Physico-Chimica Sinica, 2013, 29 (7): 1541—1549
- [2] 徐丛, 李薇, 潘纲. Zn (II) / α -FeOOH吸附体系的固

体浓度效应. 物理化学学报, 2009, 25 (9): 1737—1742

- Xu C, Li W, Pan G. Particle concentration effect on Zn (II) adsorption at water-goethite interfaces (In Chinese). Acta Physico-Chimica Sinica, 2009, 25 (9): 1737—1742
- [3] Cho W J, Lee J O, Choi H J. Radionuclide migration through an unsaturated clay buffer under thermal and hydraulic gradients for a nuclear waste repository. Annals of Nuclear Energy, 2012, 50 (4): 71—81

- [4] Merk R. Numerical modeling of the radionuclide water pathway with HYDRUS and comparison with the IAEA model of SR 44. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2012, 105 (2) : 60—69
- [5] 于静, 司高华, 刘旭东, 等. 喷淋强度对Sr在沙土中迁移的影响研究. *甘肃科技*, 2011, 27 (9) : 47—49
Yu J, Si G H, Liu X D, et al. Study on water flow rate effect on migration of strontium in sand (In Chinese). *Gansu Science and Technology*, 2011, 27 (9) : 47—49
- [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. *原子能科学技术*, 2003, 37 (4) : 320—324
Wang Z M, Guo Q Li S S, et al. Experiment on effect of water flow velocity on migration of strontium (In Chinese). *Atomic Energy Science and Technology*, 2003, 37 (4) : 320—324
- [7] Li Y F, Tian S H, Qian T W. Transport and retention of strontium in surface-modified quartz sand with different wettability. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2011, 289 (2) : 337—343
- [8] Abulaban A, Nieber J L. Modeling the effects of nonlinear equilibrium sorption of solute plumes in saturated heterogeneous porous media. *Advances in Water Resources*, 2000, 23 (8) : 893—905
- [9] Leij F J, Toride N, van Genuchten Th. Analytical solutions for non-equilibrium solute transport in three-dimensional porous media. *Journal of Hydrology*, 1993, 151 (2/4) : 193—228
- [10] 王金生, 李书绅, 王志明, 等. 核素迁移的二维非平衡吸附数值模式研究. *应用生态学报*, 1996, 7 (1) : 89—93
Wang J S, Li S S, Wang Z M, et al. Two-dimensional non-equilibrium sorption numerical model of radionuclide migration (In Chinese). *Chinese Journal of Applied Ecology*, 1996, 7 (1) : 89—93
- [11] 陈家军, 戴杰, 郭择德. 非平衡吸附放射性核素迁移数值模型研究. *水文地质工程地质*, 1994, 21 (2) : 37—40
Chen J J, Dai J, Guo Z D. Non-equilibrium adsorption numerical model for radionuclide migration research (In Chinese). *Hydrogeology and Engineering Geology*, 1994, 21 (2) : 37—40
- [12] 陈家军, 王金生, 李合莲. 非平衡吸附对核素迁移的影响及平衡速率参数的确定. *中国环境科学*, 2000, 20 (1) : 73—76
Chen J J, Wang J S, Li H L. Influence on radionuclide migration by non-equilibrium sorption and identification of rate coefficient (In Chinese). *China Environmental Science*, 2000, 20 (1) : 73—76
- [13] 王志明, 李书绅, 杨月娥. 非饱和黄土介质中含水量对⁸⁵Sr迁移的影响. *原子能科学技术*, 2001, 35 (4) : 320—324
Wang Z M, Li S S, Yang Y E. Effect of water content on migration of ⁸⁵Sr in unsaturated loess (In Chinese). *Atomic Energy Science and Technology*, 2001, 35 (4) : 320—324
- [14] 王志明, 安永锋. ⁸⁵Sr在非饱和黄土中的迁移特征. *原子能科学技术*, 2004, 38 (1) : 29—34
Wang Z M, An Y F. Migration characteristics of ⁸⁵Sr in unsaturated loess (In Chinese). *Atomic Energy Science and Technology*, 2004, 38 (1) : 29—34
- [15] 王志明, 李书绅, 郭择德, 等. ⁸⁵Sr在非饱和黄土中的迁移. *辐射防护*, 2000, 20 (1/2) : 32—35
Wang Z M, Li S S, Guo Z D, et al. Migration of ⁸⁵Sr in unsaturated Loess (In Chinese). *Radiation Protection*, 2000, 20 (1/2) : 32—35
- [16] 王康, 张仁铎, 周祖昊, 等. 土壤非均匀水流运动和溶质迁移显色示踪方法研究. *土壤学报*, 2009, 46 (4) : 603—610
Wang K, Zhang R D, Zhou Z H, et al. Evaluation of method for visualization of heterogeneous soil water flow and solute transport using IODINE—STARCHE staining (In Chinese). *Acta Pedologica Sinica*, 2009, 46 (4) : 603—610
- [17] 陶亚奇, 蒋新, 卞永荣, 等. 二维虚拟土壤中溶质迁移行为的数值模拟研究. *土壤学报*, 2009, 46 (6) : 991—997
Tao Y Q, Jiang X, Bian Y R, et al. Numerical simulation of solute transports in two dimensional virtual soil (In Chinese). *Acta Pedologica Sinica*, 2009, 46 (6) : 991—997
- [18] 马美景, 王军光, 郭忠录, 等. 放水冲刷对红壤坡面侵蚀过程及溶质迁移特征的影响. *土壤学报*, 2016, 53 (2) : 365—374
Ma M J, Wang J G, Guo Z L, et al. Research on sediment and solute transport on red soil slope under simultaneous influence of scouring flow (In Chinese). *Acta Pedologica Sinica*, 2016, 53 (2) : 365—374
- [19] 郑纪勇, 王全九, 邵明安. 利用溶质锋信息估计溶质迁移参数方法分析. *土壤学报*, 2007, 44 (2) : 221—226
Zheng J Y, Wang Q J, Shao M A. Estimation of solute transport parameters using information of solute front (In Chinese). *Acta Pedologica Sinica*, 2007, 44 (2) : 221—226
- [20] 任理, 秦耀东, 王济. 非均质饱和土壤盐分优先运移的随机模拟. *土壤学报*, 2001, 38 (1) : 104—113
Ren L, Qin Y D, Wang J. Stochastic modeling of

- chloride travel in heterogeneous saturated soils under the condition of preferential flow (In Chinese). *Acta Pedologica Sinica*, 2001, 38 (1) : 104—113
- [21] Yeh G T, Tripathi V S. A critical evaluation of recent developments in hydrogeochemical transport models of reactive multichemical components. *Water Resource Research*, 1989, 25 (1) : 93—108
- [22] Mangold D C, Tsang C F. A summary of subsurface hydrological and hydrochemical models. *Reviews of Geophysics*, 1991, 29 (1) : 51—79

Effect of Spraying Intensity on Migration of Sr-90 in Soil

ZHU Jun DENG Anchang SHI Yunfeng CHEN Chao LIU Tuantuan ZHANG Aiming[†]

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

Abstract Based on the dynamic soil column method in laboratory, experiment was conducted on studying the migration of radionuclide Sr-90 in Sand relative to different spraying intensity (spraying intensity was designed to 120 ml d⁻¹, 60 ml d⁻¹, 30 ml d⁻¹, and the corresponding experimental time were 51, 102 204 day respectively). Results showed that migration distance of Sr-90 concentration peak in the soil columns more or less the same, were 42.3 cm, 46.2 cm, 44.4 cm, Which was positively related to intensity and duration of the spraying. In addition, the concentration distribution curves of Sr-90 in soil column section all exhibited asymmetry and “tailing” phenomena under the three different spray intensity, i.e. After Sr-90 was leached down from the source layer, it was adsorbed to the Sand, thus lagging behind and getting desorbed after the peak concentration passing the observation point, hence Sr-90 concentration remained to be quite high in soil columns for a long time. With the aid of HYDRUS-1D software, two numerical models were established for radionuclide migration, one based on equilibrium adsorption and the other on non-equilibrium adsorption. It was found that the non-equilibrium sorption model, which took into account the first-order rate coefficients β , could be used to better explain the asymmetry and tailing phenomena. Based on fitting the measurements of Sr-90 concentrations in the soil columns, distribution coefficient of Sr-90 in the Sand was figured out to be 0.73 ml g⁻¹, 0.70 ml g⁻¹ and 0.72 ml g⁻¹ relative to intensity of the spraying, which shows that intensity of the spraying did not have much effect on distribution coefficient of Sr-90.

Key words Spraying intensity; Soil column experiment; Radionuclide migration; Equilibrium adsorption; Non-equilibrium adsorption

(责任编辑：卢 萍)