

文章编号: 1673- 0062(2010) 01- 0008- 05

铀尾矿粒度分形分布对氡析出影响的初步研究

谭凯旋, 周媛*, 邢中华*, 王连生*

(南华大学 核资源与核燃料工程学院, 湖南 衡阳 421001)

摘 要: 铀尾矿中氡的析出是备受重视的典型环境问题. 本文实验研究了尾矿粒度分形分布对氡析出率的影响. 结果表明, 尾矿中氡的析出率呈现振荡性变化; 在尾矿粒度分布分维值为 2.3- 2.8 内, 氡析出率随分维值的增大显著减小, 至分维值为 2.6 时达到极小值, 然后随分维值的增大略有增高. 反冲作用与 He-Rn 团簇的形成和尾矿的非均匀性导致了氡析出的振荡变化. 分维值增大, 小颗粒尾矿含量增高, 孔隙度减小, 导致了氡析出率随分维值增大而减小. 但是, 随着分维值的增大, 小颗粒增多, 由反冲作用引起的氡释放进入孔隙的几率增大, 又导致氡析出率随分维值增大而轻微增高.

关键词: 铀尾矿; 氡析出率; 分形; 粒度分布

中图分类号: X591; N93; TD868

文献标识码: A

Preliminary Study on Influence of Fractal Size Distribution on Radon Emanation from Uranium Tailings

TAN Kai-xuan, ZHOU Yuan*, XIN Zhong-hua*, WANG Lian-sheng*

(School of Nuclear Resources and Nuclear Fuel Engineering University of South China

Hengyang Hunan 421001, China)

Abstract The emanation of radon from the uranium tailings is a typical environment problem which is fully valued. The influence of fractal size distribution of tailings on radon emanation rate was experimentally studied. The results indicate that the radon emanation rate from uranium tailings behave oscillatory change. With the fractal dimension of 2.3- 2.8, the radon emanation rate decreases evidently with the increasing of fractal dimension and reaches the minimum at the fractal dimension of 2.6 and then increases slowly with increasing of fractal dimension. Recoiling He-Rn cluster forming and heterogeneity of uranium tailings lead to the oscillating change of radon emanation. With the increasing of frac-

收稿日期: 2009- 12- 17

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (10675059); 湖南省大学生研究性学习和创新性实验计划基金资助项目 (湘教通 (2008) 89号 - 125)

作者简介: 谭凯旋 (1963-), 男, 湖南湘潭人, 南华大学核资源与核燃料工程学院教授, 博士生导师. 主要研究方向: 地球化学和溶浸采矿. * 南华大学核资源与核燃料工程学院矿物资源工程专业, 2006级本科生.

tal dimension of size distribution, the contents of small grain increase and the porosity decreases, which result in the decreasing of radon emanation rate with the increasing of fractal dimension. However, with the increasing of fractal dimension and the increasing of small grains, the probability that radon release to pore by recoiling increases, which cause that radon emanation rate increases slightly as the fractal dimension increases.

Key words uranium tailings; radon emanation rate; fractal size distribution

0 引言

氡是天然存在的一种无色无味的情性放射性气体, 原子序数 86, 是元素周期表中第六周期的零族元素。氡是天然放射性铀钍衰变系列中镭同位素的衰变子体, 本身亦具有放射性。氡具有 3 种同位素, Rn- 222 是 U 系 (238U) 衰变的中间产物, Rn- 220 是 Th 系衰变的中间产物, Rn- 219 是 Ac 系衰变的中间产物, 它们的半衰期分别为 3 825 d、54. 5 s 和 3. 92 s。由于 ²²⁰Rn 和 ²¹⁹Rn 的半衰期短, 因而在环境中含量最多、对人体危害最大的主要是 Rn- 222 及其短寿命子体, 如果长期呼吸高浓度氡气, 将会造成上呼吸道和肺伤害, 甚至引发肺癌。

在铀矿开采和加工过程中产生了大量的尾矿, 它们一般集中堆置在地表的特定地方并形成尾矿库, 这些尾矿是潜在的大体积低放射性物质和放射性情性气体氡的重要来源。与尾矿有关的典型环境问题是氡的析出, 尽管氡的半衰期短, 只有 3. 8 d, 但是铀尾矿中所产生的氡大量的可以通过尾矿迁移而到达大气中。因此, 铀矿山尾矿的治

理和降低氡析出率是非常重要的环境问题, 引起了国际原子能机构和广大科技工作者的高度重视^[1-6]。20 世纪 80 年代以来, 我国也先后有多座铀矿山和水冶厂关停或部分关停进行退役环境治理工作, 重点是治理废石场和尾矿库, 降低氡析出率。铀尾矿中氡析出和迁移机理的研究是寻求有效治理措施的基础。本文应用分形理论, 研究铀尾矿的分形结构特征对氡析出的影响。

1 实验方法

1. 1 样品特征

实验用的铀尾矿样品来自广东韶关某铀矿。该铀矿历经 50 余年的开采, 已堆积了数百万吨尾矿, 形成了规模宏大的尾矿库。该矿为花岗岩型铀矿, 矿石化学成分以 SiO₂ 为主 (见表 1), CaO、MgO 含量较低, 近十多年采用地表酸法堆浸法提取铀。堆浸尾矿的主要化学组成与原矿石基本相同, 仍含有较高的放射性元素 U 和 Ra。尾矿样品的筛分分析 (见表 2) 表明堆浸尾矿粒度比较大, 分布范围主要在 0. 1- 10 mm 之间, 占 93% 左右, 其中 1- 10 mm 的粒度占 70% 左右。

表 1 广东某铀矿矿石平均化学成分 (%)

Table 1 The chemical composition of ores and tailings in some mine in Guangdong

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	FeO	K ₂ O	Na ₂ O	CaO	MgO	TiO ₂	MnO	P ₂ O ₅	U	Ra/(Bq·g ⁻¹)
矿石	80.56	10.27	2.23	0.78	4.15	0.11	0.33	0.30	0.153	0.035	0.341	0.14	
尾矿	81.16	9.57	3.37	0.16	3.97	0.13	0.15	0.10	0.13	0.14	0.28	0.04	33.71

表 2 广东某铀矿堆浸尾矿粒度分布

Table 2 The size distribution of uranium tailings in some mine in Guangdong

粒径/mm	> 10	10- 5	5- 2.5	2.5- 1	1- 0.8	0.8- 0.6	0.6- 0.4	0.4- 0.25	0.25- 0.105	< 0.105
重量分布/%	1.87	28.71	28.04	13.66	6.03	2.58	5.77	3.78	4.985	4.575

1. 2 分形样品的制备

研究表明, 描述像破碎岩石和土壤等物质颗粒大小分布的最佳方法是采用颗粒大小频率的分形关系^[7]:

$$N(r) \propto r^{-D} \tag{1}$$

这里 $N(r)$ 表示大于尺度 r 的颗粒数量, D 为分维值。但是实际操作中很难直接计数出岩石的颗粒数量。因此, 所取的岩石、尾矿样品一般采用筛分称重技术进行分析^[8], 即用标准系列筛进行筛分, 对每一级筛所筛下的样品称重并除以样品

总重量计算其重量百分比. 小于尺度 r 的筛下物质的累积重量百分比满足:

$$M(r^-) / M \propto r^n \tag{2}$$

式中 $M(r^-)$ 小于尺度 r 的筛下物质的累积重量百分比, M_i 为样品总质量. 假设尾矿颗粒形状可以近似为球形, 最大粒径为 r_{max} 可由式 (1) 和式 (2) 推导出:

$$\frac{M_r}{M_i} = \left(\frac{r}{r_{max}}\right)^{3-D} \tag{3}$$

根据上式即可配置出具有不同粒度分布分维值的尾矿样品. 首先将所采的 1 吨左右的尾矿样品自然风干, 用孔径分别为 10 5 2 5 1 0 9 0 8

0 6 0 4 0 25 0 105 mm 的 10 级筛对尾矿进行筛分, 筛分出 > 10 mm、10– 5 mm、5– 2 5 mm、2 5– 1 mm、1– 0 9 mm、0 9– 0 8 mm、0 8– 0 6 mm、0 6– 0 4 mm、0 4– 0 25 mm、0 25– 0 105 mm 和 < 0 105 mm 等 11 个粒级. 由于 > 10 mm 粒级的样品量比较少, 因此该粒级不参与配置组合样品, 取 $r_{max} = 10$ mm, 每个样品配置 30 kg 即 $M_i = 30$ kg 这样由式 (3) 计算出给定分维值 D 时样品的各粒级的重量. 本次实验配置了分维值 D 分布为 2 3 2 4 2 5 2 6 2 7 2 8 等 6 个组合样品, 各样品的粒级配比计算结果如表 3

表 3 不同分维值组合样品配比表 (kg)

Table 3 The proportioning of samples with different fractal dimension

样号	Z- 11	Z- 12	Z- 13	Z- 14	Z- 15	Z- 16
分维 D	$D = 2\ 3$	$D = 2\ 4$	$D = 2\ 5$	$D = 2\ 6$	$D = 2\ 7$	$D = 2\ 8$
10– 5	11 53	10 21	8 79	7 26	5 63	3 88
5– 2 5	7 1	6 73	6 21	5 51	4 58	3 38
2 5– 1	5 38	5 52	5 51	5 29	4 75	3 81
1– 0 9	0 43	0 47	0 49	0 49	0 47	0 4
0 9– 0 8	0 44	0 48	0 51	0 53	0 51	0 43
0 8– 0 6	0 93	1 04	1 14	1 18	1 16	1 01
0 6– 0 4	1 04	1 2	1 35	1 46	1 48	1 33
0 4– 0 25	0 88	1 07	1 36	1 42	1 5	1 41
0 25– 0 105	1 03	1 33	1 67	2 01	2 27	2 2
小于 0 105	1 24	1 95	3 07	4 85	7 65	12 06
总重量	30	30	30	30	30	30

1. 3 实验与氡的测量

将配置好的样品分别装入直径 15 cm、高度 1. 5 m 的圆柱中. 实验在通风条件良好的室内进行, 整个实验过程中温度、大气压力、湿度等基本保持恒定状态, 即气象条件变化对氡析出的影响可忽略不计.

氡析出率采用 FD– 3017 型测氡仪进行测量. 该仪器利用静电收集氡衰变的第一代子体 — RaA (^{218}Po) 作为测量对象, 是一种高灵敏的、快速的、准确的现场氡测量仪器. 测氡时, 在实验柱上面扣一个不透氡、不吸氡、不溶氡材料制成的集氡盖, 盖的底面直径与实验柱相同 (15 cm)、高度为 8 cm, 顶部开一个小孔并装上取样管, 取样管内径 7 mm, 并与测氡仪的取样管相连接.

该仪器主要由抽气泵和测量操作台两部分组成, 抽气泵除了完成抽取气体或水样脱气任务外, 还将起到贮存收集氡子体的功能. 当氡射气经干

燥器被抽入桶内后, 随即开始衰变, 并产生新的子体在 — RaA, 它在初始形成的瞬间是为带正电的离子, 本仪器就是利用它的带电特性, 采用外加电场的方式对它进行收集, 使 RaA 离子在电场作用下被浓集在带负高压的金属收集片上, 在经过一段时间加电收集后, 取出金属片放入到操作台探测器内测量 RaA 的 α 放射性, 其强度与氡浓度成正比, 按下式可直接计算氡浓度:

$$E = \frac{K \times N \times h}{t} \tag{4}$$

式中: E 为氡析出率 ($\text{Bq}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$); N 为仪器测量的 α 脉冲计数; K 为换算系数, 通过标定确定, 此系数包括了装置的子体收集效率和测量效率等因素, 本次实验由南华大学的氡湖南省重点实验室标定 为 150 h 为样品表面与集氡盖顶的高度 (m); t 为氡收集时间 (s).

2 实验结果

每天在上午 10 点和下午 16 点分别测量 2 次, 实验结果列于表 4.

本次实验在 2008 年 8 月进行, 共测量 10 天,

表 4 氡析出率实验结果 (Bq/m² s)
Table 4 The experiment result of radon emanation rate

测量时间	Z- 11	Z- 12	Z- 13	Z- 14	Z- 15	Z- 16
2008 8 13 10	7. 498	18. 709	17. 627	8. 632	6. 972	13. 820
2008 8 13 16	23. 277	5. 190	7. 479	5. 596	7. 928	10. 404
2008 8 14 10	26. 211	6. 249	3. 424	4. 949	8. 082	8. 753
2008 8 14 16	24. 104	18. 012	3. 735	2. 049	3. 823	4. 582
2008 8 15 10	36. 428	31. 113	11. 603	5. 806	7. 720	9. 739
2008 8 15 16	29. 663	37. 114	22. 085	7. 281	7. 625	9. 175
2008 8 16 10	47. 24 1	22. 377	19. 998	5. 969	7. 873	8. 828
2008 8 16 16	23. 208	15. 318	15. 016	7. 989	7. 626	8. 521
2008 8 17 10	25. 458	28. 386	16. 569	5. 099	8. 142	9. 201
2008 8 17 16	48. 893	27. 787	11. 718	6. 126	5. 677	5. 920
2008 8 18 10	27. 107	39. 555	21. 603	5. 698	5. 502	6. 565
2008 8 18 16	9. 341	17. 909	10. 799	4. 863	5. 674	6. 903
2008 8 19 10	22. 152	4. 990	8. 072	4. 809	5. 420	4. 868
2008 8 19 16	22. 306	21. 056	11. 327	8. 382	11. 751	12. 118
2008 8 20 10	11. 452	15. 848	7. 728	8. 447	10. 080	13. 819
2008 8 20 16	32. 994	5. 489	3. 941	5. 304	12. 305	4. 414
2008 8 21 10	16. 075	26. 690	14. 523	10. 956	10. 989	10. 131
2008 8 21 16	31. 795	15. 024	6. 104	6. 078	7. 478	8. 920
2008 8 22 10	12. 914	11. 261	7. 035	6. 771	10. 344	12. 076
平均	25. 164	19. 372	11. 600	6. 358	7. 948	8. 882

3 分析与讨论

从实验结果 (见表 1) 可看出如下特征: 1) 所有尾矿样品的氡析出率都比较高, 显著高于环境限定值, 因此这些尾矿需要进行治理以降低氡析出率; 2) 每个实验的氡析出率变化比较大, 随时间呈现振荡性的变化; 3) 氡析出率无论是最大值、最小值和平均值都呈现出随样品粒度分布分维值的增大先是显著减小的趋势, 至分维值为 2.6 时达到极小值, 然后随分维值的增大略有增高 (见图 1), 这种变化特征以氡析出率最大值和平均值最明显, 氡析出率最小值的变化趋势相对较小.

氡的析出率取决于尾矿中母体 (²²⁶Ra) 的含量、气象条件、尾矿特征如水含量、孔隙度等, 由于本文实验是在室内进行的, 温度、大气压、风流和尾矿含水量的变化较小, 因此这些外部因素变化对氡析出率的影响较小, 其氡析出率的变化主要是其内部机制引起的.

尾矿中 Rn 是由 Ra 经 α 衰变而来, 当 Ra 经 α 衰变为 Rn 时, 会放出一个 α 粒子, α 粒子即高速运动的氦核 ⁴He. α 粒子与物质作用逐渐损耗其能量后, 则成为 ⁴He 衰变后的新原子核会受到 α 粒子的反冲, 使 Ra 经 α 衰变成 Rn 时, Rn 可脱离原在矿物中的结晶格架或离开原来位置. Ra 经 α 衰变, 辐射出的 α 粒子进入矿物孔隙之中. 其减速后, 成为 ⁴He. 由于其反冲能量为 100 keV, 氦原子在固体中运动的距离只有几十纳米. 因此只有接近颗粒表面的区域的 Rn 才能反冲进入孔隙中, 此外还可能有少部分 Rn 在反冲过程中再射入到固体中. 因此尾矿中 Ra 衰变成 Rn 的过程中, 由于反冲作用, 产生 α 粒子及稍后形成的 ⁴He 和反冲核 Rn 只有部分能进入孔隙中. 文献 [9-10] 报道了铀矿物中氡析出呈现不连续性、阵发性现象, 铀矿物内部孔隙发育各异, Ra 经 α 衰变放出 Rn 及 He 等, 并形成 He-Rn 团簇, 待其在矿物内部聚集到一定压力时, 由铀矿物裂隙释放到矿物外部, 从而引起氡的阵发性释放. 此外, 尾

矿中 Ra分布的不均匀性、孔隙的分形结构特征都可引起氡析出率的振荡性变化。

尾矿中氡原子或 He-Rn团簇是沿着孔隙扩散迁移至空气中,主要是受压力和温度引起的对流、空气和水充填孔隙中的分子扩散。在不饱和多孔介质中水流动速率一般很低,由水引起的氡对流通常可以忽略不计。一般可采用稳态氡扩散模型来研究尾矿中氡的迁移和析出^[11]。在这种情况下,孔隙平均氡扩散系数与尾矿的孔隙度和水分含量具有如下关系:

$$D = \bar{D}_0 \exp(-6m\bar{i} - 6m^{1.4\bar{i}}) \tag{5}$$

式中 D 为土壤孔隙空间中氡扩散系数 (m^2/s), $\bar{i}$ 为孔隙度, $\bar{D}_0$ 为氡在空气中扩散系数 ($1.1 \times 10^{-5} \text{m}^2/\text{s}$), m 为孔隙中水饱和分数。由于本文实验在

室内进行,尾矿中含水率低且各实验基本一致,因此含水率变化的影响较小,这样从方程(5)可表示主要受孔隙度的影响,氡扩散系数 D 随尾矿孔隙度降低而减小。松散介质的孔隙度主要受粒径分布的影响,小颗粒可以占据大颗粒之间的孔隙从而使孔隙度减小。从表3可见,随尾矿粒度分布分维值增大,小颗粒尾矿所占比例逐渐增高,其孔隙度也将逐渐减小。因此导致了氡析出率随尾矿粒度分维值增大而减小的规律。但是随着样品中小颗粒的增多,由反冲作用引起的氡释放进入孔隙的几率增大(因为反冲射程仅几十纳米),这就可能导致了在分维值大于2.6后,氡析出率随分维值增大不再减小而是趋于平稳甚至轻微增高的现象。

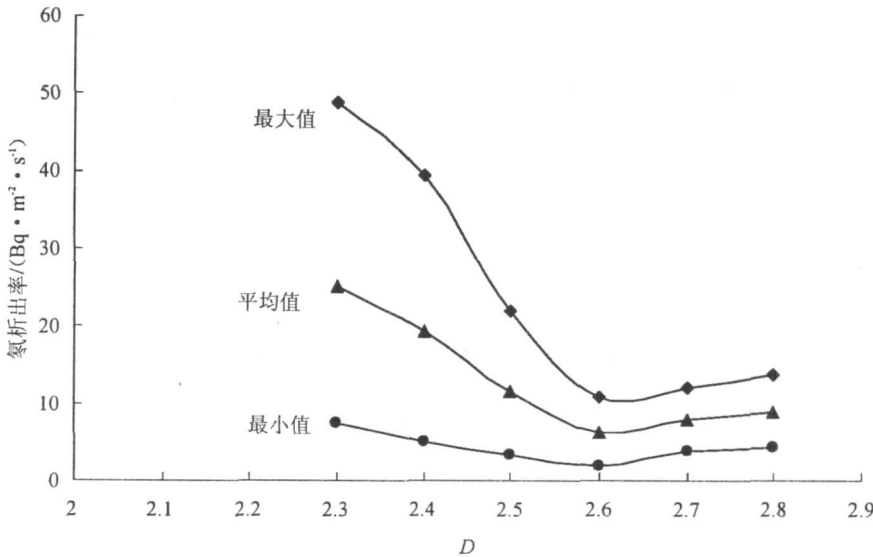


图1 铀尾矿氡析出率随粒度分布分维值的变化

Fig 1 The change of the radon emanation rate from uranium tailings with fractal dimension of size distribution

4 结论

本文通过不同粒度分形分布的组合尾矿样品的氡析出率实验,可得出如下初步结论:

- 1) 尾矿的氡析出率都比较高,显著高于环境限定值,因此这些尾矿需要进行治理以降低氡析出率;
- 2) 氡析出率随时间呈现振荡性的变化,反冲作用与 He-Rn团簇的形成以及尾矿的非均匀性导致了氡析出的不连续性和振荡变化;
- 3) 氡析出率随尾矿粒度分布分维值的增大显著减小,至分维值为2.6时达到极小值,然后随

分维值的增大略有增高。分维值增大,小颗粒尾矿含量逐渐增高,其孔隙度逐渐减小,导致了氡析出率随尾矿粒度分布分维值增大而减小的规律。但是,随着样品中小颗粒的增多,由反冲作用引起的氡释放进入孔隙的几率增大,又导致了在分维值大于2.6后,氡析出率随分维值增大而轻微增高的现象。

参考文献:

[1] IAEA - International Atomic Energy Agency. Measurement and Calculation of Radon Releases from Uranium Mill Tailings[M]. IAEA Technical Reports Series No 333, Vienna, Austria, 1992. (下转第16页)

险高的部分原因是它们的始发事件频率相对较高,而更重要的原因还是由用于缓解事故的安全功能的设备失效所致.

HRA 严重事故序列分析可以支持操纵员培训,因为它提供如下的信息:支配性事故序列,事故进程,和操纵员干预行动.严重事故序列可以被挑选出来作为重点培训用的事故情景,在严重事故分析中特别关键和频繁出现的操纵员行动,可以转换成操纵员模拟机培训内容的一部分,通过有针对性地模拟培训,在操纵员头脑中建立严重事故发生、演变的图像,提高操纵员对严重事故的辨识和响应能力.

根据对于操纵员行动的分析, FV 重要度值大的操纵员行动对电厂安全的重要性就大, FV 重要度值小的操纵员行动对电厂安全的重要性就小.对于以下按照 FV 重要度排在前面的操纵员行动,电厂应安排操纵员重点演练,并使相应的操作规程更加完善,以提高操纵员行动的可靠性.

3 结束语

HRA 严重人因事故分析是对核电厂安全评价的重要方法,能够清楚地评价事故后人因事件发展进程,有助于根据电厂的实际状况获得核电厂人因干预的弱项,了解事故后严重人因事件事

故进程中的操纵员行为.基于该分析对于电厂的改进,能够有效提高核电厂对于风险的抵御能力.这种方法已经在国外大多数的核电厂安全分析和工程管理中广泛采用,国内一些在役核电厂目前已经结束或者正在开展.

参考文献:

[1] Wilmar P, Grant A. Nuclear Energy Agency. Critical Operator Actions Human Reliability Modeling and Data Issues [R]. France, Issy- les- Moulineaux OECD Nuclear Energy Agency, 1998

[2] Swain A D, Guttmann H E. Handbook of human reliability analysis with emphasis on nuclear power plant applications[R]. NUREG /CR - 1278 Albuquerque Sandia National Laboratories, 1983

[3] Human Reliability Analysis in Probabilistic Safety Assessment for Nuclear Power Plants [R]. A Safety Practice Safety Series No. 50- P- 10, Vienna INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY., 1995

[4] 戴立操, 张 力, 黄曙东. 核电厂 HRA 定性评价及应用 [J]. 工业工程与管理, 2005(1): 17- 20

[5] 黄曙东, 张 力. THERP+ HCR 时间接口研究 [J]. 人类工效学, 2002, 8(1): 5- 8

[6] Hannan G W. Human Cognitive Reliability Model for PRA Analysis[R]. American EPRI 1984

(上接第 12 页)

[2] IAEA - International Atomic Energy Agency. Current Practices for the Management and Confinement of Uranium Mill Tailings[M]. IAEA Technical Reports Series No. 335, Vienna Austria, 1992

[3] Ota M, Iida T, Yanazawa H, et al. Suppression of radon exhalation from soil by covering with clay- mixed soil [J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2007, 44(5): 791- 800

[4] Paschoa A S, Torrey J A, Wrenn M E. Reducing radon exhalation from covered tailings: optimization or cost effectiveness[J]. The Science of the Total Environment, 1985, 45: 187- 194

[5] 杨明理, Shinji Tokonami, 蔡振民, 等. 某铀尾矿库周边地区氡调查 [J]. 核技术, 2002, 25(7): 545- 550

[6] 黄建兵. 某铀矿山废石场及尾砂库氡污染调查 [J]. 环

境监测管理与技术, 2001, 13(2): 27- 30

[7] Perfect E. Fractal models for the fragmentation of rocks and soils: a review [J]. Engineering Geology, 1997, 48: 185- 198

[8] Sammis C G, Osborne R H, Anderson J L, et al. Self-similar cataclasis in the formation of fault gouge[J]. Pure Appl Geophys, 1986, 124: 54- 77.

[9] 贾文懿, 方 方, 周蓉生, 等. 氡释放的实验研究与机理探讨 [J]. 成都理工学院学报, 2002, 29(1): 61- 64

[10] 乐仁昌, 贾文懿, 吴允平. 氡运移实验研究与氡团簇运移机理 [J]. 辐射防护, 2002, 22(3): 175- 181.

[11] Rogers V C, Nielson K K. Correlations for predicting air permeabilities and 222Rn diffusion coefficients of soils [J]. Health Physics, 1991, 61: 225- 230