

包气带对铀尾矿库放射性液态流出物阻隔能力的实验研究

潘宇翔^{1,2}, 桂 荣^{1,2*}, 孟华柯¹, 娄亚龙^{2,3}, 张静琪¹, 成海涛¹

(1.南华大学 核资源工程学院,湖南 衡阳 421001;2.南华大学 湖南省铀尾矿库退役治理工程技术研究中心,
湖南 衡阳 421001;3.南华大学 环境与安全工程学院,湖南 衡阳 421001)

摘 要:以湖南某铀尾矿库放射性渗滤液为研究对象,将铀酰离子作为特征污染因子,选取其周边有代表性的土层制作两组具有相同含水率的砂柱,研究包气带对铀废液的吸附和阻滞能力及铀酰离子在包气带中的迁移规律.结果表明:1)包气带对铀渗滤液具有较强的阻滞和载蓄作用,可有效延缓其污染地下水的的时间;2)包气带对废液的蓄纳过程具有阶段性特征,可分为稳定吸纳和缓慢发育两个阶段,最大吸纳能力为 38.20 kg/m^3 ;3)铀酰离子随着在砂土中迁移深度的增加,浓度逐渐降低.

关键词:包气带;阻滞;放射性渗滤液;平衡

中图分类号:X591 **文献标志码:**A

Experimental Research on Soil Barrier Ability of Radioactive Seepage from Uranium Tailings Dams

PAN Yu-xiang^{1,2}, GUI Rong^{1,2*}, MENG Hua-ke¹,
LOU Ya-long^{2,3}, ZHANG Jing-qi¹, CHENG Hai-tao¹

(1.School of Nuclear Resources Engineering, University of South China, Hengyang, Hunan 421001, China;
2.Engineering Technology Research Center of Uranium Tailings Treatment of Hunan Province,
University of South China, Hengyang, Hunan 421001, China;3.School of Environmental
and Safety Engineering, University of South China, Hengyang, Hunan 421001, China)

Abstract: The radioactive seepage sampled from a uranium tailings reservoir in Hunan is as the research object, the uranyl ion is picked as the typical pollution factor of radioactive seepage. Select the characteristic soil layer surrounding uranium tailings dams, and make two sets of sand column with the same moisture content. Laboratory simulation tests of sand column were performed to investigate the obstruction and adsorption capacity of unsaturated

收稿日期:2017-05-18

基金项目:环保部科研基金资助项目(JG1509;JG1620;JG1721);衡阳市科技局基金资助项目(2014KS27);南华大学
校级创新团队基金资助项目;核资源与环境大学生创新训练中心创新实验基金资助项目

作者简介:潘宇翔(1994-),男,硕士研究生,主要从事于铀尾矿库岩土灾害防治的研究.E-mail:lx_pyx@126.com.

* 通讯作者:桂 荣,E-mail:guirong606@163.com

zone to radioactive seepage, and master the regularity of uranyl ion transport in unsaturated zone. The results show that the unsaturated zone has a strong effect of obstruction and storage capacity to the uranium wastewater, which can effectively prolong the contaminated initiation time. The absorption with stage division, can be divided into two stabilization and slow development stage. And maximum absorptive capacity of unsaturated zone is 38.20 kg/m^3 . With the increasing depth of migration in the sand, the concentration of uranyl ion decreased gradually.

key words: unsaturated zone; obstruction; radioactive seepage; balance

0 引言

降雨、地质活动和化学溶滤等不利因素的作用,大量的放射性渗滤液从尾矿库渗透到周围土壤中,破坏土中原有的生物环境,会污染地下水资源,对人类造成危害^[1-3].包气带作为地表与地下含水层之间的连接带,由于其内部具有复杂的水文地质结构^[4],起到了阻止外界污染物进入地下潜水层的屏障作用^[5].

近年来,已有较多学者对污染物在包气带中迁移规律展开了研究. Robert W. Puls 等^[6]对镀铬车间周边土壤和含水层中污染物迁移和环境影响程度进行研究,发现包气带对 Cr^{3+} 具有吸附截留作用. Žana 等^[7]收集和总结了两处放射性废物处置场包气带的水力特性和含水量. Zhao Xingmin 等^[8]采用三维实验装置对包气带及含水层中 Cr(VI) 分布、迁移和转化规律进行了研究,发现被吸附的铬发生了馏分转化. Ali M. Khan 等^[9]研究了非饱和区浅含水层阻碍挥发性有机化合物扩散的能力,发现包气带对 VOC 具有极高的生物降解率. Raffaella Testoni 等^[10]提出并采用了 HYDRUS 1D 和 MODFLOW/MT3DMS 的测试方法分析了放射性核素在不饱和区的迁移规律,发现不饱和区对放射性核素进入环

境具有延缓和吸附作用. 陈子方等^[11]研究了铬和铅在包气带中的迁移速率及淋洗溶出率,发现了 Cr^{6+} 具有很强的迁移性且容易淋洗去除,而 Pb^{2+} 的迁移性较差且难通过淋洗去除. 王翠玲等^[12]对 PTA 废液在包气带中的吸附性和弥散系数进行分析,认为包气带对 COD 具有阻隔作用,但生化性不高. 这表明包气带对液态污染物的迁移速度和迁移转化量具有一定影响.

由于铀尾矿库放射性液态流出物成分的特殊性,包气带对其阻隔机理和具体过程显得更为复杂. 因此,有必要对某一典型铀尾矿库,展开室内试验探究其周围土壤中包气带对放射性液态流出物的吸附阻滞能力,掌握放射性液态流出物在包气带中的迁移规律,为研究铀尾矿库放射性液态流出物的防护处理服务做铺垫.

1 材料与方法

1.1 实验土样

试验土样取自湖南某铀尾矿库周边,去除表层覆土,选取具有代表性的非饱和带土体,其主要成分为砂土介质. 将采集到的土样烘干,去除其中杂质,取两组土样进行筛分试验,得到土样的颗粒级配累计曲线如图 1 所示.

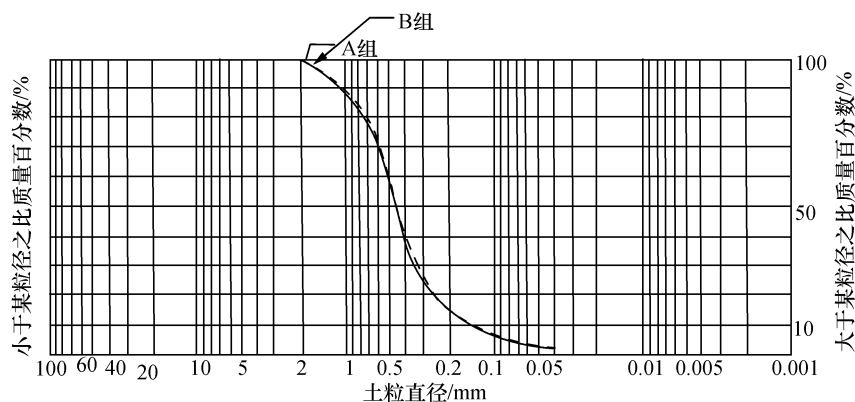


图 1 土样累计曲线图

Fig.1 The particles cumulative curves of sands sample

设置三组平行样,采用烘干法测定土样含水率,结果见表 1.试验采集的砂土有效粒径 d_{10} 为 0.146 mm,中值粒径 d_{30} 为 0.35 mm,限制粒径 d_{60} 为 0.508 mm.砂样的曲率系数 C_c 为 1.652,不均匀系数 C_u 为 3.479.其中 $C_u < 5$, $C_c > 1$,说明该砂土试样颗粒均匀,级配不良.

表 1 土样含水率测定结果表
Table 1 Test results of moisture content

分组	烘干前土样 质量 m_1/g	烘干后土样 质量 m_2/g	含水率 $w/\%$
1#	34.8	31.5	9.5
2#	28.6	26.0	9.1
3#	32.7	29.5	9.8

1.2 实验溶液

实验所用铀废液分别取自该铀尾矿库的废水收集井、坝体水位监测井和回灌出水口,分别标号为 S1、J1、J2、J3 和 H1,采用分光光度计测定其铀酰离子的质量浓度,同时测得 pH 值,结果见表 2.该尾矿库坝体水位监测井中铀酰离子的质量浓度较高,最高质量浓度约为 1.641 mg/L,而废水收集井和回灌出水口的质量浓度相对较低.考虑到放射性废液发生迁移扩散主要集中在坝体渗漏,因此确定实验所用废液中铀酰离子质量浓度为 1.59 mg/L, pH 值为 5.78.

表 2 铀尾矿库废液参数表
Table 2 Parameters of effluent in uranium tailings dams

样品	S1	J1	J2	J3	H1
铀酰离子质量浓度/(mg · L ⁻¹)	1.370	1.626	1.505	1.641	1.330
pH 值	6.76	5.19	5.57	4.86	6.54

1.3 实验装置

取若干个内径为 20 cm,高度为 15 cm,外沿 2 cm 宽,底部设有铁丝网的有机玻璃单元柱^[13],在位于最底层的单元柱铁丝网上铺设一层土工布,然后从装置上方装入烘干后砂样,在装填过程中保证砂样装填均匀,将各单元柱用螺栓依次连接.实验设置两组砂柱,分别编号 M1 和 M2,保证两组装置内土样等量,且振捣压实至与原位土密实度一致,组装完毕后的试验装置如图 2 所示.将 M1 组下接一个装满砂砾(粒径为 2 mm)的单元柱,并将其放置在水槽内,且实验过程中始终保持水位恰好没过底层土柱的下外沿,直至其毛细带生成完毕,M2 组仅作湿润处理.

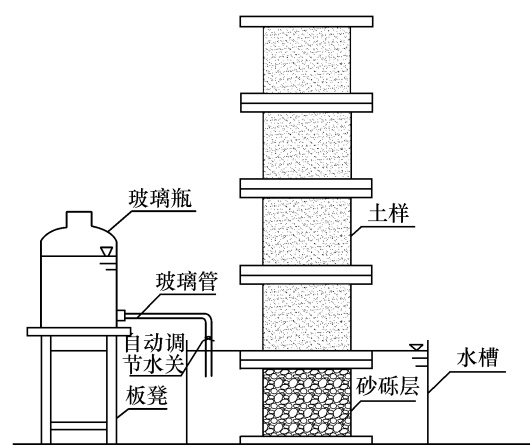


图 2 砂柱模型包气带形成图
Fig.2 Generation of unsaturated zone in sand column model

1.4 实验方法

实验开始前,称量 M1 和 M2 两组装置质量,使其保持相等.在两组砂柱上方同时采用蠕动泵进行铀废液的淋喷,喷淋量控制在 3 g/min,使其处于自然渗流状态,实验装置详见图 3.待装置下方开始渗出废液时,记录时间,并根据渗流情况,间隔相应时间测量渗出废液的流速和收集 20 mL 渗液.待两组试验的喷淋流速与渗出流速相等且出水量稳定时,停止淋喷.

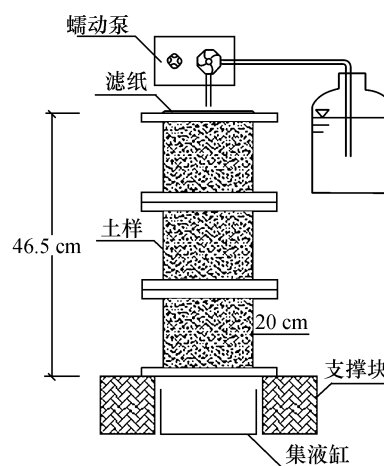


图 3 砂柱淋喷实验装置图
Fig.3 Apparatus of spray sand column experiment

淋喷试验结束后,立即分层拆除砂柱,采集不同高度处有代表性的砂样,取样间距为 8 cm.采用烘干法测定其含水率,并用球磨机将烘干后的砂土磨成粉末状,用样品带分装.各称取 0.1 g 样品,用王水进行溶解后,采用 ICP-MS 测定砂土中铀含量^[14].此外,取三组原位土样测定其铀含量,方

法同上,并采用分光光度计法测定所收集渗出液中铀酰离子含量。

2 结果与讨论

2.1 包气带形成规律分析

砂柱在形成包气带过程中,记录润湿段距潜水位(水槽水位)的高度,其高度随时间的变化规律曲线如图4所示。经过15 d的静置发育,砂柱润湿段基本稳定,说明该中砂土的包气带基本形成,其最大上升高度为45.5 cm。湿润段上升速度随时间增长而逐渐趋缓,这与董斌等^[15]所得结论一致。但本文根据所测样本建立的上升高度与时间的回归方程,与其所建立的对数形式的二次多项式存在一定的差异性,这可能是由于土样中含泥量、压实度和化学成分等因素的差异性所造成的。

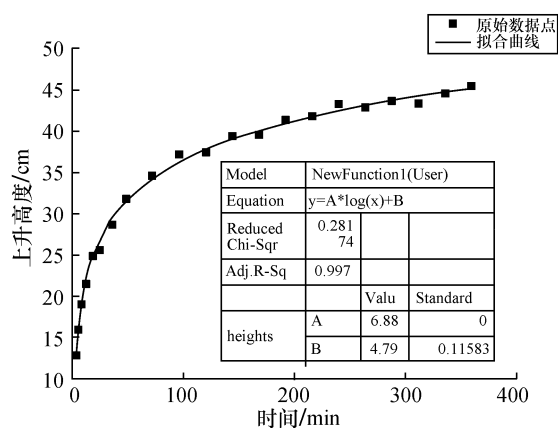


图4 砂柱润湿段上升高度与时间关系曲线

Fig.4 The relationship between the rising heights of wetted section and the time for sand column

2.2 放射性废液在包气带中的渗流规律分析

如图5所示,根据砂柱喷淋实验,M2组发生渗流时间为开始喷淋后80 min,M1组晚于M2组150 min,这说明包气带对放射性废液进入地下潜水层具有一定的阻滞能力。在两组装置各自发生渗流后的90~100 min内,其渗流流速的变化规律基本保持一致,都呈对数型快速地增长。在经过对数发展期后,M2组渗流速率基本保持在3.05 g/min,与喷淋速率相近;而M1组在短时间内渗流速率发生了较大幅度的下降,且在此后始终保持低速增长,经过1000 min左右的低速发展期,M1组渗流速率才与喷淋速率相近,维持在3 g/L。这可能是由于砂柱中包气带蓄水量达到一定量后,使得砂柱中毛细水带进一步发育,提高了砂柱的蓄纳能力。

从开始淋喷到实验结束,砂柱中灌入铀废液累计量为6.725 kg,M1中累计渗流量为5.342 kg,M2中累计渗流量为5.9 kg,将M1组与M2组渗流量的差值作为包气带储纳铀废液的能力,则该砂柱中包气带可蓄纳铀废液0.558 kg,这说明该铀尾矿周边土壤中包气带吸纳放射性流出物能力为38.20 kg/m³。

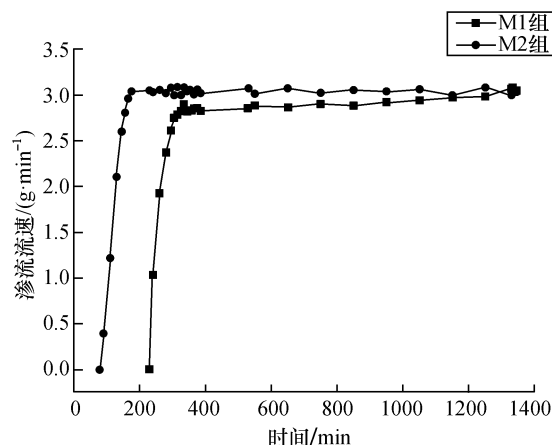


图5 砂柱渗流速率变化图

Fig.5 The curves of seepage rate in sand column

2.3 包气带载蓄量分布规律

淋喷结束后,测得砂柱不同高度处砂样含水率的分布情况如图6所示。M1组砂样含水率在各高度处都高于M2组,说明包气带能在一定程度上提高土体对铀废水的蓄积能力。M1组中距潜水位21 cm处砂层(大致处于砂柱润湿段中部)的含水率明显高于其他各点,这是由于该段受重力及外界环境等作用程度最小,介质最能保持其含水率^[16]。

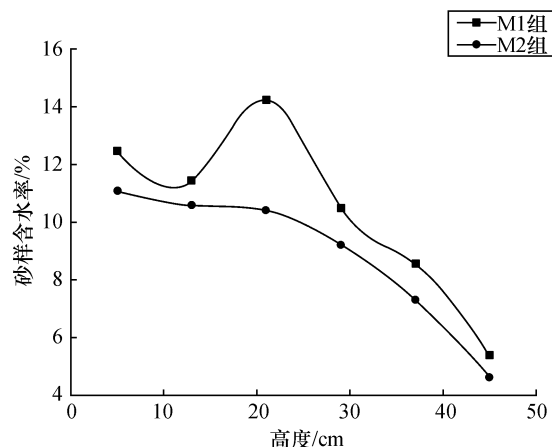


图6 不同高度处砂样含水率分布情况

Fig.6 The moisture content of sand in the different height

2.4 包气带中铀酰离子迁移规律分析

在 ICP-MS 测定土样中铀元素实验中,原位土样中未检测出铀元素,其余各组将所测得的铀元素浓度换算成铀酰离子浓度,可得砂柱中铀酰离子浓度随取样高度变化曲线如图 7 所示.M1 和 M2 组砂土中铀酰离子浓度无明显差别,在铀废液喷淋过程中,铀酰离子在重力和惯性作用下向下迁移到砂土中,随着迁移深度的增加,土样中铀酰离子浓度逐渐降低.在距砂柱顶部 1.5 cm 处,砂土中铀酰离子浓度最高为 0.29 mg/kg,在距砂柱底部渗水口 5 cm 处,其浓度最高为 0.06 mg/kg.并且从淋喷试验开始到两组试验渗水量稳定,渗液中均未检测出铀酰离子.由此可知,与仅作湿润处理的对照组相比,从铀废液浸入包气带到废液从包气带稳定地向周围介质扩散过程中,未体现出包气带对铀酰离子明显的吸附能力,说明在这阶段砂土中铀酰离子浓度的衰减主要是由于砂颗粒表面的负电荷对铀酰离子的吸附作用引起的.

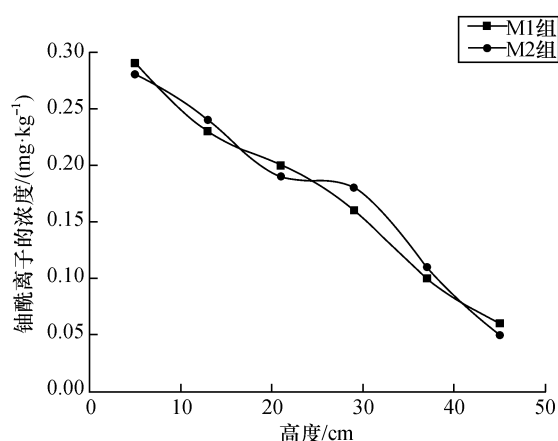


图7 铀酰离子浓度随高度变化曲线

Fig.7 The curves of the concentration of uranium ion with height of wetted section

3 结 论

通过对湖南某铀尾矿库周边地区有代表性的包气带土层进行砂柱喷淋试验,研究土体对铀酰离子的去除能力和包气带的阻滞能力,试验结果表明:

1) 铀尾矿库周边地区包气带的上升速度随时间增长而逐渐趋缓,且满足对数函数关系规律,静置发育 15 d 后到达最大上升高度为 45.5 cm.

2) 喷淋试验中,包气带组能有效阻滞放射性废液晚于对照组进入地下潜水层,并且包气带达

到一定蓄水量后,可使得毛细水带进一步发育,提高蓄纳废液的能力,其最大吸纳放射性流出物能力为 38.20 kg/m³,且距潜水位 21 cm 处砂层的废液含量明显高于其他各点.

3) 铀酰离子随着在砂土中迁移深度的增加,浓度逐渐降低,铀酰离子浓度的衰减主要是由于砂颗粒表面的负电荷对铀酰离子的吸附作用.

4) 本实验淋喷时间仅持续 1 345 min,不能反映出长时间铀废液渗流对地下水污染的情况,需进一步研究温度、压力等因素变化对包气带阻滞能力的影响.

参考文献:

- [1] 朱莉.铀尾矿与土壤中放射性铀、钍及部分重金属元素的释放迁移规律研究[D].广州:广州大学,2013.
- [2] 蒋经乾,李玲,占凌之,等.某尾矿库周边水放射性分布特征及其评价[J].有色金属(冶炼部分),2015(11):60-63.
- [3] 桂荣,潘宇翔,钱志创,等.砂土介质中微生物对铀尾矿库渗出液淤堵吸附实验研究[J].南华大学学报(自然科学版),2016,30(1):17-21.
- [4] 张人权,梁杏,靳孟贵,等.水文地质学基础[M].北京:地质出版社,2011.
- [5] FETTER C W,周念清,黄勇.污染水文地质学[M].北京:高等教育出版社,2011.
- [6] PULSR W, CLARK D A, CARLSON C, et al. Transport and transformation of hexavalent chromium through soil sand into ground water[J].Journal of Soil Contamination, 1994,3(2):203-224.
- [7] SKURATOVIČ Ž, MAŽEIK A, PETROŠIUS R, et al. Investigations of the unsaturated zone at two radioactive waste disposal sites in Lithuania[J].Isotopes in Environmental and Health Studies, 2016,52(4/5):544-552.
- [8] ZHAO X, SOBECKY P A, ZHAO L, et al. Chromium (VI) transport and fate in unsaturated zone and aquifer: 3D Sandbox results[J].Journal of Hazardous Materials, 2016,306:203-209.
- [9] KHAN A M, WICK L Y, HARMS H, et al. Biodegradation of vapor-phase toluene in unsaturated porous media: Column experiments[J].Environmental Pollution, 2016, 211:325-331.
- [10] TESTONI R, LEVIZZARI R, SALVE M D. Coupling of unsaturated zone and saturated zone in radionuclide transport simulations[J].Progress in Nuclear Energy, 2017,95:84-95.
- [11] 陈子方,赵勇胜,孙家强,等.铅和铬污染包气带及再释放规律的实验研究[J].中国环境科学,2014,34(9):2211-2216.

(下转第44页)

- (2):426-435.
- [7] HE Y, YANG L, YANG J. Governing equations for coupled thermo-hydro-mechanical behaviors in unsaturated rock mass[J]. Journal of Southwest Jiaotong University, 2006, 41(4):419-423.
- [8] HU M, RUTQVIST J, WANG Y. A numerical manifold method model for analyzing fully coupled hydro-mechanical processes in porous rock masses with discrete fractures[J]. Advances in Water Resources, 2017, 102(2): 111-126.
- [9] 张长亮, 涂维, 罗志光, 等. 裂隙岩体固—水—气三相不耦合装药爆破数值模拟分析[J]. 公路交通科技, 2017, 34(4):58-65.
- [10] 常博, 陈建强, 刘军, 等. 急倾斜含瓦斯煤层 THM 多场耦合机理及应用[J]. 西安科技大学学报, 2016, 36(6):793-800.
- [11] SPOHN H, STOLTZ G. Nonlinear fluctuating hydrodynamics in one dimension: the case of two conserved fields[J]. Journal of Statistical Physics, 2015, 160(4): 1-24.
- [12] GUVANASEN V, CHAN T. A three-dimensional numerical model for thermo-hydro-mechanical deformation with hysteresis in a fractured rock mass[J]. International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences, 2000, 37(1/2): 89-106.
- [13] 胡少华, 章光, 赵顺利, 等. 孔隙水压力作用下热处理北山花岗岩变形特性试验研究[J]. 岩土工程学报, 2016, 38(2):330-335.
- [14] 黎力, 李治刚, 奚弦, 等. 采空区自然发火多场耦合数值模拟研究[J]. 中国矿业, 2017, 26(3):157-160.
- [15] 贺玉龙, 杨立中, 杨吉义. 非饱和岩体三场耦合控制方程[J]. 西南交通大学学报, 2006, 41(4):419-423.
-
- (上接第33页)
- [12] 王翠玲, 刘长礼, 张云, 等. PTA 生产废液在包气带中迁移的模拟研究[J]. 中国环境科学, 2014, 34(7): 1824-1830.
- [13] 张志军, 刘玄钊, 李亚俊, 等. 毛细水带分层取样试验装置:201310003611.7[P]. 2013-05-01.
- [14] 张乃英, 范广鹏. ICP-MS 测定土壤中铀和钍[J]. 微量元素与健康研究, 2010, 27(6):41-42.
- [15] 董斌, 张喜发, 李欣, 等. 毛细水上升高度综合试验研究[J]. 岩土工程学报, 2008(10):1569-1574.
- [16] 王冰, 赵勇胜, 屈智慧, 等. 深度及含水率对包气带砂层中柴油降解作用的影响[J]. 环境科学, 2011, 32(2):530-535.