

裂片核素在岩石中的迁移研究

Ⅱ. 核素 ^{134}Cs 在花岗岩中的扩散与渗透

温瑞媛 高宏成 彭永忠 刘元方

(北京大学技术物理系, 100871)

在自行设计的扩散槽和渗透槽中,研究了核素 ^{134}Cs (以模拟裂片核素 ^{137}Cs)在花岗岩(取自北京周口店)中的扩散迁移和渗透迁移行为,测定了一系列扩散参数与渗透参数。文中还对实验技术和实验结果进行了介绍和讨论。

关键词 铯-134 扩散系数 渗透率

放射性废物处置的主要方法是深埋在地质岩石中。但经过几百年、几千年的自然变迁和侵蚀,放射性核素会随地下水流逐渐渗出人工防护层和地质层而返回到生物圈。因此,人们十分重视研究核素在岩石等天然材料中的扩散与渗透规律,为建造安全可靠的地下核废物库提供数据。

在研究放射性核素随地下水穿过岩石的迁移中,扩散法和渗透法起着重要作用。扩散法是保持液槽中岩片两边的液面高度相同,它是模拟地下水不流动的情况。而渗透法是液槽中岩片两边的液面高度不同,即存在一定的液位差,它是模拟在地下水流动的情况。后者被认为更接近于实际情况。英国的 Bradbury 等^[1]曾用渗透法测定了 ^{137}Cs 在沙岩中的渗透系数和吸附分配比。我们在自行设计的扩散槽和渗透槽中,测定了 ^{134}Cs (以代表核素 ^{137}Cs)在花岗岩中的扩散与渗透的参数。

1 扩散迁移参数^[2]

核素在多孔介质岩石中的扩散,孔内视为连续液相体系,其一维扩散方程为

$$D_1 \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} = \alpha \frac{\partial c}{\partial t} \quad (1)$$

式中 D_1 为本征扩散系数, α 为岩石的容量因子。令入口 ($x=0$) 处浓度恒定为 c_1 , 出口 ($x=l$) 处浓度为 c_2 , 且 $t=0$ 时 $c_2=0$, $t \rightarrow \infty$ 时, 其近似解为

$$c_2 = \frac{D_1 c_1 A}{lV} t - \frac{c_1 \alpha A l}{6V}$$

c_2 对 t 为直线方程, 其中 c_1 为源溶液浓度, A 为岩样面积, l 为岩样厚度, V 为测量池体积。在实验

收稿日期: 1991-09-23 收到修改稿日期: 1992-12-12

中,测得 c_2-t 扩散曲线,外推曲线的直线部分与 t 轴交于 $t_0 = \alpha l^2/6D_1$,其斜率为 $D_1 c_1 A/W$,于是求得 D_1 和 α 。又因

$$\alpha = \varepsilon + \rho R_d$$

ε 为岩石中可进入水的总孔隙率, ρ 为岩石密度,二者可用水饱和法测定。吸附分配比 $R_d = (\alpha - \varepsilon)/\rho$,它表示单位重量岩石及单位体积溶液中的核素含量之比。

2 渗透迁移参数^[1,3,4]

2.1 渗透率 K_0

溶液穿过岩石的渗透规律以达西(Darcian)方程描述,即

$$q = \frac{K_0}{\eta} \cdot \frac{dp}{dz}$$

q 为溶液穿过单位横截面岩石的体积流量,等于测量池溶液体积的增加速率与岩石横截面积之比; η 为渗透溶液的粘度; dp/dz 为压力梯度,可由渗透槽岩石两边的液位差 Δh 和岩石厚度 l 求得。渗透率 K_0 表示在单位压力梯度下,多孔介质传输液体的难易程度。

2.2 水力传导系数 K

$$K = K_0/\eta = q \cdot dz/dp = q \cdot l/\Delta p$$

其中 Δp 为岩石两端液体的压力差。

2.3 形成因子 F

$$F = \sigma_t/\sigma_s$$

σ_t, σ_s 分别为渗透溶液和被渗透溶液饱和的岩样的电导率。取文献值 $F = 2.6 \times 10^3$ ^[3]。

2.4 岩样孔道水力半径 m

根据泊谟叶(Poiseuille)定理,渗透率 K_0 为

$$K_0 = \frac{m^2}{S} F^{-2} \theta^{-1}$$

S 为形状因子,取文献值 2.5 ^[3]; F 为形成因子; θ 为穿通孔隙率, $\theta = 0.1e$ ^[3];从而求得 m 。

2.5 岩石孔道比表面积 a

按定义

$$m = \frac{\text{孔道横截面积}}{\text{浸润周边}} = \frac{\theta}{a}$$

$$\therefore a = \theta/m = 0.1e/m$$

参数 m, a 对胶体溶液的迁移和核素的吸附研究可以提供有用的信息。

2.6 渗透传质的 Peclet 准数 Pe ^[1]

$$Pe = Re \cdot Sc = lW/D_p$$

Re 是雷诺准数:流体力学过程中的惯性力与粘滞力之比; Sc 是施密特准数:传质过程中流体物性对传质的影响, W 是岩样中孔水流速,为 q/θ ; D_p 是孔水的扩散系数,为 D_1/θ ;

$$\therefore Pe = lq/D_1$$

在传质过程中, Pe 准数表示总传质量与扩散传质量之比。

3 实验部分

3.1 扩散槽和渗透槽

扩散槽和渗透槽均为自行设计和加工制成。扩散槽详见文献[2]中所述。渗透槽装置如图 1 所示,其槽体形状和岩样固定密封与扩散槽相同。在源液池上安装有高位槽、电子微量泵和循环管,以使源溶液在渗透过程中保持浓度均一且维持恒定的液位差。在测量池上装有流量管,以测定渗透过程的液体流速,同时也便于定时取样测量。为了保持岩样两边液位差基本恒定,当流量管内液位到达上限时,应及时定量取走,同时还在高位槽和流量管上安装了压力平衡管,以保证两端液面上方的压强相等。在渗透过程中,当源溶液由于渗流走,使体积减小液面下降时,可由源溶液取样孔放入少量空气,以补充减少的液体体积,从而保证高位槽液位的恒定。实验在 $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 恒温箱内进行。

3.2 岩样处理

由大块花岗岩岩石上取岩芯柱,经切片磨光呈圆柱片岩样。用水饱和和法测岩样的孔隙率 ϵ 和密度 $\rho^{[2]}$,然后将岩样放入二级蒸馏水中,加热排气,浸泡 3 周。

3.3 扩散和渗透溶液的配制

将所用岩石碎块洗净,在二级蒸馏水中浸泡 5 个月以上,制成岩石平衡水。再加入放射性核素制成源溶液。在实验中曾发现,有时源溶液经过长时间后会生成绿色的微生物絮状物,它既吸附放射性又影响核素在岩石中的迁移。为此,我们在实验溶液中加入万分之一的 NaN_3 ,以防生成微生物。

3.4 迁移核素的放射性测量

取测量池溶液 1 ml 于小试管内,用 FT-603 井型探头和 FH-408 自动定标器测量放射性活度,测毕放回原池。为了避免因所用测量试管不同带来的误差,每次测量使用同一试管,在取样前测定本底。另外,取起始源液 1 ml 密封于一小试管内,作跟踪测量,以校正衰变影响和监测仪器。

4 结果与讨论

1. 实验测得 ^{134}Cs 在花岗岩(取自北京周口店)中的扩散曲线和渗透曲线示于图 2—4。渗透实验的流量曲线示于图 5。由实验曲线计算出的一系列扩散和渗透参数归纳于表 1。

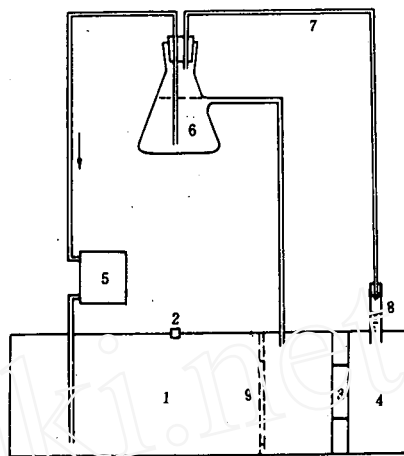
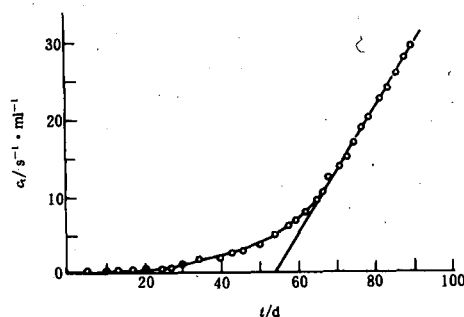


图1 渗透槽装置

- 1——源液池;2——取样孔;3——岩样片;
4——测量池;5——循环泵;6——高位槽;
7——平衡管;8——流量管;9——大孔隔板^[2]。

图2 ^{134}Cs 扩散曲线

$$c_0 = 35175 \text{ s}^{-1} \cdot \text{ml}^{-1}$$

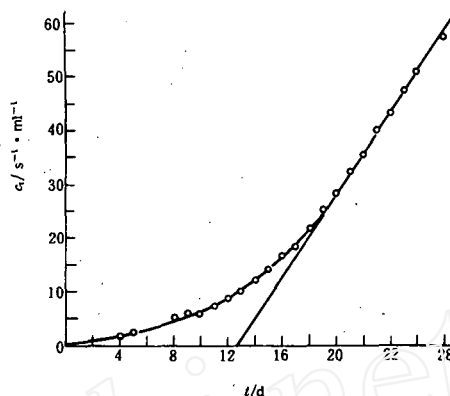


图3 渗透曲线 1

$$\Delta p = 8.76 \text{ kPa}$$

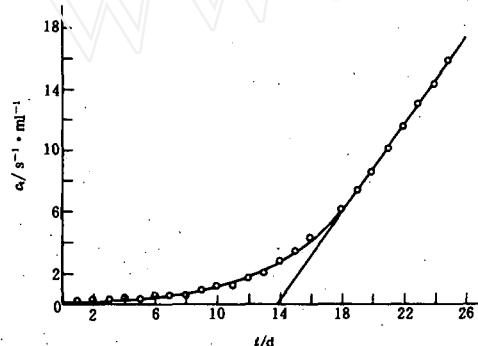


图4 渗透曲线 2

$$\Delta p = 12.2 \text{ kPa}$$

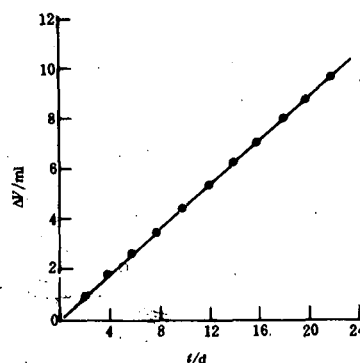


图5 体积增量与时间关系图

$$\Delta p = 12.2 \text{ kPa}$$

2. 由实验结果可知,岩样相同时,渗透液流速随压力增大而增大。但与岩石性质有关的渗透率 K_0 和与岩石及流体有关的水力传导系数 K 等基本不变。由表 1 可见,在两个压力差下,得到的孔结构参数如 m 、 a 基本一致,并与文献值^[3]相近。这表明我们的实验装置适用,实验结果可靠。

3. 由图 5 可见,当压力一定时,流体通过岩样的体积流量为一定值,即核素迁入岩样的速率恒定为 $U_{\lambda} = (V_2 - V_1)c_0/(t_2 - t_1) = 19820 \text{ s}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ 。当渗透过程进行到渗透曲线的直线部分时,核素迁出岩样的速率也为一定值,此时渗透过程为准稳定过程, $U_{\text{出}} = (c_{t,2} - c_{t,1})V_{\text{测}}/(t_2 - t_1) = 264 \text{ s}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ 。因为核素迁入速率应等于核素迁出速率加核素表观吸附速率。可见,核素迁出速率仅为迁入速率的 1.3%,而核素表观吸附速率为迁出速率的 73 倍。这表明核素 ^{134}Cs 随地下水进入岩石渗出量很少,大部分被岩石孔壁吸附。由于花岗岩孔道比表面积相当大,花岗岩对 ^{134}Cs 的吸附量会很大。可以推测,花岗岩对裂片核素 ^{137}Cs

的吸附量也会很大。

表 1 实验结果¹⁾

源溶液	放射性浓度/ $s^{-1} \cdot ml^{-1}$	扩散实验	渗透实验 1	渗透实验 2
		3.5175×10^4	5.3809×10^4	4.5390×10^4
测量池溶液	放射性终浓度/ $s^{-1} \cdot ml^{-1}$	1382.5	1704.8	1747.0
		28.90	93.20	10.10
	体积/ml	166.0	166.0	183.4
		0	8.76	12.2
	$\Delta p / kPa$			
	$D_i / m^2 \cdot s^{-1}$	2.24×10^{-13}		
	$q / m \cdot s^{-1}$	0	1.97×10^{-9}	2.58×10^{-9}
	K_0 / m^2		2.93×10^{-18}	1.96×10^{-18}
	α	0.0619		
	$R_d / ml \cdot g^{-1}$	0.0176		
	$m / \mu m$		0.220	0.213
	α / m^{-1}		6.41×10^3	6.62×10^3
	$K / m^2 \cdot Pa^{-1} \cdot s^{-1}$		2.25×10^{-15}	2.11×10^{-15}
	Pe		88.1	115

1) 花岗岩岩样直径为 5.012cm, $l = 1.00cm$, $\rho = 2.72g/cm^3$, $\epsilon = 0.0141$, 底液 $\eta = 0.9006 \times 10^{-3} Pa \cdot s$, $\sigma_f = 1.53 \times 10^{-4} \Omega^{-1} \cdot cm^{-1}$, $pH = 7.58$ 。

4. 从表 1 可见, 当压力梯度为 8.76kPa, $Pe = 88.1$; 压力梯度为 12.2kPa, $Pe = 115$ 。这说明在渗透传质过程中, 扩散传质质量占的比例很小。

参 考 文 献

- 1 Bradbury M H, Green A, Lever D, et al. Diffusion and Permeability Based Sorption Measurement in Sandstone, Anhydrite and Upper Magensian Limestone Samples. AERE-R 11995, 1986.
- 2 温瑞媛, 高宏成, 蒋成华, 等. 裂片核素在岩石中的迁移研究 I. 核化学与放射化学, 1990, 13(4): 213.
- 3 Bradbury M H. Permeability Measurements in Crystalline Rocks and Sandstone. AERE-R 10836, 1983.
- 4 Bradbury M H. Stephen I G. Diffusion and Permeability Based Sorption Measurement in Intact Rock Samples. Mat Res Soc Symp Proc, 1985, 50: 81.

MIGRATION STUDIES OF FISSION PRODUCTS NUCLIDES IN ROCKS

II. DIFFUSION AND PERMEABILITY OF NUCLIDE ^{134}Cs IN GRANITE

WEN RUIYUAN GAO HONGCHENG PENG YONGZHONG LIU YUANFANG

(Department of Technical Physics, Peking University, Beijing, 100871)

ABSTRACT

The migration behaviour of ^{134}Cs , representing the long-lived fission product ^{137}Cs , in Beijing granite was studied by means of diffusion and permeability measurement in the self-designed cells. An intrinsic diffusion coefficient D_i of $2.24 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ and a specific permeability K_0 of $2 \times 10^{-18} \text{ m}^2$ were found. The experimental techniques and results were presented and discussed in detail.

Key words Cesium-134 Diffusion coefficient Specific permeability

核放信息 1

我国去年合成了三个远离 β 稳定区的新核素: ^{202}Pt 、 ^{186}Hf 和 ^{208}Hg ,被列为我国1992年十大科技成就之一。其中,后两个是兰州近代物理研究所在重离子加速器上完成的,而前一个即 ^{202}Pt 则是上海原子核研究所在低能轻离子加速器上完成的,所以难度极大。用这种加速器,一个可能的途径是用氘打钨靶或质子打钨靶产生快中子,然后用中子轰击汞靶,从 ^{204}Hg 开始通过一系列(n,2n)及(n,p)反应得到 ^{202}Pt 。如从天然汞出发,则副产核素甚多,分离鉴定工作十分艰巨。该所通过数百小时实验,鉴定得到的 ^{202}Pt 半衰期为 $43.6 \pm 15.2 \text{ h}$,与理论预计符合。

核放信息 2

英国年处理能力为800t乏燃料的THORP后处理工厂(最大日处理量为5t)已于1992年建成并开始调试,预期1993年6、7月份可开始第一批乏燃料的剪切与溶解。此厂主要用于接收国外委托的轻水堆核电站乏燃料的后处理,希望10年内处理的收益可回收此厂的全部投资。

核放信息 3

美国Sandia国家实验室的R. G. Dosch和Texas农工大学的R. G. Anthony研制了一种硅钛酸盐化合物,能够有效地从富含盐量的中放废液中去除放射性铯,其效率为沸石的60倍。Sandia国家实验室过去曾研制成功一种水合钛酸盐,从放射性废液中去除铯及钡的选择性极高。新合成的硅钛酸盐为层状结构,二层间距离为 $8 \times 10^{-8} \text{ cm}$ 对Cs选择性最好。上述科研单位用非晶形的含水钛酸盐及结晶形的硅钛酸盐处理含铯、钡的中放泥浆,铯、钡被吸附沉积在底层,而上层澄清液可做低放废液处理(Chem Eng News, 1992 July 13, p. 26)。