

实验室尺度三维含水层核素迁移模型试验

朱君, 邓安嫦, 张艾明*

中国辐射防护研究院, 山西太原 030006

摘要:为了准确模拟和预测核素在含水层中的分布、累积情况,借助物理模型试验与核素迁移模式客观反映其迁移、转化规律是不可或缺的手段。以山西第四系粉质壤土潜水层地下水为研究对象,建立实验室尺度下的核素迁移三维模型试验,示踪核素 ^{90}Sr 以点源形式布设在断面中心位置,通水量为375 mL/d。结果表明,260 d后中心点处 ^{90}Sr 浓度峰值沿轴向迁移了3.9 cm,峰值活度浓度为 $1.04 \times 10^4 \text{ Bq/cm}^3$;随着与轴线距离的增加,径向上、下对称6个区域的峰值浓度逐渐减小,上半部活度浓度为 $1.02 \times 10^3 \sim 8.03 \times 10^3 \text{ Bq/cm}^3$,峰值迁移距离约为2.7~3.6 cm,下半部活度浓度为 $1.86 \times 10^3 \sim 9.80 \times 10^3 \text{ Bq/cm}^3$,峰值迁移距离约为3.3~3.6 cm。结合试验体中 ^{90}Sr 的浓度分布,建立Hydrus-3D核素迁移三维数值模型,拟合得到了 ^{90}Sr 在粉质壤土中的吸附分配系数为79.0 mL/g,纵向弥散度为0.7 cm,横向弥散度为0.8 cm。

关键词:核素迁移;三维模型;Hydrus-3D; ^{90}Sr

中图分类号: TL942.1;X53 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9950(2019)03-0290-07

doi: 10.7538/hhx.2018.YX.2018025

Experiment on Nuclide Migration of Aquifer by Three-Dimensional Model in Laboratory Scale

ZHU Jun, DENG An-chang, ZHANG Ai-ming*

China Institute for Radiation Protection, Taiyuan 030006, China

Abstract: In order to accurately simulate and predict the distribution of nuclides in the aquifer, the physical experiment and numerical model are used to reflect its migration and transformation. As quaternary silty loam of aquifer in Shanxi Province for example, a three-dimensional model of nuclide migration in laboratory scale was established and the tracer ^{90}Sr was located at the center of the section by point source. After 260 d injection water by 375 mL/d, the results show that ^{90}Sr peak concentration migrates 3.9 cm along the direction of water flow and the peak activity concentration is $1.04 \times 10^4 \text{ Bq/cm}^3$. With the increase in distance to axis, the peak activity concentration of the six regions in radial by symmetry decreases gradually. The activity concentration of upper half part is $1.02 \times 10^3 \sim 8.03 \times 10^3 \text{ Bq/cm}^3$, and the migration distance is 2.7~3.6 cm. The activity concentration of lower half part is $1.86 \times 10^3 \sim 9.80 \times 10^3 \text{ Bq/cm}^3$, and the migration distance is 3.3~3.6 cm. Combined with the concentration distribution of ^{90}Sr in the experimental body, a three-dimensional numerical model of nuclide migration in Hydrus-3D is established, and the fitted parameters are: adsorption distribution coefficient is 79.0 mL/g, longitudinal dispersivity is 0.7 cm, and transverse dispersivity is 0.8 cm.

收稿日期: 2018-03-21; **修订日期:** 2018-06-22

作者简介: 朱君(1985—),男,湖南衡阳人,助理研究员,主要从事放射性核素在土壤及地下水中的迁移、转化规律研究, E-mail: 405400881@qq.com

* **通信联系人:** 张艾明(1971—),男,山西寿阳人,研究员,主要从事放射性核素在水环境中的迁移、转化规律研究, E-mail: 13834508698@163.com

网络出版时间: 2018-11-28; **网络出版地址:** <http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.2045.TL.20181127.0932.016.html>

10^3 Bq/cm³ and peak migration distance is about 2.7-3.6 cm. The activity concentration of lower half part is 1.86×10^3 - 9.80×10^3 Bq/cm³ and peak migration distance is about 3.3-3.6 cm. According to the concentration distribution of ⁹⁰Sr, a three-dimensional numerical model of Hydrus-3d nuclide migration was established. The distribution coefficient of strontium in silty loam is 79.0 mL/g, the longitudinal dispersion is 0.7 cm and transverse dispersion is 0.8 cm.

Key words: nuclide migration; three-dimensional model; Hydrus-3D; ⁹⁰Sr

目前国内外研究放射性核素迁移规律的方法有原位试验、监测类比、实验室模拟试验和数值模拟。原位试验可以在现场实际条件下,研究多场耦合以及空间尺度效应对核素迁移规律的影响,罗嗣海等^[1]系统介绍了世界各国高放废物深地质处置核素迁移多场耦合的进展情况,如美国尤卡山(ESF)凝灰岩地下实验室、瑞士格瑞穆塞尔(Grimmel)花岗岩地下实验室、比利时莫尔(Mol)粘土岩地下实验室等都曾开展大规模的研究项目。监测类比主要利用现场获取的监测数据,作为理论建立和验证的依据,可以在接近自然条件下研究核素迁移的地球化学行为,Bugai等^[2]以切尔诺贝利核事故区的Red Forest废物填埋场为对象,建立平衡吸附模式下的⁹⁰Sr二维迁移模型,计算值与监测数据对比分析后,认为应该改进核素迁移模式;Kurikami等^[3]在日本福岛核事故后,测量不同深度土壤样品,得到土壤垂直剖面上¹³⁷Cs的浓度分布曲线,发现除大部分仍滞留在土壤表层外,下层土壤中有较高浓度的“前伸须”现象。实验室模拟试验的优势是在设定的条件下重复和验证试验,Szenknect等^[4]在距离切尔诺贝利核电站以西2.5 km的试验场,利用动态土柱试验研究了⁸⁵Sr在包气带砂土介质中的迁移规律,发现浓度穿透曲线存在明显的不对称性和“后拖尾”现象。数值模拟则能克服时间和空间的限制,是分析核素迁移规律不可或缺的手段,Pontedeiro等^[5]采用Hydrus-1D软件预测了亚马逊河流域伴生矿废物处置场中的放射性核素迁移行为,结果表明双重孔隙度模型可以恰当地描述优先流与非平衡吸附下的核素迁移问题。

对于放射性核素而言,原位试验经济代价高,监测类比需要契机。因此,实验室模拟试验与数值模拟是研究核素迁移规律的重要方法。但是,现阶段实验室尺度的核素迁移试验多采用一维模型,如刘东旭等^[6]建立动态土柱一维试验,模拟了⁹⁰Sr在包气带砂土和黏土中的垂直迁移规律,结

果显示砂土中的穿透曲线存在“后拖尾”现象。Li等^[7]与朱君等^[8-9]也是采用土柱一维试验,分别研究了⁹⁰Sr在石英砂和干旱地区砂土中的垂直迁移行为,浓度穿透曲线同样存在“后拖尾”现象。三维模型试验是分析非均匀介质中溶质纵、横向弥散现象的唯一方法,却因为其复杂性少有报道^[10-11]。本工作拟以山西的第四系粉质壤土潜水层为对象,探寻核素迁移三维模型试验方法,并结合Hydrus-3D数值模型,研究⁹⁰Sr在含水层介质中的迁移规律。

1 实验部分

1.1 材料和仪器

试验含水层介质取自中国辐射防护研究院榆次野外实验基地,为第四系粉质壤土潜水层。其中砂粒为25.50%(质量分数,下同)、粉粒为64.00%、黏粒为10.50%,容重为1.35 cm³/g。矿物成分如下:石英为30%~35%、斜长石为15%~20%、云母为10%、钾长石为8%、绿泥石为8%、角闪石为3%、方解石为15%~20%、高岭石为3%。

示踪核素⁹⁰Sr为进口标准源。盐酸、硝酸,优级纯,草酸,纯度为99.6%,均购自国药集团化学试剂公司;Sr-spec树脂,法国Triskem公司。

GEM40P4高纯锗 γ 谱仪,美国ORTEC公司;300SL型液体闪烁计数器,芬兰HIDEX公司;EL204万分之一电子天平,瑞士梅特勒-托利多公司;AS200 control筛分机,德国RETSCH公司;HG101-2型电热鼓风干燥箱,南京实验仪器厂;Mastersizer2000激光粒度分析仪,英国Malvern公司。

1.2 实验方法

通过核素迁移三维物理模型试验与数值模拟技术结合,研究核素⁹⁰Sr在潜水层地下水粉质壤土中的迁移、转化规律,并获取关键迁移参数。大致为两个研究阶段:

(1) 首先,建立⁹⁰Sr在粉质壤土中迁移的三维

物理模型试验。试验结束后解体土柱,实测获得选定区域轴向 ^{90}Sr 的浓度分布值及曲线。但是,由于固相介质的非均匀性,以及核素被吸附的动力学过程存在差异,核素迁移的浓度分布曲线可能出现“单峰对称型”、“单峰拖尾型”、“双峰型”等不同形状,因此,对应平衡吸附模型、单点吸附模型、两点吸附模型等不同的迁移模式。

物理模型试验结束后,需要依据 ^{90}Sr 在粉质壤土中的浓度分布曲线,分析、判断其具体的迁移模型。

(2) 然后,采用 Hydrus-3D 软件建立核素迁移三维数值模型,建立基于平衡吸附模式下的核素迁移数值模型,得到 260 d 后的计算值,同样将选定区域的 ^{90}Sr 浓度沿轴向距离作图,得到计算浓度分布曲线,将实测浓度分布曲线与计算浓度分布曲线对比分析,依据拟合程度,获得 ^{90}Sr 在粉质壤土中的吸附分配系数 K_d 以及纵向弥散度 D_L 、横向弥散度 D_H 。

试验装置示于图 1。试验装置设计由三部分组成:(1) 供水装置,包括水箱和用于控制流量的蠕动泵;(2) 土柱体试验箱;(3) 流出物收集装置。土柱体试验箱为有机玻璃材质,由入水端、示踪源、试验土体和出水端四个部分组成,尺寸为 $850\text{ mm} \times 150\text{ mm} \times 150\text{ mm}$,厚度 1.0 cm。入水端长为 150 mm,依次填充 100 mm 的粗砂、50 mm 的石英砂。示踪源 ^{90}Sr 以点源的形式布设在入水端与试验土体交界处的断面中心,活度总量约为 $1.535 \times 10^6\text{ Bq}$;试验土体为 600 mm;出水端为 100 mm,填充粗砂。入水端连接蠕动泵,控制流速 375 mL/d (根据地下水流速计算)。出水端连接流出物收集装置,按时测量流出液的体积。

通水 260 d 后,结束试验。以示踪源所在位

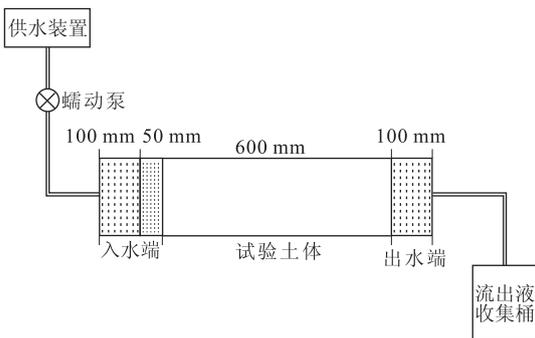


图 1 试验装置

Fig. 1 Experimental device

置为零点,沿水流方向为正,将土柱体解体为每层 3 mm 的薄片,解体长度 7.8 cm。再用半径 1、3、5、7 cm 的取样环刀,将每片样品剖分成 4 个环形圈,按上、下 2 份(除半径 1 cm 的样品外)得到七个区域,示于图 2。共产生 182 个土壤样品,将样品放入聚乙烯盒,干燥并称重,测量其中 ^{90}Sr 浓度。测量方法是先用 6 mol/L 的盐酸浸取,草酸沉淀钙、镁、铁等金属离子,再用 8 mol/L 的浓硝酸溶解沉淀,过 Sr-spec 树脂柱,最后用蒸馏水将 ^{90}Sr 洗脱,草酸沉淀 Sr^{2+} ,质量法计算 Sr 的化学回收率,溶解沉淀并用液闪测量 ^{90}Sr 的浓度。

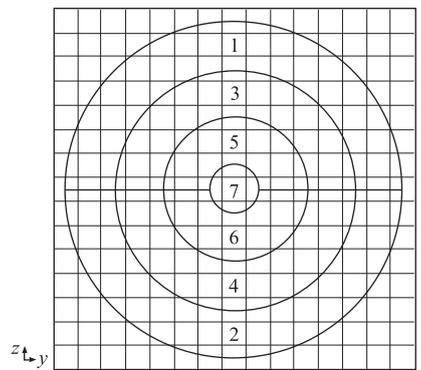


图 2 取样示意图

Fig. 2 Sampling schematic

1.3 土壤水力参数测定

土壤水力参数需要测量水分特征曲线与饱和导水率。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,得到不同体积含水率下的土壤吸力值,用 Van Genuchten 模型拟合得到粉质壤土的饱和含水率 $\theta_s = 0.445\text{ cm}^3/\text{cm}^3$,残余含水率 $\theta_r = 0.046\text{ cm}^3/\text{cm}^3$,进气值倒数 $\alpha = 0.0046$, $n = 3.20$ 。另外,饱和导水率用定水头法测定为 $2.26 \times 10^{-5}\text{ cm/s}$ 。

2 结果和讨论

2.1 物理模型试验结果

测量样品中 ^{90}Sr 的浓度是孔隙水和被吸附在固相介质上 ^{90}Sr 的总浓度。依据每个区域轴向的 ^{90}Sr 浓度分布,得到各区域 ^{90}Sr 的浓度分布曲线,峰值迁移距离和浓度结果列入表 1。260 d 后,1—7 区域 ^{90}Sr 在粉质壤土中的浓度分布曲线均呈正态分布的“单峰”型,浓度峰值沿水流方向迁移了约 2.7~3.9 cm,说明 ^{90}Sr 在粉质壤土中能很快达到吸附-解吸平衡,可以用平衡吸附理论^[12-20]来

描述其迁移规律(式(1)、(2)),即认为固相浓度是分配系数与液相浓度的乘积。

$$\begin{cases} \theta \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\theta D_{ij} \frac{\partial C}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} (q_i C) - \rho \frac{\partial C'}{\partial t} - \lambda \theta C & (1) \\ \frac{\partial C'}{\partial t} = K_d \frac{\partial C}{\partial t} & (2) \end{cases}$$

式中: $i, j=1, 2, 3; x_1=x, x_2=y, x_3=z; \theta$ 为体积含水率, cm^3/cm^3 ; t 为核素运移时间, d ; q_i 为达西流速, cm/d ; D_{ij} 为弥散系数, cm^2/d ; ρ 为体积干密度, g/cm^3 ; C 为溶解相活度浓度, Bq/cm^3 ; C' 为吸附相活度浓度, Bq/cm^3 ; K_d 为吸附平衡时的吸附分配系数, cm^3/g ; λ 为核素衰变常数, d^{-1} 。

表1 各区⁹⁰Sr峰值浓度分布

Table 1 Peak concentration distribution of ⁹⁰Sr

区域	峰值迁移距离/ cm	峰值活度浓度/ ($\text{Bq} \cdot \text{cm}^{-3}$)
1	2.7	1.02×10^3
2	3.3	1.86×10^3
3	3.6	2.00×10^3
4	3.6	3.46×10^3
5	3.6	8.03×10^3
6	3.6	9.80×10^3
7	3.9	1.04×10^4

另外,随着与轴线距离的增加,径向上、下对称6个区域的峰值浓度逐渐减小,上半部活度浓度为 $1.02 \times 10^3 \sim 8.03 \times 10^3 \text{ Bq}/\text{cm}^3$, 峰值迁移距离为 $2.7 \sim 3.6 \text{ cm}$, 下半部活度浓度为 $1.86 \times 10^3 \sim 9.80 \times 10^3 \text{ Bq}/\text{cm}^3$, 峰值迁移距离为 $3.3 \sim 3.6 \text{ cm}$ 。其中,2区的活度浓度峰值是1区的1.82倍,4区的活度浓度峰值是3区的1.73倍,6区的活度浓度峰值是5区的1.22倍,中心点(7区域)活度浓度最大,为 $1.04 \times 10^4 \text{ Bq}/\text{cm}^3$ 。

分析原因主要有两点:(1)入水端粗砂、石英砂的渗透系数远大于粉质壤土,水在入水端底部迅速累积使实验箱下部水头压力比上部大;(2)石英砂对⁹⁰Sr的吸附能力小于粉质壤土,且吸附以后容易从石英砂上解吸出来,在下部较大的水流速率下,更多的⁹⁰Sr被解吸下来,使得实验箱下部浓度大于上部。

2.2 数值模拟及迁移参数求解

在建立核素迁移模型之前,必须保证水流模

型的准确性。先建立水流模型和用于水流验证的实测资料。以示踪源点为起始点,在土柱体水流方向上每15 cm布置一个测压管,用于测量水头在轴向上的分布情况,结果示于图3。另外,在2#测压管上下各布置一个测压管(5#、6#),间隔为6 cm,用于测量水头在径向上的分布情况。

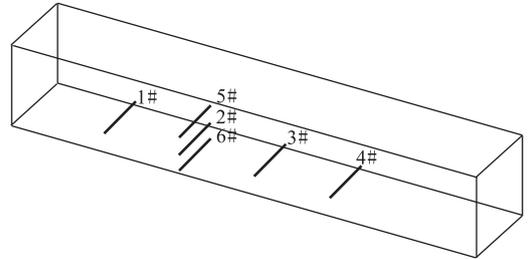


图3 1#—6#测压管分布示意图

Fig. 3 1#—6# piezometric distribution

在了解土柱体中水头分布情况后,应用Hydrus-3D软件建立三维水流模型,模型空间上将土柱体沿水流方向离散为3 mm, y, z 方向离散为10 mm的矩形单元格,单元格尺寸为 $3 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$,剖分为15层,15行,283列。共生成节点数72 704个,网格127 350个。模型顶部概化为定流量边界,与通水量一致,为 $375 \text{ mL}/\text{d}$;底部也概化为流量边界,为每天收集的底部流出液流量。水流模型涉及的参数均采用试验值,如容重、土壤水分特征曲线和饱和导水率。以实测水头值作为验证资料,验证所建水流模型的准确性,结果列入表2。实验箱计算水头分布情况示于图4。

表2 实验箱实测值与计算值结果

Table 2 Results of measured values and calculated values

No.	测压管位置		实测水头/ cm	计算水头/ cm
	x/cm	z/cm		
1	0	8	61.23	70.56
2	15	8	47.85	53.06
3	30	8	44.40	35.21
4	45	8	13.67	17.36
5	15	2	44.12	47.06
6	15	14	52.00	59.06

水头实测值与计算值基本上吻合,所建立的数值模型能够反映实验箱中水流运动的实际情

况。根据两点之间的水头差及 Δx , 计算出试验箱中的水力梯度 $J=1.10$ 。用达西公式计算渗透系数为 1.76×10^{-5} cm/s, 基本与 1.3 节定水头测量值一致。

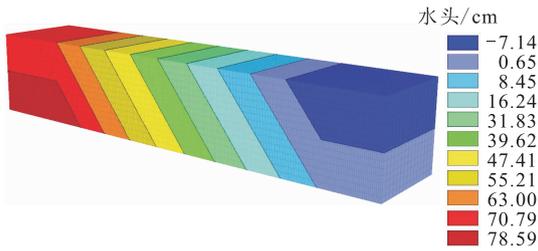


图4 实验箱计算水头分布

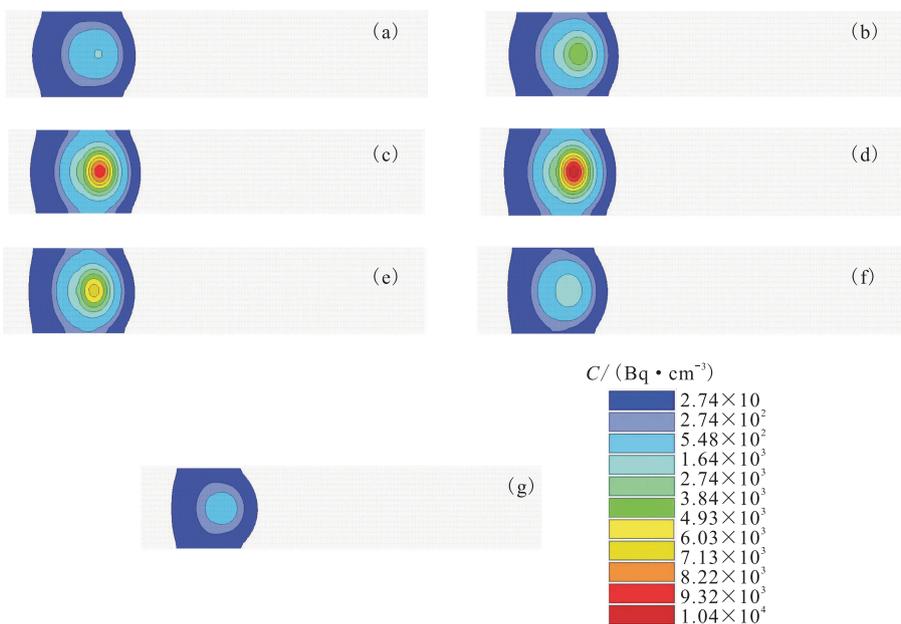
Fig. 4 Calculation of water head distribution

水流模型建立和验证后, 利用 Richards 方程, 建立基于平衡吸附模式下的核素迁移模型, 计算得到 ^{90}Sr 在整个试验箱中的浓度分布情况。水平方向上, 将模型从下至上剖分为 15 层, 从中选择 2、4、6、8、10、12、14 层的 ^{90}Sr 浓度计算值, 结果示于图 5。因为符合平衡吸附理论, 得到孔隙水中 ^{90}Sr 的浓度后, 计算得到土壤中 ^{90}Sr 的浓度, 以总浓度与实测值比对拟合可知, 结果基本上与实测结果一致, 第 8 层 (中心层) ^{90}Sr 浓度最大, 沿上、下方向远离中心层的区域浓度逐渐减小, 且上、下对称两层下部浓度比上部高。

通过模型计算结果, 将 1—7 区域 ^{90}Sr 的计算浓度沿轴向距离作图, 得到每个区域 ^{90}Sr 的计算浓度分布曲线, 将实测浓度分布曲线与计算浓度分布曲线对比分析, 结果示于图 6。另外, 根据平衡吸附迁移理论, 浓度峰的迁移距离取决于吸附分配系数的延迟作用。在其他因素一定的情况下, 吸附分配系数越大, 延迟作用则越强, 迁移距离越短; 反之, 延迟作用越弱, 迁移距离越远。而水动力弥散度主要决定迁移曲线的“宽窄”, 弥散度越大, 浓度分布曲线跨度越大, 峰值浓度越小; 反之, 浓度分布曲线跨度越小, 峰值浓度越大。

迁移参数求解的具体过程是: 首先, 通过浓度峰的位置确定吸附分配系数; 然后, 根据峰值浓度和迁移曲线的跨度确定水动力弥散度。通过不断调整吸附分配系数和水动力弥散度, 直到实测浓度分布曲线与计算浓度分布曲线拟合较好为止。

由此得到以下迁移参数: ^{90}Sr 在粉质壤土中的吸附分配系数为 79.0 mL/g, 纵向弥散度 D_L 为 0.7 cm, 横向弥散度 D_H 为 0.8 cm。1—7 区域 ^{90}Sr 实测浓度与计算浓度的相关系数为 0.92~0.98。本次实验的粉质壤土取自中国辐射防护研究院榆次野外试验场, 20 世纪 90 年代王金生等^[21] 曾在此试验场开展 ^{85}Sr 在粉质壤土中的原位迁移试验, 得到 ^{85}Sr 的吸附分配系数为 71.18 mL/g, 纵向弥散度



(a)——第 2 层, (b)——第 4 层, (c)——第 6 层, (d)——第 8 层, (e)——第 10 层, (f)——第 12 层, (g)——第 14 层

图5 Hydrus-3D 计算结果

Fig. 5 Calculated concentration of Hydrus-3D

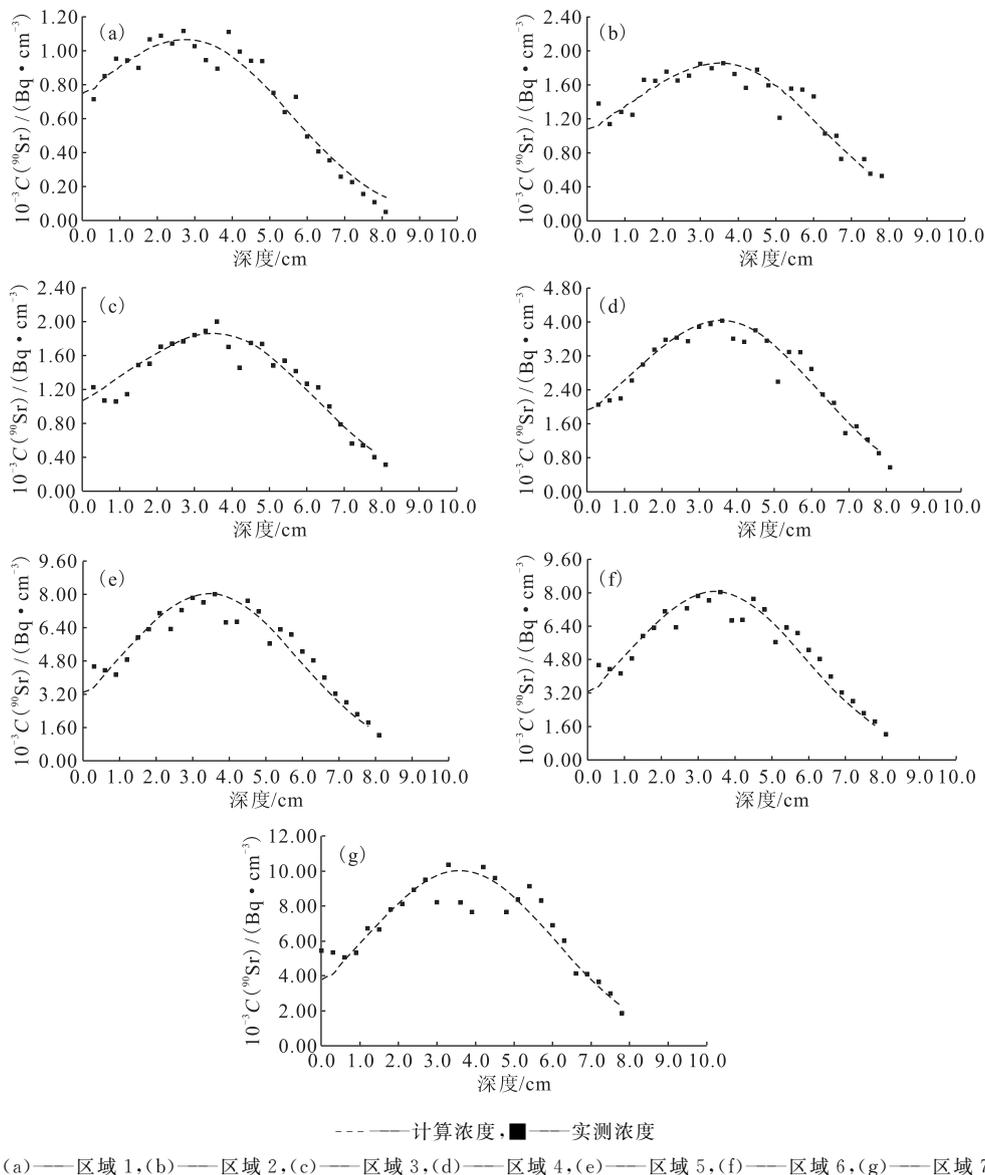


图 6 实测值与计算值拟合分析

D_L 为 0.915 cm、横向弥散度 D_H 为 0.55 cm。 ^{85}Sr 与 ^{90}Sr 互为同位素,化学性质相同,本工作的参数计算结果与原位试验基本一致,说明该法在一定程度上可以反映核素在含水层中的三维迁移规律。

3 结 论

以山西第四系粉质壤土潜水层为研究对象,探寻实验室尺度下核素迁移三维模型试验方法。结果表明: ^{90}Sr 在粉质壤土中能很快达到吸附-解吸平衡,可以用平衡吸附理论来描述其迁移规律;该法克服了一维模型试验只能得到纵向弥散度的不足,能够同时反映核素的纵、横向弥散现象。为准确模拟和预测核素在含水层中的分布、累积情

况提供了依据。

参考文献:

[1] 罗嗣海,钱七虎,李金轩,等. 高放废物深地质处置中的多场耦合与核素迁移[J]. 岩土力学,2005,26(增刊):264-270.

[2] Bugai D. Radionuclide migration at experimental polygon at Red Forest waste site in Chernobyl zone: part 2: hydrogeological characterization and groundwater transport modeling[J]. Appl Geochem, 2012, 27(7): 1359-1374.

[3] Kurikami H, Malins A, Takeishi M, et al. Coupling the advection-dispersion equation with fully kinetic reversible/irreversible sorption terms to model radioce-

- sium soil profiles in Fukushima prefecture[J]. *J Environ Radioact*, 2017, 171: 99-109.
- [4] Szenknect S, Ardois C, Dewièrre L, et al. Effects of water content on reactive transport of ^{85}Sr in Chernobyl sand columns[J]. *J Contam Hydrol*, 2008, 100(1): 47-57.
- [5] Pontedeiro E M, van Genuchten M Th, Cotta R M, et al. The effects of preferential flow and soil texture on risk assessments of a NORM waste disposal site[J]. *J Hazard Mater*, 2010, 174: 648-655.
- [6] 刘东旭, 司高华, 李哲, 等. 非均质条件下锶迁移的反向随机模拟[J]. *原子能科学技术*, 2017, 51(4): 609-616.
- [7] Li Y F, Tian S H, Qian T W. Transport and retention of strontium in surface-modified quartz sand with different wettability[J]. *J Radioanal Nucl Chem*, 2011, 289(2): 337-343.
- [8] 朱君, 邓安娣, 石云峰, 等. 不同喷淋强度对核素 Sr-90 在土壤中迁移的影响[J]. *土壤学报*, 2017, 54(3): 785-793.
- [9] 朱君, 邓安娣, 石云峰, 等. 不同质地土壤对核素 Sr-90 阻滞及迁移的影响[J]. *安全与环境学报*, 2018, 18(1): 330-334.
- [10] 杨森, 王永利, 黄艺, 等. 放射性核素锶在地质环境中的迁移研究[J]. *四川有色金属*, 2014(1): 7-9.
- [11] Snow M S, Clark S B, Morrison S S, et al. Mechanical environmental transport of actinides and ^{137}Cs from an arid radioactive waste disposal site[J]. *J Environ Radioact*, 2015, 148: 42-49.
- [12] Suchara I, Sucharová J, Holá M, et al. Long-term retention of ^{137}Cs in three forest soil types with different soil properties[J]. *J Environ Radioact*, 2016, 158-159: 102-113.
- [13] Yi S, Ma H, Zheng C, et al. Assessment of site conditions for disposal of low-and intermediate-level radioactive wastes: a case study in southern China[J]. *Sci Total Environ*, 2012, 414(1): 624-631.
- [14] Garciasanchez L, Loffredo N, Mounier S, et al. Kinetics of selenate sorption in soil as influenced by biotic and abiotic conditions: a stirred flow-through reactor study[J]. *J Environ Radioact*, 2014, 138: 38-49.
- [15] Koarashi J, Nishimura S, Nakanishi T, et al. Post-deposition early-phase migration and retention behavior of radiocesium in a litter-mineral soil system in a Japanese deciduous forest affected by the Fukushima nuclear accident[J]. *Chemosphere*, 2016, 165: 335-341.
- [16] Merk R. Numerical modeling of the radionuclide water pathway with HYDRUS and comparison with the IAEA model of SR 44[J]. *J Environ Radioact*, 2012, 105(2): 60-69.
- [17] Matsuda N, Mikami S, Shimoura S, et al. Depth profiles of radioactive cesium in soil using a scraper plate over a wide area surrounding the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Japan[J]. *J Environ Radioact*, 2015, 139: 427-434.
- [18] Utsumoniya S, Kersting A B, Ewing R C. Groundwater nanoparticles in the far-field at the Nevada Test Site: mechanism for radionuclide transport[J]. *Environ Sci Technol*, 2009, 43: 1293-1298.
- [19] Murota K, Saito T, Tanaka S. Desorption kinetics of cesium from Fukushima soils[J]. *J Environ Radioact*, 2015, 153: 134-140.
- [20] 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[J]. *Ann Nucl Energy*, 2012, 50(4): 71-81.
- [21] 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[J]. *应用生态学报*, 1996, 7(1): 89-93.