

# U(VI) 在浅层地下水系统中迁移的反应—输运耦合模拟——以我国南方核工业某尾矿库为例

马 腾<sup>1</sup> 王焰新<sup>2</sup>

(1. 河海大学水资源及环境工程学院, 南京 210024; 2. 中国地质大学工程学院, 武汉 430074)

**摘要:** 在对我国南方某大型尾矿库库区水文地质条件概化的基础上, 运用国际最新版本的三维地下水流动与污染物运移的模拟软件 Visual MODFLOW 建立了研究区 U(VI) 在浅层地下水系统中迁移的反应—输运耦合模型, 讨论了不同条件下 U(VI) 在地下水中的迁移情况。模拟结果指示, 在不治理的条件下, U(VI) 对库区地下水污染严重; 而在尾矿库治理条件下, 由于地下水系统的自净作用, 对于尾矿库在运营期间下渗的 U(VI), 地下水系统完全可以“消化”。  
**关键词:** U(VI); 迁移; 反应—输运模拟; 尾矿库。

中图分类号: P641.69; X753 文献标识码: A

文章编号: 1000-2383(2000)05-0456-06

**作者简介:** 马腾, 男, 1972 年生, 2000 年毕业于中国地质大学研究生院, 获博士学位, 主要从事放射性水文地球化学与核废物处理方面的研究。

## 0 引言

放射性核素在地下水中迁移的研究是当前环境地球科学的一个热点课题。反应—运移模拟(reaction-transport model) 又称水化学模拟(hydrochemical model)、水文地球化学模拟(hydrogeochemical model), 它是将地球化学反应模拟与描述流体流动和溶质迁移过程的方程相结合来模拟污染物在地下水中迁移的新方法<sup>[1]</sup>。Mangold 等<sup>[2]</sup>、Plummer<sup>[3]</sup>都对这类模型进行了评述。目前, 国外的一些研究者已将这一模拟方法运用到核素迁移中来<sup>[4,5]</sup>。

我国南方某大型尾矿库<sup>①</sup> 建成于 1963 年, 经 30 多年的运营(1994 年退役), 现已发展成为滩面面积 1.47 km<sup>2</sup>、堆存尾矿砂 2×10<sup>7</sup> t、二库联用、周圈堆坝、中心排水的大型铀尾矿库。就其规模而言, 在亚洲亦属罕见。由于尾矿库中的尾矿砂直接暴露于大气中, 在大气降雨的淋滤作用下, 其中含有的放射性核素和毒性重金属很容易进入浅层地下水中, 从而对周围的生态环境造成严重的威胁。本文将描述吸

附作用的表面络合模型——DLM 模型(diffuse layer model) 与地下水流动模型相结合, 运用国际最新版本的三维地下水流动与污染物运移的模拟软件 Visual MODFLOW 建立了 U(VI) 在浅层地下水系统中迁移的反应—输运模型, 模拟了不同条件下尾矿库中的 U(VI) 在地下水中的迁移情况, 为该尾矿库的退役治理提供了科学的理论依据。此外, 我国作为一个铀矿资源大国, 现已建成数十座铀尾矿库<sup>[6]</sup>, 无疑, 本文对于这些尾矿库的类似研究在研究方法上也有着重要的参考价值。

## 1 研究区概况

研究区<sup>[7]</sup> 多年平均降水量为 1 233~1 363 mm, 年降水量集中在 3~6 月, 多年平均蒸发量 1 394~1 533 mm。H 江在研究区内呈“Ω”型弯曲, 开口向东, 尾矿库被其由南、西、北三个方向环绕。河床基底为第三纪红色岩层。据多年观测资料, 平均河水位为 47.86 m。研究区内沿 H 江东侧发育有三级阶地: I 级阶地由全新统组成, 海拔标高 50~60 m; II 级阶地由上更新统组成, 海拔标高为 60~70 m; III 级阶地由冲洪积、残积层组成, 中顶部呈丘陵状, 海拔标高在 75~85 m 间。尾矿库正处在该级阶地顶部的近

收稿日期: 2000-06-09

基金项目: 国家自然科学基金重点资助项目(No. 49832005)。

①出于核工业部门保密原因, 文中的地名、江河等使用了字母代号, 平面图未附。

南北向延伸的凹地内,原标高约为 52~62 m,尾矿库后的基岩侵蚀丘标高为 95~104 m.

研究区是一个完整的地下水系统;西部以 H 江为边界,东部以该区地表分水岭为界.由于本区的地下水总体流向为由东向西,所以,在 H 江“Ω”弯曲口的南北边可以流线为边界,在上述边界圈划的范围内发育有第四系松散沉积物孔隙含水层和第三系孔隙裂隙水含水层,它们相互联系,有着完整的地下水补给、径流、排泄条件,从而构成了一个相对独立的地下水系统.

第四系松散沉积物孔隙水:主要补给来源为大气降水、地表水的入渗及河流的侧向补给(H 江丰水期),地下水属潜水类型,呈条带状分布于 H 江的三级河谷阶地上,含水介质主要为第四系的砂卵石、亚粘土和粘土.该系统的地下水排泄方式主要有 3 种:(1)平水期或枯水期时,以渗流形式向河流排泄;(2)民井开采,开采深度为 10~30 m;(3)向第三系孔隙裂隙水的排泄.

第三系孔隙裂隙水:地下水的补给来源为大气降水,上覆松散沉积物孔隙水的补给.含水介质主要是下第三系茶山坳段的泥岩、泥灰岩、泥质风化砂岩.据尾矿库库周钻孔对其揭露的情况,该层地下水的水位在 72.23~74.57 m 之间,含水介质的渗透系数为 0.158~0.891 m/d.地下水的排泄方式有两种:(1)向 H 江的线状排泄;(2)人工采排地下水.

## 2 反应—输运模型的建立

### 2.1 核素迁移的反应—输运方程

对于单组分污染物在地下水系统中的迁移,如果仅考虑吸附和放射性衰变,核素输运方程可以用下面的方程描述:

$$R_d \frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left[ D_{ij} \frac{\partial c}{\partial x_j} \right] - \frac{\partial}{\partial x_i} (cu_i) + \frac{q_s}{\theta} c_s - \lambda \left[ c + \frac{\rho_b}{\theta} c_g \right], (i, j = 1, 2, 3).$$

式中: $c$  为污染物的浓度; $D_{ij}$  为水动力弥散系数; $u_i$  为质量平均流速; $q_s$  为单位时间内对单位体积含水层抽(负)或注(正)水量; $\theta$  为有效孔隙度或含水率; $c_s$  为源或汇中污染物的浓度; $\lambda$  为核素的衰变系数;

$c_g$  为核素固相浓度; $R_d$  称为阻滞因子,  $R_d = 1 + \frac{\rho_b}{\theta}$ .

$K_d$ , 其中  $\rho_b$  表示骨架密度,  $K_d$  称为分配系数.

### 2.2 模拟软件简介

本次模拟选用的软件是由 Waterloo Hydrogeologic 公司开发研制的三维地下水流动及污染物运移有限差分模拟软件 Visual MODFLOW. Visual MODFLOW 是三维地下水流动和污染物运移最完整、最易用的模拟环境,这个完整的集成软件将 MODFLOW, MODPATH 和 MT3D 同最直观强大的图形用户界面结合在一起.其全新的菜单结构使用户轻而易举地确定模拟区域大小、选择参数单位,以及方便地设置模型参数和边界条件、运行模型模拟(MT3D、MODFLOW 和 MODPATH)、对模型进行校正以及用等值线或颜色填充将其结果可视化.在建立模型和显示结果的任何时候,都可以用剖面图和平面图的形式将模型网格、输入参数和结果以可视化显示.因此,Visual MODFLOW 是当前世界上关于三维地下水流动和污染物运移模拟的最流行软件.

### 2.3 研究区水文地质条件的概化

对模拟区进行平面网格剖分,剖分为 60 列,43 行,共 2580 个单元;综合模拟区的地形、岩性及含水层的类型,垂向上分为 3 层:第一层为粘土、亚粘土层,第二层为更新统及第四系的砂卵石层,第三层为下第三系的基岩.在模拟区内采集了 136 个高程控制点,对其进行 Kriging 插值,生成了各层的层面.

尾矿库北、西、南三面为 H 江所包围,故模型在此的边界可设为河流边界,H 江河水水位取 48 m.模拟区东侧的地形最高点,是一个地表分水岭,下第三系的基岩在此出露地表.其东侧约 2~3 km 范围内发育的是 H 江支流 K 水的三级河流阶地,野外实地观察证实其岩性组成与 H 江各阶地的情况基本对应,据此可以推断此处也是地下分水岭.我们可将其设为一隔水边界.由于模拟区内的地下水总体流向为由东向西,故模拟区的南、北两侧可以流线为边界,将其亦设为隔水边界.整个模拟区地表设为降雨入渗边界.据当地气象部门的降雨资料及有关的水位动态监测资料可求得区内降雨入渗系数为 0.058,而该区多年平均降雨量为 1 233~1 363 mm,故降雨入渗量取 71.5~79.0 mm/a.

尾矿库中废水或降雨的垂向渗漏量不仅影响着模拟区的流场分布,而且也影响着浓度场的分布;因此,它是一个非常关键的边界条件.由于资料的限制,尾矿库复杂的运行史及库坝的几次改建、加固,

精确确定尾矿库运营期及退役后的垂向渗漏量是一个非常困难的问题。在本次模拟中,我们设尾矿库运营期(1963年—1994年)和退役后(1994年以后)尾矿库垂向渗漏量分别为一定值。

(1)运营期尾矿库垂向渗漏量的估算:设尾矿库废水通过坝体的侧向渗漏量全部返回到尾矿库,则运营期间尾矿库的垂向渗水量可由下列水量平衡求得:

$$Q_1 + Q_2 = Q_3 + Q_4 + Q_5 + Q_6 + Q_7.$$

式中: $Q_1$ 为尾矿库内降雨汇入量( $m^3/a$ ); $Q_2$ 为水冶厂排入尾矿库内的水量( $m^3/a$ ); $Q_3$ 为尾矿夹带的水量( $m^3/a$ ); $Q_4$ 为尾矿库内液面蒸发总量( $m^3/a$ ); $Q_5$ 为尾矿库内干尾矿面蒸发总量( $m^3/a$ ); $Q_6$ 为排入H江的总量, $5.57 \times 10^6 m^3/a$ ;  $Q_7$ 为尾矿库的垂向渗水量( $m^3/a$ ).求得尾矿库的垂向渗水量为  $7.03 \times 10^5 m^3/a$ .

(2)尾矿库退役后库水垂向渗漏量:尾矿库退役后,将停止向库中排放尾矿浆,即上式中的 $Q_2$ 项为0,同时库中废液向H江的排放也停止,即上式中的 $Q_6$ 项亦为0,这样我们可根据上述水均衡方程计算出此时尾矿库中水的垂向渗漏量为  $1.73 \times 10^5 m^3/a$ .

对于溶质边界,在本次模拟中我们将尾矿库设为一溶质通量边界,对应于上述尾矿库垂向渗漏量的情况,即通过给尾矿库垂向渗漏的废水赋一铀浓度值来实现溶质通量.那么,到底赋一个多大的铀浓度值则是一个非常复杂的问题.这是因为它受多个因素的影响.它不仅与尾矿库中废液的侧向渗漏、向H江的排放、垂直下渗、蒸发及大气降雨的稀释作用等有关,而且与尾矿砂铀的浓度、废液本身的浓度及废液与尾矿砂作用时间及下渗速度等有关.限于资料,我们对其作了如下简化处理.

(1)考虑到尾矿库在运营期下渗的主要是尾矿废水,因此,这一时期的铀浓度可以取尾矿废水的铀质量浓度为参考.表1列出了1998年不同月份尾矿废水中铀的质量浓度.考虑浅部受降雨稀释作用明显的废水主要是侧向渗漏及向H江的排泄,而深部受降雨稀释影响较弱的废液主要是垂向渗漏.我们以枯水期废水中铀的质量浓度的均值,即  $0.705 mg/L$ ,代表尾矿库在运营期间(1963年—1994年)垂向渗漏的废水的铀质量浓度.

(2)尾矿库退役后,垂向下渗的铀主要来自于大气降雨对尾矿砂淋滤而解吸的铀.尾矿砂解吸的土柱实验表明(表2),在穿透水的孔隙体积达到114.17之

表 1 尾矿库库水铀的质量浓度

						mg/L
	库-1	库-2	库-3	库-4	库-5	均值
取样时间	6月4日	7月3日	8月12日	9月3日	10月5日	
c(U)	0.185	0.120	0.889	0.521	0.132	0.368

表 2 尾矿砂的自来水淋滤试验结果

项目	淋滤液	穿透水的孔隙体积数					
		4.72	7.87	31.50	70.87	114.17	255.90
pH	7.74	3.53	4.43	5.48	6.87	6.42	7.06
*	$5 \times 10^{-4}$	0.585	0.563	0.573	0.318	—	0.006

\*指  $c(U)/(mg \cdot L^{-1})$ .

前,渗出液的铀质量浓度变化范围维持在  $0.585 \sim 0.318 mg/L$  间,而在穿透水孔隙体积达到 255.9 之后,渗出液的铀质量浓度( $0.006 mg/L$ )已经低于库区地下水铀质量浓度( $0.029 mg/L$ ).据此,我们假设在尾矿库垂向渗出液达到其孔隙体积的 114.17 倍之前,垂向下渗液的铀质量浓度取土柱实验中前 4 个穿透水孔隙体积铀质量浓度的平均值,即  $0.509 mg/L$ .由于尾矿细泥的垂向渗透性极低( $6.58 \times 10^{-8} m/s$ ),入渗的雨水很难穿透它,因此,在计算穿透水孔隙体积时主要考虑尾矿砂(其孔隙体积为  $1.98 \times 10^6 m^3$ ).据此可求得在尾矿库垂向渗出液达到其孔隙体积的 114.17 倍时需 1 650 a,而我们的模拟时段为 1 000 a,故而,尾矿库退役后,其垂向渗出液铀质量浓度可设为  $0.509 mg/L$ .

综合本区地层发育特征及其水动力特征,将其分为 5 个区: I 区为粘土、亚粘土层, II 区为 III 级阶地更新统卵石层, III 区为 II 级阶地上更新统的卵石层, IV 区为 I 级阶地第四系卵石层, V 区为第三系的基岩.通过参考有关区域勘察资料和手册,对各参数区的水动力参数赋初值,经过对研究区地下水水位和流速、流向的拟合,最终获得的水动力参数值(见表 3).

弥散度是地下水动力弥散理论中用来描述空隙介质弥散特征的一个重要参数,然而,对于它的取值却是当今弥散理论研究的一个热点,其中的一个重要原因是它的尺度效应.为此,吸引了众多学者对该问题进行广泛而深入的研究.李国敏<sup>[8]</sup>和 Reh<sup>[9]</sup>综合世界范围内百余个水质模型中所使用的纵向弥散度与空间尺度的关系,认为水动力弥散的尺度效应具有分形特征,并给出了不同模型纵向弥散度尺度

表 3 水动力参数  
Table 3 Model parameters of groundwater flow

水动力参数		I	II	III	IV	V
导水性	$K_x=K_y/(m \cdot s^{-1})$	$1.57 \times 10^{-7}$	$5.08 \times 10^{-5}$	$9.3 \times 10^{-5}$	$7.75 \times 10^{-4}$	$8.2 \times 10^{-6}$
	$K_z/(m \cdot s^{-1})$	$1.43 \times 10^{-7}$	$4.06 \times 10^{-5}$	$7.3 \times 10^{-5}$	$7.70 \times 10^{-4}$	$1.3 \times 10^{-6}$
	储水系数 $S_s$	$3.10 \times 10^{-4}$	$2.60 \times 10^{-4}$	$2.9 \times 10^{-4}$	$1.43 \times 10^{-4}$	$7.4 \times 10^{-4}$
富水性	单位给水度 $S_y$	0.015	0.13	0.15	0.27	0.013
	有效孔隙度	0.039	0.31	0.33	0.27	0.230
	总孔隙度	0.460	0.32	0.35	0.28	0.230

表 4 模型纵向弥散度取值

Table 4 Values of longitudinal dispersivity of model

层号	岩性	空间尺度 $l_s/m$	分维数 $D$	分维方程	纵向弥散度 $a_L/m$
1	粘土	3 300	0.563	$\lg\{l_s\}_m = \frac{1}{0.563} \lg\{a_L\}_m + 1.568$	12.54
2	卵石层	2 520	0.563	$\lg\{l_s\}_m = \frac{1}{0.563} \lg\{a_L\}_m + 1.506$	20.91
3	钙泥质粉砂岩	3 900	0.817	$\lg\{l_s\}_m = \frac{1}{0.817} \lg\{a_L\}_m + 2.369$	9.96

效应的分维数. 本次模拟在弥散度的取值上尝试运用了该方法, 表 4 给出了各模拟层纵向弥散度的计算值.

粘土作为一道屏障, 在尾矿库中的 U(VI) 向浅层地下水系统迁移过程中起着强烈的阻滞作用, 因此, U(VI) 在其中的分配系数的取值至关重要. 与传统方法相比, 表面络合模型同时考虑了诸如 pH 的变化、液相络合物的存在形式、溶液的离子强度、各吸附剂表面不同点的络合性质等重要系统的行为, 它可以提供更多可供选择的分配系数, 在此我们尝试

用 DLM 模型<sup>[7]</sup>来确定 U(VI) 在粘土中的分配系数.

图 1 是在铀质量浓度为 0.708 mg/L,  $m/V=10$  g/L 的条件下, DLM 求得的 U(VI) 在粘土中的分配系数与 pH 值的关系曲线. 从图中可以看出, U(VI) 的分配系数受 pH 值影响明显. 据有关资料显示, 本区降水酸度普遍严重, 特别是自 1983 年以来, 酸雨频率逐年增加, 由 1983 年的 5.14% 增加到 1989 年的 81.5%, 七年来降水的酸度由 4.96 降低到 4.22, 可以说是无雨不酸. 据有关部门估计, 今后该区降水的 pH 值可能会降到 4.05~4.10. 鉴于上述情况, 我们取 pH 值为 4.1 时的 U(VI) 的分配系数, 即 0.0025 L/g.

粘土的干密度为 1 600 kg/m<sup>3</sup>. 铀的半衰期取值为 4.5×10<sup>9</sup> a.

综上所述, 通过对研究区水文地质条件的概化, 建立了研究区 U(VI) 在地下水中迁移的概念模型. 将上述边界条件和参数代入相应的水流方程和溶质运移方程, 便得到了关于研究区 U(VI) 在地下水中迁移的数学模型. 该过程及其数学方程的求解均可在三维地下水流动及污染物运移有限差分模拟软件 Visual MODFLOW 中得到实现.

### 3 模拟结果与讨论

模型识别表明, 该模型是可靠真实的<sup>[7]</sup>. 从未治理时尾矿库退役 1 000 a 时核素在第三系含水层中分布的平面图<sup>①</sup>及剖面图(图 2a), 可以看出, 垂向上核素迁移的最大深度约为 19 m, 迁移的方向逐渐由垂向转为水平向; 平面上, 核素向西扩展了 800 m、向南扩展了 1 500 m、向北扩展了 2 000 m, 受污染面积近 9 km<sup>2</sup>. 模型在假定尾矿库的垂向渗流量得到很好控制, 达到了尾矿库以外地区降雨入渗水平, 且 U(VI) 在尾矿库退役经治理后完全不从尾矿砂中解吸的条件下, 计算出尾矿库退役 1 000 a 时, 其运营

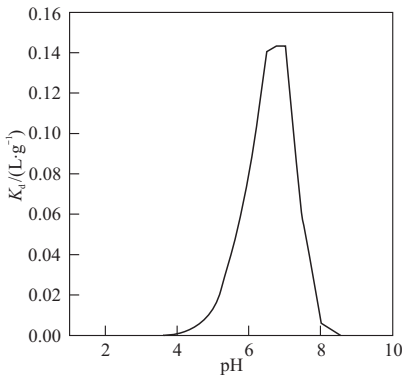


图 1 DLM 模型计算的 U(VI) 的  $K_d$  与 pH 值的关系曲线 ( $c(U)=0.708$  mg/L,  $m/V=10$  g/L)

Fig. 1 Plot for DLM-predicted  $K_d$  and pH of solution

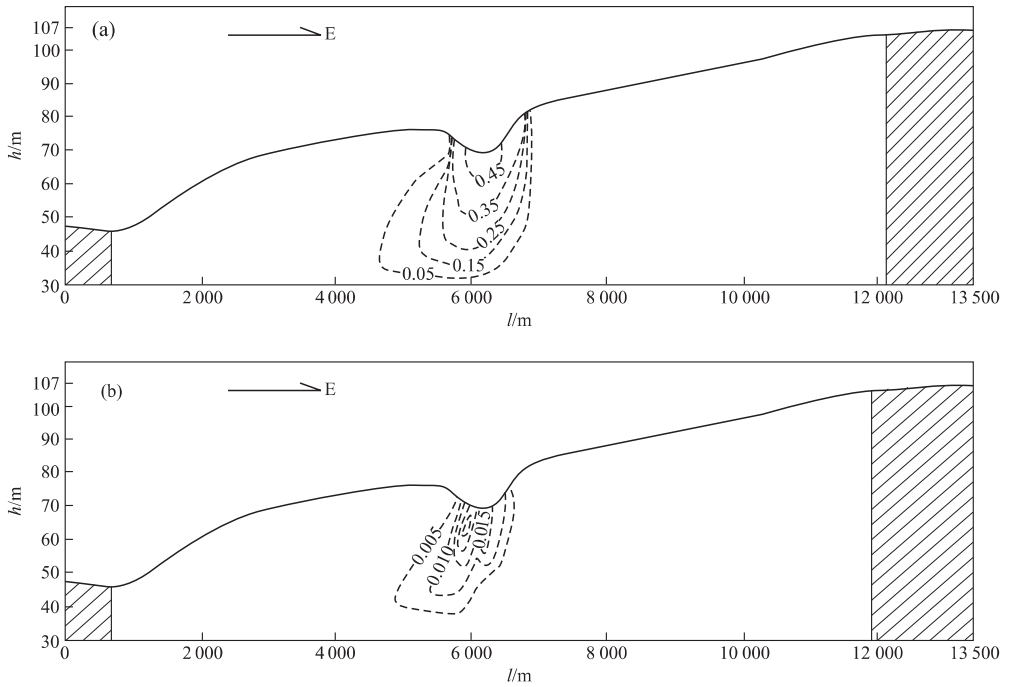


图 2 尾矿库退役 1 000 a 时, U(VI) 在含水层中分布剖面

Fig. 2 Distribution profile of uranium(VI) in groundwater 1 000 a after decommissioning of mill-tailing

a. 尾矿库未治理时; b. 尾矿库治理后; 等值线单位: mg/L; 图中斜线为隔水边界

期间下渗的 U(VI) 在第三系含水层中分布的平面图<sup>①</sup>及剖面图(图 2b)。从图中可以看出, 由于地下水系统的自净作用, 尾矿库在运营期间下渗的 U(VI) 完全可以“消化”, 其扩展范围有限, 且质量浓度也很低, 如第三系含水层的铀最高质量浓度为 0.018 mg/L, 低于国家饮用水标准(0.05 mg/L)。由此看出, 尾矿库退役治理工程的实施必要而紧迫。

#### 参考文献:

- [1] 文冬光, 沈照理, 钟佐燊. 地球化学模拟及其在水文地质中的应用[J]. 地质科技情报, 1995, 14(1): 99~104.
- [2] Mangold D C, Tsang C F. A summary of subsurface hydrological and hydro-chemical models [J]. Rev Geophys, 1991, 29: 51~79.
- [3] Plummer L N. Geochemical modeling of water-rock interaction: past, present, future [A]. Water-rock interaction [C]. Washington: American Chemical Society, 1992. 23~33.
- [4] Bütow E, Holzbecher E, Koß V. Experimental investigation and modeling of the migration of radionuclides from Ellweiler uranium mill tails [A]. In: Merkel B, Hurst S, Löhnert E P, et al, eds. GeoCongress 1. Proceedings of the International Conference and Workshop (Uranium-Mining and Hydrogeology) [C]. Köln: Von Loga, 1995. 71~80.
- [5] Diersch H J D, Lbert H A, Schreyer J, et al. Three dimensional modeling of flow and contaminant transport processes arising in flooding the Königstein Uranium Pit [A]. In: Merkel B, Hurst S, Löhnert E P, et al, eds. GeoCongress 1. Proceedings of the International Conference and Workshop (Uranium-Mining and Hydrogeology) [C]. Köln: Von Loga, 1995. 121~130.
- [6] 李学群. 铀矿冶污染治理[M]. 北京: 中国环境出版社, 1996.
- [7] 马腾. 淋滤作用影响下放射性核素在浅层地下水系统中迁移的反应—运输耦合模拟——以南方核工业某尾矿库为例[D]. 武汉: 中国地质大学, 2000.
- [8] 李国敏. 多孔介质水动力弥散尺度效应的分形特征[A]. 第一届全国分形理论与地质科学学术讨论会论文集 [C]. 武汉: 中国地质大学出版社, 1992.
- [9] Yeh W W. Review of parameter identification procedures in groundwater hydrology: the inverse problem [J]. Water Resour Res, 1986, 22(2): 95~108.

## COUPLED REACTION-TRANSPORT MODELING OF MIGRATION OF URANIUM(VI) IN SHALLOW GROUNDWATER SYSTEM: A CASE STUDY OF URANIUM GANGUE SITE IN SOUTHERN CHINA

Ma Teng<sup>1</sup> Wang Yanxin<sup>2</sup>

(1. *College of Water Resources and Environmental Engineering, Hehai University, Nanjing 210024, China*; 2. *Faculty of Engineering, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China*)

**Abstract:** The coupled reaction-transport modeling of uranium(VI) in shallow groundwater was created on the basis of the hydrogeological pattern for a huge uranium gangue site in southern China. The software Visual MODFLOW, the most up-to-date simulation of the three-dimensional groundwater flow and pollutant migration, was used to simulate the migration of uranium(VI) in groundwater on different conditions. As shown in the simulated results, the uranium(VI) would seriously pollute the groundwater without remediation. On the other hand, the uranium(VI) that arises in the operation of the uranium gangue would be completely “digested” due to the self remediation of groundwater when the uranium gangue is being brought under control.

**Key words:** uranium(VI); migration; reaction-transport modeling; gangue site.