

中国博士后科学基金 93 资助项目

放射性废物地质处置

许兆义 李书绅 赵英杰 王志明 编著

地震出版社

42
34

放射性废物地质处置

许兆义 李书绅 赵英杰 王志明 编著

地震出版社

1994

(京)新登字 095 号

内 容 提 要

本书论述了放射性废物地质处置理论与方法研究方面的问题。主要内容包括：放射性废物的分类与环境特征、放射性废物处置方法概论、水力压裂法处置中放废液的研究、浅地层处置场址调查与研究、深地层处置场址调查与研究、处置库的设计与建造等。

本书资料丰富、详尽可靠。可供水文地质、工程地质、环境地质、环境工程和辐射防护等方面的生产和科研工作者以及有关专业的大专院校师生参考。

放射性废物地质处置

许兆义 李书绅 赵英杰 王志明 编著

责任编辑：王淑玲

*

地震出版社出版

北京民族学院南路9号

北京市红星黄佳印刷厂印刷

新华书店北京发行所发行

全国各地新华书店经售

*

787×1092 1/16 8印张 200千字

1994年6月第一版 1994年6月第一次印刷

印数 0001—1000

ISBN 7-5028-1157-5/P. 699

(1400) 定价：18.00元

序

随着现代科学的发展和人类社会的进步，核能在许多国家的应用也日益广泛。自1789年M. H. Klapraht从沥青中发现铀元素开始，到1939年Hahn等发现铀原子在中子冲击下可发生核分裂，至今，经过200多年的历史，人类已陆续发现了存在于自然界的数十种放射性元素，同时这些放射性元素也已广泛应用于人类生活和生产活动的各个方面。显然，在核能利用过程中，随之而来的放射性废物处置问题也就成为各国科学家研究的主要对象之一。50年代，世界上几个核大国就开始了放射性废物的管理和处置方面的研究。我国自60年代开始，随着核工业的发展和核电站的相继建成，在放射性废物处置方面的研究也有相应的发展。但这些研究多为专题性的研究。

众所周知，由于种种原因和条件限制，在众多处置方案中，陆上处置是当前各国普遍采用的方案。而陆上处置，就离不开地质环境，更与水文地质、工程地质及环境工程等学科紧密相关，互相渗透。放射性废物地质处置科学就是顺应这一需要而诞生的一门新兴的边缘学科，也是水文地质、工程地质学科的一个重要组成部分。

许兆义教授等编著的这本《放射性废物地质处置》，是其多年从事放射性废物地质处置研究的系统总结。由于作者具有坚实的地质、水文地质、工程地质的理论基础和多年从事放射性废物地质处置的实践知识，加之作者广泛地参阅了国、内外的相关资料，使这部著作成为我国当前在放射性废物地质处置方面第一部较为全面、系统的论著。

当欣悉许兆义及其合作者集体完成的专著《放射性废物地质处置》即将公开出版时，我感到十分高兴，因为这对促进我国水文地质和工程地质科学的发展具有重要意义，我愿在此表示衷心的祝贺！相信该书的出版问世，对提高我国环境地质科学的理论水平，促进核工业的发展和工程地质勘察及环境安全评价方法等研究，必将发挥重要的作用。

林学钰

1994年5月

2AC95/09

前 言

放射性废物地质处置科学是地学发展的一个重要的分支学科。它是在放射性废物处置与地质环境、水文地质、工程地质、环境工程等相关学科之间的交叉延拓研究中发展起来的科学。它不仅形成了自己的理论体系,而且将促进地下水和溶质迁移理论、热力工程地质、放射性处置场址的勘察方法、以及环境安全评价方法等方面问题的研究与发展。

日益增多的放射性废物,使人类环境受到严重的威胁,如何处理和处置这些放射性废物,这是各个有核国家急待解决的问题。从技术上看,核燃料循环的最后阶段是尽可能采用安全而又经济合理的方法对高放和中、低放废物做出最终处置。在自然界中的处置可能是长期的,也可能是“中间”的;可能是废液,也可能是固体形式。由于某些核素具有很长的半衰期,必须采取更多的防护措施达到安全处置,以确保未来若干世纪将不造成任何危害。在众多的处置方式中,放射性废物的地质处置已受到广泛的重视。特别对长寿命的中、高水平放射性废物的最终处置问题,最长远的解决办法是使它们在地壳深层中沉积。这种处置的优点在于地质体可以在漫长的时期中封闭和滞留放射性废物,从人类接近或接触的所有环境中消除了具有潜在危害的物质;再就是有确实的保证,使这些物质在可能重返人类生存的环境之前早已衰变掉。因此,放射性废物地质处置理论与方法研究则是非常必要的。

自50年代起,几个核大国便开始了放射性废物的管理和处置方面的研究。70年代,国际原子能机构(IAEA,现有112个成员国)协调有关成员国研究和实施放射性废物的处置计划。到80年代,有关各国和国际社会在放射性废物处置方面的研究和交流活动显著增加。

我国围绕核能问题进行了广泛的学术交流。秦山和大亚湾核电站相继建成,其它多座核电站也在筹备设计之中,在核燃料循环系统,特别是在放射性废物处置方面,已与有关国家的科研部门进行了接触或合作研究。总的说来,我国在核废物处置的研究方面尚处于起步阶段,有许多基础理论、方法和技术问题需结合我国的实际状况进行深入研究。

迄今为止,在放射性废物地质处置研究方面,国内外所见均为分散的专题研究成果资料;从地质学科上看,尚无系统的论著。为此,作者在多年研究的基础上,参考国内、外有关资料,撰写了这本《放射性废物地质处置》专著。其中包括:放射性废物的分类与环境特征、放射性废物处置方法概论、水力压裂法处置中放废液的研究、浅地层处置场址调查与研究、深地层处置场址调查与研究、处置库的设计与建造等方面的内容。

在多年的研究和资料的收集工作中曾得到中国地质大学、中国辐射防护研究院和长春地质学院、国营八二一厂等单位的领导和专家的大力支持和帮助;特别是许兆义的博士后工作专家指导组组长林学钰教授(长春地质学院)曾给予许多指导并审阅了全书,付出了很大的辛劳;在此一并致以衷心的感谢。

本书可能尚存许多欠缺,不当之处恳请指正。

作者

1994年5月

目 录

| | |
|--------------------------------|-------|
| 第一章 放射性废物的分类与环境特征 | (1) |
| 第一节 辐射防护的基本概念..... | (1) |
| 第二节 放射性废物的分类..... | (6) |
| 第三节 核燃料循环过程中放射性废物的环境特征..... | (7) |
| 第二章 放射性废物处置方法概论 | (20) |
| 第一节 概述 | (20) |
| 第二节 高放废物的地质处置 | (28) |
| 第三节 中、低放固体废物的地质处置 | (46) |
| 第四节 放射性废液的地质处置 | (51) |
| 第三章 水力压裂法处置中放废液 | (55) |
| 第一节 概述 | (55) |
| 第二节 页岩开裂模式的研究 | (55) |
| 第三节 水力压裂技术的试验研究 | (59) |
| 第四章 浅地层处置场址的调查与研究 | (70) |
| 第一节 浅地层场址调查概要 | (70) |
| 第二节 地质调查的必要性 | (73) |
| 第三节 地质调查方法概论 | (77) |
| 第五章 深地层处置场址的调查与研究 | (87) |
| 第一节 深地层场址调查概要 | (87) |
| 第二节 场址的地下试验研究 | (88) |
| 第六章 处置库的设计与建造 | (102) |
| 第一节 浅地层处置库的设计与建造..... | (102) |
| 第二节 深地层处置库的设计与建造..... | (110) |
| 参考文献 | (119) |

第一章 放射性废物的分类与环境特征

第一节 辐射防护的基本概念

放射性核素含量超过国家规定限值的固体、液体和气体废弃物，统称为放射性废物。它的最大危害就是废物中的放射性核素通过各种途径和各种形式的迁移进入人类生存的环境，其放射性辐射对人体产生的各种危害。因此，有关的科技人员有必要了解一些辐射防护的基本概念。

这里所论述的主要是来自原子核的电离辐射。也就是说，它们起因于核能级的激发，通常是由原子核俘获带电的粒子或不带电的粒子——中子，或由不稳定核素的放射性衰变或裂变引起的。可将辐射的类型分为带电或不带电粒子；也可分为微粒（电子、 α 粒子、质子、氦核、裂变产物等）、或电磁辐射 γ 射线、中子辐射、X射线等。表1-1汇集了较常见的核辐射的基本特性。

表1-1 核辐射的特性

| 辐射 | 静止质量 | 电荷 | 典型能量范围 | 射程(数量级) | | 附注 |
|---------------------|---------------------------------------|----|------------|----------------------|-------------------|-------------|
| | | | | 空气中 | 固体中 | |
| α | 4.00 原子质量单位 | 2+ | 4~10MeV | 5~10cm | 25~40 μ m | 与电离 He 核相同 |
| β (电子) | 5.48×10^{-4} 原子质量单位, 0.51MeV | - | 0~4MeV | 0~1m | 0~1cm | 与电子相同 |
| 阳离子 (正 β) | 5.48×10^{-4} 原子质量单位, 0.51MeV | + | - | 0~1m | 0~1cm | 除电荷外与电子相同 |
| 质子 | 1.007 原子质量单位, 938.26MeV | + | - | - | - | - |
| 中子 | 1.0086 原子质量单位, 939.55MeV | 0 | 0~15MeV | 0~100m | 0~100cm | 自由半衰期:16min |
| X (电磁光子) | - | 0 | 1eV~100keV | 0.1~10m ^① | 0~1m ^① | 由电子跃迁产生的光子 |
| γ (电磁光子) | - | 0 | 10keV~3MeV | 0.1~10m ^① | 1mm~1m | 由核跃迁产生的光子 |

①在电磁辐射下呈指数衰减

一、放射源

1. 放射性强度

对放射性物质来说,通常用源的放射性强度来描述其放射性特性,其定义为:已知量的该种物质在单位时间内产生的衰变数。放射性强度的国际单位制单位为 Bq(Becquerel)。

$$1\text{Bq}=1\text{次衰变/秒} \quad (1-1)$$

另一种常用的放射性强度的单位为 Ci(居里),其定义为:

$$1\text{Ci}=3.70\times 10^{10}\text{次衰变/秒} \quad (1-2)$$

对任何纯放射性物质而言,一般以其半衰期 τ 描述衰变率。某种核素的半衰期是指其放射性强度衰减一半所需的时间,任一种核素的放射性强度 A 可写成:

$$A = -\lambda N = \frac{\ln 2}{\tau} N = \frac{0.693}{\tau} N \quad (1-3)$$

式中, λ 为衰变常数(S^{-1}); N 为该种放射性核素的原子总数。

由(1-3)式可知,放射性强度是与放射性物质的原子数目成正比的。因此,对任何放射性物质而言,不论其纯度或浓度如何,均可用 Bq(或 Ci)数表示其放射性总量。由于放射性原子的数目是按指数递减的:

$$N = N_0 e^{-\lambda t} = N_0 e^{-0.693/t} \quad (1-4)$$

式中, N_0 为当时间 $t = 0$ 时的原子数,故有:

$$A = A_0 e^{-0.693/t} \quad (1-5)$$

这就是源的放射性强度与时间的函数关系。

2. 有效半排期

若在活组织中含有放射性物质时,由于有机体内具有自其内部排除相应的化学或生物化学物质的正常过程,因而必须对所观测的放射性强度的降低值进行补充修正。这里引入一个称作生物半排期($\tau_{\text{生物}}$)的速率常数,对于一种已知元素,无论是其稳定的还是其放射性同位素,它们的生物半排期大致相同。

在这种情况下,任何活生物体内的放射性元素,由于放射性衰变和生物排除联合作用的结果,使其减少一半所需的时间称为有效半排期 $\tau_{\text{有效}}$,见(1-6)式。表 1-2 列出若干放射性核素的有效半排期。

$$\tau_{\text{有效}} = \frac{\tau_{\text{生物}} \times \tau}{\tau_{\text{生物}} + \tau} \quad (1-6)$$

二、吸收剂量

1. 计量

由于不同类型的辐射与其所通过的介质之间的相互作用效果不同,所以在实际评价各种辐射对人体或对植物和动物的作用时,都应考虑这些差异。辐射效应所关心的是吸收剂量 D ,它是单位质量靶物质接受的辐射能量,即:

$$D = d\varepsilon/dm \quad (1-7)$$

式中, $d\varepsilon$ 是靶物质接受的平均辐射能量, dm 靶物质的质量。吸收剂量的单位为:焦耳/千克($J \cdot kg^{-1}$),其专用名称为戈瑞(Gy);能量吸收的速率称之为吸收剂量率,它是吸收剂量对时间的导数,即: dD/dt ,单位为 Gy/h、Gy/min、Gy/d,根据合适的情况选定。

2. 物理意义

剂量的物理含义多年来一直受到保健物理学家们的关注,为了弄清它,已作了许多尝

表1-2 若干放射性核素在人体器官内的半排期

| 放射性核素 | 紧要器官 | 物理半衰期 τ | 半排期 | |
|------------------|------|-----------------|-------------|-------------|
| | | | $\tau_{生物}$ | $\tau_{有效}$ |
| $^3H^{\text{O}}$ | 全身 | 12.3a | 12d | 11.97d |
| ^{131}I | 甲状腺 | 8d | 138d | 7.6d |
| ^{90}Sr | 骨骼 | 28a | 50a | 18a |
| ^{239}Pu | 骨骼 | 24400a | 200a | 198a |
| | 肺部 | 24400a | 500d | 500d |
| ^{60}Co | 全身 | 5.3a | 99.5d | 9.5d |
| ^{55}Fe | 脾 | 2.7a | 600d | 388d |
| ^{59}Fe | 脾 | 45.1d | 600d | 41.9d |
| ^{54}Mn | 肝 | 303d | 25d | 23d |
| ^{137}Cs | 全身 | 30a | 70d | 70d |

①在水中混和成氚水。

试,其中存在下述两种困难:

(1)需要在内部测量实际上转入有机物质的能量,而且要使任何观测到的效应与积累的辐射能量联系起来;

(2)需要计算并预测次级过程,诸如碰撞效应或生物触发效应等,这些均为辐射能量吸收的间接影响。

因此,常将此种相互作用过程分解为两部分:一是入射粒子的能量损失速率,这可以用辐射能量的吸收效应来反映;二是生物效应的速率,它主要受被照机体组织特征的影响,并且与其对辐射的敏感性有关。

三、当量剂量和有效剂量

辐射粒子或光子与靶物质原子的相互作用产生带有足够能量的次生投射粒子,这些粒子在原碰撞地点产生位移或在电离原子周围穿越不同能级的电子层,进一步发生相互碰撞作用。借助于照相乳胶或电子显微镜,可以展示出一个重的电离粒子如裂变产物原子的轨迹被高密度损伤原子形成的短管状破坏区环绕着。相互作用较弱的带电粒子具有类似的、但明显地轻一些的损伤原子的轨迹。反之,快中子在两种作用中有长的平均自由程,因而沿其轨迹将产生大间隔的点滴状损伤区。由于一个辐射核粒子可带有的动能范围为几兆电子伏,而断开一个分子键只用几个电子伏,故在受影响的组织体积内,密度较大的位移原子意味着有较多的被损伤的分子。由于断键的一部分可以再结合,因而在已知的受影响体积中,随着被损伤分子数目的增多,细胞的持久损伤的可能性急剧上升。因而,辐射作用的效果不仅与吸收剂量有关,而且还与辐射的种类与能量有关。

体内所有的组织和器官所受辐射的当量剂量加权之和称为有效剂量,对组织和器官的当量剂量加权的因子称为组织权重因子。

在辐射防护中感兴趣的是某一组织或器官的吸收剂量的平均值,并按辐射粒子的种类与能量范围加权,称为辐射权重因子(W),它是根据射到身体上(或当源在体内时由源发射)的辐射的种类与能量来选定的(见表1-3)。按辐射权重因子加权后的吸收剂量称为在某一组织或器官中的当量剂量。在组织 T 中的当量剂量可以表示为

$$H_T = \sum W_R \cdot D_{T,R} \quad (1-8)$$

式中, $D_{T,R}$ 为按组织或器官 T 平均计算的来自辐射 R 的吸收剂量,其单位为:焦耳/千克 ($J \cdot kg^{-1}$),专用名称为:希沃特(Sv)。

表1-3 辐射权重因子

| 种类与能量范围 | 权重因子 W_R |
|---------------------------------|------------|
| 光子,所有能量 | 1 |
| 电子及介子,所有能量 | 1 |
| 中子,能量 $\leq 10keV$ | 5 |
| $10keV < \text{能量} \leq 100keV$ | 10 |
| $100keV < \text{能量} \leq 2MeV$ | 20 |
| $2MeV < \text{能量} \leq 20MeV$ | 10 |
| $20MeV < \text{能量}$ | 5 |
| 质子,不是反冲质子,能量 $> 2MeV$ | 5 |
| α 粒子,裂变碎片,重核 | 20 |

对于特定种类与能量的辐射来说,其辐射权重因子应代表这种辐射在小剂量时诱发的相对生物效应(RBE)。实际上在一已知小块体积的组织中,要准确地测量实际积存的能量是困难的。但是,受严重辐射损伤的细胞的相对数目则能测定。因此,相对生物效应有两种不同的概念:一是用一种可比较的积存能量(剂量)来比较观察的组织内受不同类型辐照所产生的影响大小;二是用一种可比较的接受剂量来描述一辐照敏感性组织的细胞破坏程度。表1-4列出近似的相对生物效应值,它们是按照惯例在比较能量为200KeV的X射线的效应时得到的。为了更确切地评价各种不同辐射的生物效应,并合理地预测辐照损伤,通常对不同的辐射确定其有效的当量剂量。它是用相对生物效应值乘以吸收剂量值得出的。这时,该当量剂量(Sv)表示为:

$$1Sv = 1Gy \times \text{相对生物效应值} \quad (1-9)$$

以Sv为单位的当量剂量表示总的生物有效剂量,而与所受辐射的能谱和成分无关。当某地的广大居民受到不同的辐射源照射时,也可用它来确定人口剂量。在这种情况下,以受照人口乘以平均剂量则得总剂量,该量称为人口剂量(人-Sv)。

考虑广大居民所接受的剂量同可能的辐射效应的联系时,例如居民中有某种效应,采用人-Sv的表示法或许最为有用。它具有按照实际人口替代假想人口描述接受剂量的优点。对指定的地区来说,当使用人-Sv时,就意味着已考虑了预料会受辐照的实际人口数。

不同类型组织的辐射敏感性是一个难确定的量。一个细胞的最敏感功能部位为细胞壁。

表1-4 相对生物效应值

| 辐射类型 | 能量(MeV) | 相对生物效应 |
|-------|----------|--------|
| X射线 | 0.01~0.2 | 1.00 |
| γ射线 | 1.25 | 0.7 |
| | 4 | 0.6 |
| 电子(β) | 0.1 | 1.0 |
| | 0.6 | 1.3 |
| 光子 | 1.0 | 1.4 |
| | 0.1 | — |
| α粒子 | 2.0 | 2 |
| | 5.0 | 2 |
| | 0.1 | — |
| 重离子 | 5.0 | 10~20 |
| | 10~30 | ~25 |
| 中子 | 热 | 4~5 |
| | 1.0 | 2~10 |

这符合伯戈尼 (Bergonie) 和特邦杜 (Tribondeau) 定律的基本原理, 它说明若细胞的有丝分裂活动范围越大, 其对辐射就越敏感。有丝分裂活动的范围取决于细胞参加此种分裂的数目和各细胞用在分裂上的时间。该定律并非绝对的, 但许多细胞表现了这种有丝分裂作用。包括造血的细胞组织、胚种细胞和肠的上皮细胞, 事实上都是对辐射敏感的。另一方面, 其它的细胞则表现少量的有丝分裂活动。例如联结组织的细胞、神经组织和脂肪等, 对辐射的反应均是相当迟钝的。辐射敏感性也会受到氧的存在或缺少的影晌, 用辐照治疗某些恶性肿瘤时, 此种氧效应是重要的。

尽管在高照射水平下, 在某种组织观察到的照射效应似乎与剂量率无关。但在水平很低的剂量率下, 当受辐照的细胞破坏速率的实测值与细胞的正常产生速率不相上下或者明显低时, 那可能未必是真实的。有时认为这是恢复, 但在人体正常的新陈代谢作用中, 认为它只是不同速率的调节过程。

同样, 对急性、慢性的照射情况以及照射是对人体全身还是只对特殊部位的辐照, 必须要有所区别。

四、照射条件

鉴于不同器官和组织的辐射敏感性有很大差异, 辐射场的位置和方向是值得注意的, 特别对全身照射与局部照射应加以区别。在全身照射时, 是假定全身均被浸在一种均匀的辐射场内, 而所有组织均接受某种特定的平均剂量。这种照射可假定其对机体的存活率要比相差不多的剂量限于单项器官有更严重的后果。事实上, 在癌症治疗中, 常对恶性组织施加局部

剂量,若向患者全身照射时则可能使其致死。类似地,鉴于四肢的敏感性稍差,当一种高水平的辐照限于向手部或足部照射时,可能是忍受得了的,但对较敏感的部位则可能引起严重损伤(特别是辐射敏感的器官,如生殖腺、眼球的晶状体和骨髓等)。因此,在放射医学中和操作放射性物质时,对在辐射应用中不直接涉及到的身体各部位进行屏蔽是很重要。

辐射可以是慢性的或急性的。前者意味着长期连续照射直到某个总剂量值;后者是指突然的、大量的辐射照射,例如在一次辐射事故或核爆炸时的情况。在高辐射水平下,通常假定照射率的作用相对次要,而只需考虑总吸收剂量。然而,特别在事故时,限制接受的辐射剂量和照射的时间实属重要。

另一个显著的特性是由某些辐射、特别是由较重的带电粒子有限的射程所引起。若辐射源是在人体的外部,则对内部器官的辐射剂量取决于被中间组织所衰减的辐射程度;一般说来,皮肤接收的辐射剂量将是最高。事实上, α 粒子、裂变产物核和低能量电子在组织内的射程均很短,皮肤是人体唯一接受这种外照射源照射的部分。另一方面,对于能量大约150KeV的 γ 和X射线,对皮肤辐射剂量中也是最高的,这时必须认真计算其对皮下组织的辐射剂量,在放射医学的实践中,此乃主要问题。一般将这类辐射源浸没在强吸收辐射的物质(水或空气)中,其危害是比较轻的。

第二节 放射性废物的分类

放射性废物来自核燃料循环的各个阶段以及工业、农业、国防、医学、科研等领域的辐射技术应用和研究过程。

一、一般原则和分类

在不同的国家或部门,对放射性废物的分类不尽相同。但大体上考虑的是以下几个方面:按其放射性强度可分为低放、中放和高放废物;按其半衰期可分为短寿命、中寿命和长寿命放射性废物;按其物理性状可分为气载废物、液体废物和固体废物;按核燃料的循环过程可以分为乏燃料、超铀废物、高放废物、低中放废物、已退役的核设施废物、铀选矿厂尾渣和气体放射性废物。

二、我国的放射性废物分类标准

国家环保局于1988年5月25日批准颁发中华人民共和国国家标准《放射性废物分类标准》(GB9133-88)。该标准包括:主题内容与适用范围、术语、制订放射性废物分类标准的主要原则、放射性气载废物的分级、放射性液体废物的分级和放射性固体废物的分级等六个部分。其中制定放射性废物分类标准的主要原则包括如下五个方面:

(1) 首先确定放射性废物的范畴,规定了各种废物的放射性浓度 A_v (或比活度 A_m)的下限值;

(2) 然后按放射性废物的物理性状进行第一级分类,分为气载废物、液体废物和固体废物三类;

(3) 对放射性气载废物和液体废物均按其放射性浓度水平做为第二级分类,气载废物分为低放、中放、高放三个等级,液体废物分为弱放、低放、中放、高放四个等级;

(4) 对固体废物，以其所含放射性核素的半衰期长短和固体的放射性比活度水平作为并列的二级分类，交叉使用。固体废物的放射性比活度用 Bq/kg 表示。

适用于公众成员的气载放射性浓度的导出限值称为导出空气浓度 (DAC_{公众})，液载放射性浓度的导出限值称为导出液体浓度 (DIC_{公众})，可在辐射防护规定中查出。

按上述原则给出的放射性废物分类系统见表1-5。

表1-5 放射性废物分类系统表

| 类别 | 级别 | 名称 | 放 射 性 浓 度 Av(Bq/m ³) | | | | |
|----------|-----|----|--|---|---|--|--|
| 气载 废物 | I | 低放 | DAC _{公众} < Av ≤ 10 ⁴ DAC _{公众} | | | | |
| | II | 中放 | 10 ⁴ DAC _{公众} < Av ≤ 10 ⁸ DAC _{公众} | | | | |
| | III | 高放 | 10 ⁸ DAC _{公众} < Av | | | | |
| | | | 放 射 性 浓 度 Av(Bq/L) | | | | |
| 液体 废物 | I | 弱放 | DIC _{公众} < Av ≤ 3.7 × 10 ² | | | | |
| | II | 低放 | 3.7 × 10 ² < Av ≤ 3.7 × 10 ⁵ | | | | |
| | III | 中放 | 3.7 × 10 ⁵ < Av ≤ 3.7 × 10 ⁹ | | | | |
| | IV | 高放 | 3.7 × 10 ⁹ < Av | | | | |
| | | | 放 射 性 比 活 度 Am(Bq/kg) | | | | |
| 固体 废物 | I | 低放 | τ ≤ 60d | 60d < τ ≤ 5a① | 5a < τ ≤ 30a② | 30a < τ | 超铀废物 Am ≥ 3.7 × 10 ⁶ Bq/kg |
| | | | 74000③ < Am ≤ 3.7 × 10 ⁷ | 74000③ < Am ≤ 3.7 × 10 ⁶ | 74000③ < Am ≤ 3.7 × 10 ⁶ | 74000③ < Am ≤ 3.7 × 10 ⁶ | |
| | II | 中放 | 3.7 × 10 ⁷ < Am ≤ 3.7 × 10 ¹¹ | 3.7 × 10 ⁶ < Am ≤ 3.7 × 10 ¹¹ | 3.7 × 10 ⁶ < Am ≤ 3.7 × 10 ¹⁰ | 3.7 × 10 ⁶ < Am ≤ 3.7 × 10 ⁹ | |
| | III | 高放 | 3.7 × 10 ¹¹ < Am | 3.7 × 10 ¹¹ < Am | 3.7 × 10 ¹⁰ < Am | 3.7 × 10 ⁹ < Am | |

注：①包括放射性核素⁶⁰Co (τ = 5.271a)；②包括放射性核素¹³⁷Cs (τ = 30.17a)；③对仅含天然α辐射体的固体废物，下限值为3.7 × 10⁵ Bq/kg。

第三节 核燃料循环过程中放射性废物的环境特征

一、乏燃料

在核反应堆中，其能量是铀（或钍、钷）核在中子轰击下裂变时产生的。每一次裂变大 约释放200MeV (= 3.2 × 10⁻¹¹J) 的能量，同时分裂出两个称为“裂变产物”的重核和若干 高能量中子，其中至少有一个中子继续轰击别的可裂变铀核以维持链锁反应的过程。核燃料 “循环”的独有特点是：反应堆芯中的可裂变燃料不可能完全燃烧。这是因为逐渐积累的裂 变产物能够吸收中子而使裂变越来越困难，最终将不能维持临界质量以继续进行裂变。一般

在可裂变燃料消耗大约25~30%之后便从堆芯中取出,这就是所谓的乏燃料。乏燃料废物主要由含钚、镅、锔及铀的裂变产物组成。乏燃料不仅具有高放射性和衰变热,还有相当宝贵的、可回收和可利用的组分。

燃耗期末把烧过的燃料从反应堆中卸出,由于放射性很强,不能立即运输或进行后处理,通常是马上将其置于冷却池中数米深的水下贮存,使燃料中的短寿命裂变产物及活化产物衰变、减容,其中的裂变产物衰变热相应地减少。经过4~6个月的贮存期之后,将其运往后处理厂,这时其中含有原燃料中的大部分²³⁵U,某些组分的同位素Pu(大约400gPu/MW·a),大部分长寿命的裂变产物(包括大部分的⁸⁵Kr和相当数量的³H),以及残余量的短寿命活化产物与裂变产物。其中⁹⁵Zr及子体⁹⁵Nb则是主要的γ射线辐射体。

这时的核物料仍将有热量放出。由于临界(链锁反应)的因素,在贮存或运输时必须要在数量和排列方式上加以限制。为了计算容器周围的辐射场,表1-6列举了构成放射源材料的主要辐射体。关于射线相对强度的计算则要有其他数据。深燃耗燃料还会由²⁴⁴Cm发出一些快中子,因而需要中子屏蔽措施。图1-1给出不同燃耗条件下每吨烧过的燃料的发热量。

表1-6 不同冷却期后受辐照燃料的放射性辐射体和热量

| 冷 却 期 (d) | 90 | 150 | 365 | 3650 |
|--|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| 受照燃料的放射性 (Bq/t _燃) | | | | |
| 裂变产物 | 2.29×10 ¹⁷ | 1.62×10 ¹⁷ | 8.21×10 ¹⁶ | 1.17×10 ¹⁶ |
| 锕系元素 (Pu Cm Am 等) | 5.25×10 ¹⁵ | 5.03×10 ¹⁵ | 4.59×10 ¹⁵ | |
| 总 计 | 2.34×10 ¹⁷ | 1.68×10 ¹⁷ | 8.66×10 ¹⁶ | |
| 受照燃料中主要气态裂变产物的放射性 (Bq/t _燃) | | | | |
| ⁸⁵ Kr | 4.18×10 ¹⁴ | 4.14×10 ¹⁴ | 4.00×10 ¹⁴ | 2.24×10 ¹⁴ |
| ^{131m} Xe | 3.92×10 ¹² | 1.21×10 ¹¹ | 4.00×10 ⁵ | |
| ¹³¹ I | 1.41×10 ¹³ | 8.03×10 ¹⁰ | 7.33×10 ² | |
| 受照燃料中的热能量 (W/t _燃) | | | | |
| 热 能 量 | 2.71×10 ⁴ | 2.01×10 ⁴ | 1.04×1 ⁴ | 1.06×10 ³ |

后处理工厂的操作原理是溶解燃料元件(有时在脱壳后进行溶解)并相继地提取铀、钚和各种裂变产物。易裂变材料经精制到反应堆的纯度后,再运往浓缩工厂或燃料加工制造厂以供再循环之用。裂变产物则加以浓缩、暂存,等待处置,因为这些物质在工业上还不能用作辐射源。

后处理厂所接受的烧过的燃料应先在反应堆场地贮存3~6个月,因此,大多数的短寿命裂变产物和活化产物,如¹³¹I、¹³³Xe、¹⁴⁰Ba—¹⁴⁰La和¹³²Te均已衰变到危害很低的程度。虽然如此,在燃料元件脱壳和溶解时,仍有大量余存的长寿命挥发性和气态裂变产物,特别

是 ^3H 、 ^{85}Kr 、 ^{103}Ru 和 ^{106}Ru 释放出来，需要高效率的装置从废气流中将这此核素收集下来。

核燃料后处理工厂的全部放射性均来自核电站烧过的燃料。表1-7给出美国每年烧过的燃料中的放射性核素的典型值。表中还给出处理能力在300~1500t/a的核燃料后处理厂所通过的放射性总量。燃料处理以后，所有的放射性核素基本上都将残留在后处理厂的高放废液贮槽中（较少量释出或衰变），直到将废物转化成固体形式并运往贮存设施为止。

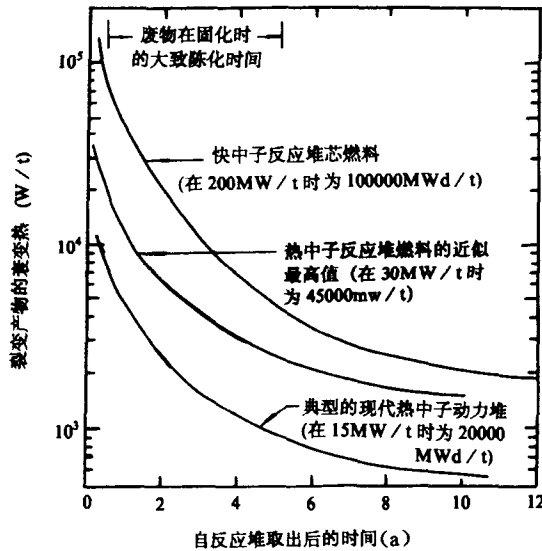


图1-1辐照过的燃料的含热量

表1-7 美国每年运往燃料后处理厂的放射性核素的估计值

| 核 素 | 燃料中的典型值① (Bq/t) | 累积的年运输入量(Bq) | |
|--------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| | | 300t/a | 1500t/a |
| 裂变产物 | 1.63×10^{17} | 4.88×10^{19} | 2.44×10^{20} |
| 铀系元素 | 4.81×10^{15} | 1.44×10^{18} | 7.22×10^{18} |
| ^{85}Kr | 4.07×10^{14} | 1.22×10^{17} | 6.11×10^{17} |
| ^3H | 2.59×10^{12} | 7.77×10^{15} | 4.07×10^{16} |
| ^{131}I ② | 8.14×10^{10} | 2.44×10^{13} | 1.22×10^{14} |
| ^{129}I | 1.37×10^9 | 4.07×10^{11} | 2.04×10^{12} |
| 总 计 | 1.67×10^{17} | 5.03×10^{19} | 2.52×10^{20} |

①压水堆燃料，其燃耗值为 $3.3 \times 10^4 \text{MWd/t}$ ，平均功率为30MW/t，衰变时间为150d。类似的沸水堆燃料的放射性量约为表中数值的三分之二。

② ^{131}I 半衰期为8d，其累积量为经150d衰变的燃料中的运出量。一年后， $8.14 \times 10^{10} \text{Bq/t}$ 将衰变至大约 $7.4 \times 10^2 \text{Bq/t}$ 。

表1—8分类给出了各核素的含有量,特别要注意的是表1—7和表1—8提供的锕系元素和在燃料存留量中占总放射性主要部分的 ^{144}Ce — ^{144}Pr 、 ^{106}Ru — ^{106}Rh 和 ^{95}Zr — ^{95}Nb 的数字不一致,是因为假定的燃耗有所不同。由于该厂的设计容量为1500t/a铀,所以该厂大约可以收集的 ^{85}Kr 为 $5.92 \times 10^{17}\text{Bq/a}$,并处理大约 $1.30 \times 10^{19}\text{Bq}$ 的超铀同位素及 $3.48 \times 10^{20}\text{Bq}$ 的混合裂变产物。与反应堆燃料相反,这些物质大多将以溶解的或挥发的形式存在于后处理循环中。出现在工厂排出物中的这些放射性物质即使只有0.01%,但其对人类健康的影响也足以使来自反应堆的排出物相形见绌。这就很清楚为什么必须要求后处理工厂的放射性废物处理系统应具有较好的操作性能和可靠程度。因此,这种处理系统应包括惰性气体的有效回收、除碘的多级沸石过滤器,以及去除最后废液中痕量污染物的离子交换系统和蒸发器。

二、高放废物

核燃料循环过程中积累的高放废物,其最终安全处置是核工业的一个重要问题。所谓高放废物指的是辐照过的反应堆核燃料后处理设备中,自第一循环溶剂萃取系统或相应系统操作中产生的含水废物,以及随后萃取循环或相应循环的浓缩废液。从本质上说这种废物含有全部不挥发性裂变产物、烧过的燃料中初始铀和钚的千分之几,以及反应堆中铀和钚转化生成的大部分其他锕系元素。它们的一般特征是贯穿辐射很强和发热率高。美国核管理委员会(USNRC)的规定中,要求这些废物产生后五年加以固化,并在产生废液后的十年内将合成的稳定性废物运往联邦政府的贮存库。表1—9列举了经过一年和五年贮存后废物中主要的裂变产物,其中有些是稳定的。

核燃料元件的燃料芯体溶解后留下的残余锆合金和不锈钢壳及构件,在某些方面与高放废物相似,其中的钚含量相当于乏燃料的千分之一,并有 $50 \sim 100\text{W/m}^3$ 的发热率,需要10~20cm厚的含铅生物屏蔽层来防护。考虑到这些废物的特征,不管在哪个后处理环节中都要尽可能避免加入会使以后废物运行管理特别困难的化学药品。

后处理工厂产生的高放废物的安全处置问题在技术上是完全能够解决的,但可能要花费相当长的时间。原因是:首先是其放射性活度大,发电功率为1000MW的反应堆,每年送往后处理废物的放射性活度约为 $4.44 \times 10^{12}\text{MBq}$,而被排出作为固化废物埋藏的废物约为 $7.40 \times 10^{12} \sim 1.48 \times 10^{13}\text{MBq}$ 。其次,要考虑轻水堆和液态金属快中子增殖堆燃料后处理积累废物量的规划增长额;例如美国1971年的计划见表1—10。由于核电站的延迟完工,实际的增长率可能较低,但该表说明了产生的废物体积和总放射性强度以及一些较重要核素的数量。需要注意的是,这里援引的废物体积并非特别大,但必须了解屏蔽的需求会使每次所能运输的固体废物量受到限制。钍的量也是值得重视的,因为它在处置方面会引起更多的问题。第三与放射性核素的半衰期有关。据表1—8可知,废物中的大多数裂变产物和活化产物都是短寿命的,其半衰期均小于1a(例如 ^{95}Zr — ^{95}Nb 、 ^{144}Ce — ^{144}Pr 、 ^{103}Ru 、 ^{91}Y 和 ^{89}Sr)。可将其以液态或固态贮存于地下槽或贮罐中达20~50a,使放射性衰减至较低水平。然而,尚有其它三类半衰期较长的核素,需要更长的处置期和安全的处置方式。这三类核素是:

1. 长寿命的核素(半衰期1~100a)

^{106}Ru (1a), ^{155}Eu (1.7a), ^{147}Pm (2.7a), ^{125}Sb (2.7a), ^{134}Cs (2.1a), ^{60}Co (5.3a), ^{85}Kr (10.4a), ^3H (12a), ^{90}Sr — ^{90}Y (28a), ^{137}Cs (30a)和 ^{151}Sm (90a)。

2. 超铀同位素

表1-8 乏燃料中放射性核素含量(4×10⁴MWd/t_燃;50MW/t_燃)

| 核素 | τ | Bq/t | 核素 | τ | Bq/t | 总计(Bq/t) |
|--------------------|-----------------------|-----------------------|--------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| ³ H | 12a | 1.81×10 ¹³ | | | | 1.81×10 ¹³ |
| 惰性气体 | | | | | | 4.16×10 ¹⁴ |
| ⁸⁵ Kr | 10.4a | 3.98×10 ¹⁴ | ^{131m} Xe | 12d | 1.11×10 ¹¹ | |
| 碘 | | | | | | 6.55×10 ¹⁰ |
| ¹²⁹ I | 1.6×10 ⁷ a | 1.48×10 ⁹ | ¹³¹ I | 8.05d | 6.40×10 ¹⁰ | |
| 其它裂变产物 | | | | | | 2.31×10 ¹⁷ |
| ⁸⁹ Sr | 50.4d | 3.45×10 ¹⁵ | ⁹⁰ Sr | 28a | 3.40×10 ¹⁵ | |
| ⁹⁰ Y | 64.2h | 3.37×10 ¹⁵ | ⁹¹ Y | 59d | 7.49×10 ¹⁵ | |
| ⁹⁵ Zr | 65d | 1.40×10 ¹⁶ | ^{95m} Nb | 90h | 2.79×10 ¹⁴ | |
| ⁹⁵ Nb | 35d | 2.64×10 ¹⁶ | ¹⁰³ Ru | 40d | 4.92×10 ¹⁵ | |
| ^{103m} Rh | 57min | 4.90×10 ¹⁵ | ¹⁰⁶ Ru | 1.0a | 2.83×10 ¹⁶ | |
| ¹⁰⁶ Rh | 30s | 2.83×10 ¹⁶ | ^{110m} Ag | 249d | 9.95×10 ¹³ | |
| ^{119m} Sn | 250d | 1.70×10 ¹⁴ | ^{123m} Sn | 136d | 1.22×10 ¹⁴ | |
| ¹²⁵ Sb | 2.7a | 3.50×10 ¹⁴ | ^{125m} Te | 58d | 1.05×10 ¹⁴ | |
| ^{127m} Te | 105d | 1.89×10 ¹⁴ | ¹²⁷ Te | 9.3h | 1.87×10 ¹⁴ | |
| ^{129m} Te | 33d | 2.40×10 ¹⁴ | ¹²⁹ Te | 67min | 2.41×10 ¹⁴ | |
| ¹³⁴ Cs | 2.1a | 7.51×10 ¹⁵ | ¹³⁶ Cs | 13d | 8.5×10 ¹¹ | |
| ¹³⁷ Cs | 30a | 4.92×10 ¹⁵ | ^{137m} Ba | 2.6min | 4.53×10 ¹⁵ | |
| ¹⁴⁰ Ba | 12.8d | 1.48×10 ¹³ | ¹⁴⁰ La | 40.2h | 1.70×10 ¹³ | |
| ¹⁴¹ Ce | 32.5d | 3.08×10 ¹⁵ | ¹⁴⁴ Ce | 285d | 3.90×10 ¹⁶ | |
| ¹⁴³ Pr | 13.7d | 2.60×10 ¹³ | ¹⁴⁴ Pr | 17.3min | 3.90×10 ¹⁶ | |
| ¹⁴⁷ Nd | 11.1d | 2.22×10 ¹² | ¹⁴⁷ Pm | 2.7a | 3.90×10 ¹⁵ | |
| ¹⁴⁸ Pm | 5.4d | 7.33×10 ¹² | ¹⁵¹ Sm | 90a | 1.30×10 ¹³ | |
| ¹⁵⁴ Eu | 16a | 3.73×10 ¹⁴ | ¹⁵⁵ Eu | 1.7a | 2.25×10 ¹⁴ | |
| ¹⁶⁰ Tb | 73d | 4.59×10 ¹² | | | | |
| 超铀同位素 | | | | | | 8.62×10 ¹⁶ |
| ²³⁸ Np | 2.1d | 2.59×10 ¹¹ | ²³⁸ Pu | 86a | 1.82×10 ¹³ | |
| ²³⁹ Pu | 2.4×10 ⁴ a | 1.25×10 ¹³ | ²⁴⁰ Pu | 6.6×10 ³ a | 2.50×10 ¹³ | |
| ²⁴¹ Pu | 13a | 6.48×10 ¹⁵ | ²⁴² Pu | 3.8×10 ⁵ a | 1.48×10 ¹¹ | |
| ²⁴¹ Am | 458a | 1.33×10 ¹³ | ²⁴² Am | 100a | 2.59×10 ¹¹ | |
| ²⁴² Cm | 162d | 1.71×10 ¹⁵ | ²⁴³ Cm | 35a | 1.30×10 ¹² | |
| ²⁴⁴ Cm | 18a | 2.10×10 ¹⁴ | | | | |