

^{237}Np , ^{238}Pu , ^{241}Am 和 ^{90}Sr
**在包气带黄土、含水层和
工程屏障材料中迁移规律研究**

李书绅 王志明 等著



原子能出版社

^{237}Np , ^{238}Pu , ^{241}Am 和 ^{90}Sr
在包气带黄土、含水层和工程
屏障材料中迁移规律研究

——含长寿命核素中低放废物近地表处置安全性评价
方法学研究

李书绅	王志明	李祯堂	赵英杰	郭择德	著
郭亮天	范智文	王金生	李明香	倪世伟	
安永锋	杨月娥	刘春立	武清华	独仲德	
顾志杰	冯声涛	史英霞	张红庆	程理	
王旭东	崔安熙				

原子能出版社

图书在版编目(CIP)数据

^{237}Np , ^{238}Pu , ^{241}Am 和 ^{90}Sr 在包气带黄土、含水层和工程屏障材料中迁移规律研究/李书绅 王志明等著. —北京:原子能出版社, 2005. 4

ISBN 7-5022-3410-1

I. 2… II. 李… III. ①铀同位素-地层-放射性核素迁移-规律-研究②裂变产物-地层-放射性核素迁移-规律-研究③铀同位素-屏蔽材料-放射性核素迁移-规律-研究④裂变产物-屏蔽材料-放射性核素迁移-规律-研究 IV. TL

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2005)第 040573 号

内 容 简 介

本书主要介绍了超铀核素 ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{241}Am , 裂变产物 ^{90}Sr 和稳定元素 Sr , Nd , Ce 在黄土包气带、含水层和工程屏障材料(膨润土、水泥、变质水泥、砂浆粉)中野外迁移试验、实验室模拟实验和数值模拟计算的方法和结果,还介绍了核素吸附特性实验、超铀核素形态研究、水泥固化体浸出试验和工程屏障材料性能研究的方法和结果。书中讨论了实验中发现的一些有趣的值得进一步研究的现象和问题。

本书可供从事核安全、辐射防护、核环境保护与放射性废物治理、特种废物处置、环境影响评价、放射性核素与污染物迁移规律的研究人员和高等院校有关专业师生使用,也可供某些非核专业人员、环境保护工作者及关心环保工作人员参阅。

^{237}Np , ^{238}Pu , ^{241}Am 和 ^{90}Sr 在包气带黄土、含水层和工程屏障材料中迁移规律研究

出版发行 原子能出版社(北京市海淀区阜成路 43 号 100037)

责任编辑 孙凤春

责任校对 冯莲凤

责任印制 丁怀兰 刘芳燕

印 刷 保定市印刷厂

经 销 全国新华书店

开 本 787 mm×1092 mm 1/16

字 数 668 千字

印 张 26.75

版 次 2005 年 4 月第 1 版 2005 年 5 月第 1 次印刷

书 号 ISBN 7-5022-3410-1

印 数 1—400

定 价 60.00 元

版权所有 侵权必究(如有缺页、倒装,请与出版社联系调换) 网址: <http://www.aep.com.cn>

作者简介



李书绅，男，研究员，1937年6月出生，1963年12月毕业于哈尔滨工业大学动力系实验核物理专业。享受国务院颁发的政府特殊津贴，部级中青年有突出贡献专家，山西省优秀专家，山西省劳动模范。多年从事放射性物质和一般污染物迁移规律和环境影响评价研究。获国家级科技进步奖2项，国防科学技术一等奖1项、三等奖1项，部级科技进步一等奖2项、二等奖4项、三等奖3项，发明专利1项。



王志明，男，研究员，1939年12月出生，1964年7月毕业于清华大学辐射防护专业。享受国务院颁发的政府特殊津贴，部级中青年有突出贡献专家。多年来一直从事污染物在地面水和地下水中迁移研究、环境影响评价以及放射性废物处置评价等工作。获国家级科技进步奖2项，国防科学技术一等奖1项、三等奖1项，部级科技进步一等奖2项、三等奖5项，发明专利1项。



李桢堂，男，研究员，1938年出生，1963年毕业于中南工学院化工专业。享受国务院颁发的政府特殊津贴。多年从事核废物处理处置和核素迁移研究工作。获国家级科技进步奖1项，国防科学技术一等奖1项，部级科技进步一等奖1项、三等奖6项，省级二等奖1项，发明专利1项。



赵英杰，男，研究员，1940年7月出生，1964年毕业于清华大学给水排水专业。享受国务院颁发的政府特殊津贴。主要从事放射性废水处理和污染物在水环境迁移研究。获国家级科技进步奖1项，国防科学技术一等奖1项、三等奖1项，省、部级科技进步二等奖3项、三等奖1项。



郭择德，男，研究员，1941年10月出生，1965年毕业于中国科学技术大学近代物理系原子核实验物理专业。享受国务院颁发的政府特殊津贴。主要从事核环境保护和放射性废物处置研究。获国家级科技进步奖2项，国防科学技术一等奖1项，省部级科技进步奖7项。



郭亮天，男，研究员，1942年2月出生，1968年毕业于北京大学放射化学专业。主要从事放射性三废处理处置的科研开发工作。获国防科学技术一等奖1项，部级科技进步三等奖2项。



范智文，男，助理研究员，1967年8月出生，1989年毕业于成都科技大学（现四川大学）化学工程系化学工程专业，工学学士。主要从事放射性核素迁移、工程屏障性能研究、高放废物地质处置安全评价、放射性废物管理政策及法规等研究工作。获国防科学技术一等奖1项。



王金生，男，1957年3月出生，工学博士，北京师范大学环境学院教授，博士生导师。长期从事环境中污染物运移试验与数值模拟研究。获国家级科技进步奖1项，国防科学技术一等奖1项、三等奖1项，省部级科技进步二等奖1项。



李明香，女，研究员，1944年出生，1968年毕业于北京农业机械学院农田水利专业。多年来主要从事环境影响评价和非饱和土壤水的研究工作。获国家级科技进步奖1项，国防科学技术一等奖1项，部级科技进步一等奖1项、二等奖2项。



倪世伟，男，研究员，1939年出生，1965年毕业于兰州大学原子核物理专业。主要从事水环境科学实验研究。获国家级科技进步奖1项，国防科学技术一等奖1项，部级科技进步二等奖1项、三等奖1项。



安永锋，女，研究员，1958年1月出生，1982年毕业于山西大学物理系固体物理专业。主要从事科研管理与辐射防护、核环境技术和计算机应用研究。获部级科技进步奖1项，国家科委颁发的全国技术市场金桥奖2项。

前言

对于高水平放射性废物和含有 α 放射性核素的中低水平放射性废物来说,超铀核素(主要 Np, Pu, Am)因其半衰期长、毒性大一直是废物地质处置和近地表处置安全性评价考虑的重要对象。超铀核素在处置库近场的迁移行为及其可能向陆圈和生物圈的迁移引起人们的极大关注。放射性核素的迁移主要是由地下水运移引起的。如果地下水进入处置库,在包装容器被腐蚀破损后,核素将从废物体中被浸出,经工程屏障进入地质介质(天然屏障)。在随地下水迁移过程中;它与多种介质发生各种物理化学作用。核素的迁移行为不仅与自身的物理化学形态密切相关,而且也与使其形态发生复杂变化的环境条件密切相关。20 世纪七八十年代以来,国内外对超铀核素的地球化学行为开展了大量的研究工作。这些研究主要有三个方面内容:(1)超铀核素在水溶液中的化学形态研究,包括氧化态、溶解度、胶体行为和络合行为研究;(2)超铀核素与各种介质的相互作用及其迁移研究,包括核素浸出行为、核素与人工屏障材料的相互作用及其迁移行为、核素与地质介质的相互作用及其迁移行为研究;(3)超铀核素的地球化学行为模式化研究。关于超铀核素在地质介质中的迁移行为,有关花岗岩介质研究最多,有关凝灰岩、沉积物和处置库上覆盖土壤等研究次之。关于超铀核素在黄土包气带和饱水带(含水层)中迁移的野外试验研究甚少,数据十分缺乏。因此,中国辐射防护研究院与日本原子力研究所在 1995 年 8 月至 2001 年 8 月期间合作(第二期)开展了超铀核素近地表迁移行为及其废物处置安全性评价方法学研究项目。该研究项目包括 15 个方面的内容:(1)废物近地表处置安全评价方法开发;(2)试验场址特性调查;(3)试验场区水分运移规律研究;(4)核素在含水层中迁移的地下研究设施(URF)设计与建造;(5)示踪源制备与示踪剂样品分析方法建立;(6)核素吸附特征研究;(7)含水层野外示踪试验;(8)包气带野外示踪试验;(9)含水层迁移模拟实验;(10)包气带迁移模拟实验;(11)包气带条件下核素在工程屏障材料(膨润土、水泥、变质水泥、砂浆粉)中迁移野外试验;(12)工程屏障材料性能实验研究;(13)超铀核素(TRU)化学形态研究;(14)评价模式与程序开发验证;(15)项目全过程质保体系与安全管理。本研究项目选用的示踪剂除超铀核素 ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{241}Am 外,还有裂变产物 ^{90}Sr 和稳定元素 Sr, Nd, Ce。

全书共 13 章。第 1 章在简要叙述前人研究工作的基础上,介绍了本研究工作的目的、意义,主要工作内容与技术路线,主要成果及整体方案设计中考虑的一些主要问题。第 2 章主要介绍了试验区地质特征和水分运移规律。第 3 章介绍了核素(^{237}Np , ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{90}Sr 和 Sr, Nd, Ce, 下同)在天然和喷淋降水两种条件下,在黄土包气带中迁移野外试验的方法和结果,以及分别以黄土和石英砂为示踪源层载体的核素迁移对比试验的方法和结果。第 4 章介绍了双层孔隙介质产生屏流效应的条件及其对非饱和水流入渗的影响。第 5 章主要介绍的内容有:(1)地下研究设施设计原则,考虑的主要问题和采用的技术手段;(2)核素在饱水组件中迁移试验的方法和结果;(3)核素在未扰动含水层中迁移试验的方法与结果;(4) ^3H 和 Br 单独和混合迁移试验结果。证实了在相同条件下,Br 比 ^3H 迁移速度略快些;(5)腐殖酸对 TRU 在含水层中迁移影响的试验方法与结果。第 6 章主要介绍了喷淋条件下,核素在包气带黄土中迁移模

拟实验方法和结果,以及水分在土柱中运移速度和分布状况的测量方法。第7章主要介绍了核素在含水层中迁移模拟试验的方法和结果。第8章主要介绍核素在黄土包气带条件下,在工程屏障材料(中国膨润土、日本膨润土、中国普通水泥、变质水泥和砂浆粉)中迁移野外试验的方法和结果。观察到在本试验条件下,核素在变质水泥和普通水泥中迁移规律基本一致,水泥砂浆粉对核素吸附能力很强。第9章介绍了核素在水泥固体中的浸出试验、TRU在混凝土和膨润土中扩散系数与分配系数的测量,以及膨润土渗透特性实验方法与结果。第10章主要介绍了用静态法、动态法和循环柱法研究核素吸附特性的方法和结果,环境因素对核素迁移特性的影响和几种实验材料器壁对Np的吸附特性。第11章主要介绍了利用地球化学模式EQ3/6计算Np和Pu在地下水和工程屏障平衡水中的形态,Np和Pu在地下水中的价态和胶体形态对核素迁移行为影响的研究结果。第12章主要介绍了核素迁移的二维剖面与二维平面耦合模式,⁸⁵Sr迁移的双峰分布模式,核素迁移的解析模式和包气带滞留与各向异性水流数值模式,给出了试验场地下水场模拟、核素在包气带中迁移、在含水层组件及未扰动含水层中迁移试验的计算机模拟结果。第13章总结了本研究工作的特点,讨论了屏流效应、水泥固化体非饱和浸出、变质水泥与非饱和流场等问题。指出评价含长寿命放射性核素废物处置安全性应注意的几个问题。

本书各章主要撰写人员如下:第1章,李书绅;第2章,李明香、独仲德、顾志杰、周洪贵;第3章,赵英杰、李书绅、武清华、郭志明;第4章,李明香、王志明、姚来根、江洪;第5章,王志明、杨月娥、刘春立、赵英杰、姜凌;第6章,倪世伟、韩新生、姚来根;第7章,郭择德、邓安、程金茹、杨端节;第8章,范智文、冯声涛、谷存礼、安永锋;第9章,李桢堂、程理、冯声涛、崔安熙;第10章,李桢堂、张红庆、王旭东;第11章,郭亮天、史英霞、张红庆、王旭东;第12章,王金生、李书绅;第13章,李书绅。全书由李书绅、王志明统稿。本书由潘自强院士主审,参加各章审稿的还有:赵亚民、张永兴、陈家军、胡逢全、毛焕章和陈式。李德平院士对中日合作研究与本书撰写给予很多具体指导。宋建新处长在工作岗位变动前,作为本研究工作总项目负责人之一,做过大量科研、组织与协调工作。本研究成果的取得与中国辐射防护研究院项目组人员的辛勤工作是分不开的,与总项目技术顾问:李德平、潘自强、林学钰、陈竹舟、胡逢全、叶敏坤、张永兴、陈式、马明燮、李宽良、赵凤民、赵亚民的认真指导是分不开的,与日本原子力研究所的辻野毅、川上泰、藤根幸雄、村冈进、小川弘道、田中忠夫、向井雅之、马场恒孝、前田敏之、松本润子、香西直文等的大力合作分不开的。也与中国原子能科学研究院、成都理工大学、北京交通大学、长春科技大学、华东地质学院、北京师范大学、北京大学、中科院生态环境研究中心和兰州大学的密切合作是分不开的。彭影、黄庆春、朱久法、郝建中和出版社有关人员为本书出版做了大量工作。在此,作者对以上单位领导与专家、对支持关心过本书出版与合作研究的单位与个人、对国内外合作单位的领导与专家、对中国辐射防护研究院各级领导及相关人员表示衷心的感谢。

作者

2004年8月

于中国辐射防护研究院

目 录

第 1 章 绪论	1
1.1 研究的目的是与意义	1
1.1.1 近地表处置废物评价方法学完整性的要求	1
1.1.2 长寿命放射性核素安全评价的特殊性	1
1.1.3 国内外缺乏超铀核素迁移试验数据	2
1.2 研究内容与技术路线	3
1.2.1 研究内容	4
1.2.2 技术路线	7
1.3 试验方案设计考虑的主要问题	7
1.3.1 确定野外试验的尺度和降水条件	8
1.3.2 解决试验中的技术难点	8
1.3.3 搞好质量保证	9
1.3.4 确保辐射安全措施	11
1.4 主要研究成果	11
1.4.1 主要成果	11
1.4.2 主要试(实)验结果	11
1.4.3 主要创新	16
1.4.4 研究工作中的一些新发现	17
参考文献	17
第 2 章 试验场区的水分运移	20
2.1 引言	20
2.2 试验场自然地理及水、土和气象特征概述	20
2.2.1 试验场地理位置及地形地貌特征	20
2.2.2 试验场气象特征	21
2.2.3 试验场土壤特征	21
2.2.4 地下水化学成分	22
2.3 地下水的运动	23
2.3.1 地层	23
2.3.2 试验场水文地质特征	24
2.3.3 地下水水位	24
2.3.4 含水层渗透系数	28
2.4 黄土非饱和带水分运移现场研究	30
2.4.1 非饱和带水分运移特点	30
2.4.2 强交替带水分运移现场观测与研究	30

2.5	试验场区蒸发量计算	36
2.5.1	现场气象要素观测	36
2.5.2	现场土壤蒸发量计算与结果	37
2.6	土壤水特征曲线的实验室测量	43
2.6.1	压力仪法测定土壤水特征曲线的原理与方法	43
2.6.2	土壤水特征曲线的测量步骤	44
2.6.3	实验结果	44
2.6.4	结果与讨论	47
	参考文献	49
第3章	超铀核素在包气带黄土中迁移的野外试验	51
3.1	引言	51
3.2	现场试验总体设计以及试验技术与过程	52
3.2.1	试验总体设计	52
3.2.2	试验技术与过程	52
3.2.3	人工喷淋装置与模拟降雨	55
3.2.4	室内蒸发量的测量	55
3.2.5	土芯取样	56
3.2.6	样品测量	60
3.2.7	试验坑污染土壤清除与处置	61
3.3	核素垂向与侧向迁移试验结果	63
3.3.1	垂向迁移	63
3.3.2	侧向迁移	69
3.4	包气带中核素迁移对比试验	71
3.4.1	试验目的	71
3.4.2	试验方案	71
3.4.3	试验过程	71
3.4.4	试验结果与讨论	72
3.5	试验坑水流入渗示踪观测与对比试验	75
3.5.1	人工喷淋试验坑水流入渗观测	75
3.5.2	水分入渗对比试验观测	76
3.5.3	天然条件下试验坑水分运移示踪观测	82
3.6	结论与讨论	83
3.6.1	试验方法与技术	83
3.6.2	试验结果	84
	参考文献	87
第4章	双介质结构的屏流效应	88
4.1	引言	88
4.2	现场试验研究	88
4.2.1	试验与观测	88

4.2.2	试验结果分析	90
4.2.3	渗流量计算结果与分析	95
4.3	实验室实验研究	101
4.3.1	定性实验	101
4.3.2	定量实验	106
4.4	主要结论	109
	参考文献	110
第5章	核素在含水层迁移的现场示踪试验研究	111
5.1	引言	111
5.2	地下研究设施(URF)	113
5.2.1	设计与建造前的工作	113
5.2.2	设计	119
5.2.3	施工中的保护措施	122
5.2.4	URF 建造过程中的测试	123
5.2.5	URF 运行过程中的测试工作	124
5.3	示踪剂在水平土柱中的迁移试验(Type I)	125
5.3.1	水平土柱	125
5.3.2	未扰动土壤样品的采集	126
5.3.3	土柱内土壤参数测量	127
5.3.4	预试验	128
5.3.5	示踪剂迁移试验	129
5.3.6	试验结果	133
5.3.7	观察到的一些现象	135
5.3.8	试验结果的分析与讨论	136
5.4	放射性示踪剂在未扰动含水介质中的迁移试验(Type II)	141
5.4.1	框架	141
5.4.2	框架插入和提取预试验	141
5.4.3	试验	143
5.4.4	试验结果及数据处理	147
5.4.5	结论与讨论	151
5.5	稳定示踪元素在未扰动含水层介质中的迁移试验(Type III)	153
5.5.1	试验布局	153
5.5.2	水样的采集	153
5.5.3	土壤样品的采集	154
5.5.4	试验结果	154
5.5.5	试验结果的分析与讨论	155
5.6	^3H 和 Br 在含水层介质中的混合迁移试验	158
5.6.1	试验装置	158
5.6.2	试验内容	159

5.6.3 试验	160
5.6.4 渗透系数 K 的测定	160
5.6.5 试验结果	161
5.6.6 结果的分析与讨论	163
参考文献	165
第 6 章 包气带中核素迁移模拟实验	166
6.1 引言	166
6.2 包气带中核素迁移模拟实验技术	166
6.2.1 模拟实验土柱	168
6.2.2 人工喷淋	170
6.2.3 核素迁移(分布)实验测量方法	171
6.2.4 流场参数直接测量方法的可行性试验	173
6.2.5 土柱“芯吸管”芯吸效应的有效性检验	174
6.3 实验过程	175
6.3.1 土柱模拟实验装置建立	175
6.3.2 试验土柱稳定流场参数测定	175
6.3.3 土柱稳定流场的建立	178
6.3.4 示踪源层铺放	178
6.3.5 土柱解体取样操作过程	179
6.4 示踪剂迁移结果	184
6.4.1 ^{237}Np 分布的直接测量	184
6.4.2 取样测量结果	184
6.4.3 实验结果拟合	187
6.4.4 关于示踪核素 Sr 在包气带模拟实验土柱中的迁移速度	189
6.5 讨论	190
6.5.1 讨论	190
6.5.2 对今后实验方法改进意见的设想	191
参考文献	192
第 7 章 含水层中核素迁移模拟试验	193
7.1 实验	193
7.1.1 实验箱和实验土柱	193
7.1.2 供水系统	193
7.1.3 示踪源层	194
7.1.4 切割取样	195
7.1.5 样品分析	196
7.2 流场参数	197
7.2.1 流量	197
7.2.2 土壤参数	198
7.2.3 $4^\#$ 箱土柱内水势测量	199

7.3	放射性核素实验结果	201
7.3.1	纵向中心线上的浓度分布	201
7.3.2	径向上的浓度分布	202
7.4	稳定元素实验结果	203
7.4.1	纵向中心线上的浓度分布	203
7.4.2	径向上的浓度分布	205
7.5	实验结果拟合	206
7.5.1	假设、方程和参数	206
7.5.2	拟合结果	207
7.6	结论与讨论	210
7.6.1	结论	211
7.6.2	问题与讨论	212
	参考文献	213
第8章	核素在工程屏障材料中的现场迁移试验	214
8.1	引言	214
8.2	工程屏障材料研究现状及研究方法分析	214
8.3	现场包气层试验简述	217
8.4	核素在膨润土材料中迁移的现场试验	217
8.4.1	试验材料及其表征	217
8.4.2	试块制备	219
8.4.3	示踪源层制备与试块埋设	219
8.4.4	取样、切割和分析	220
8.4.5	试验结果与讨论	221
8.4.6	结论	225
8.5	现场包气带条件下核素在水泥材料、水泥砂浆粉中以及土壤中的迁移研究	225
8.5.1	试验内容	225
8.5.2	试验布置与示踪剂用量	227
8.5.3	取样与测量	228
8.5.4	试验结果与讨论	228
8.5.5	结论	234
8.6	建议	235
	参考文献	235
第9章	工程屏障材料性能的实验室研究	238
9.1	工程屏障材料性能研究概况	238
9.2	含 Sr, Nd, Ce 和含 ^{237}Np , ^{238}Pu 低中放废物水泥固化体浸出研究	239
9.2.1	实验内容	239
9.2.2	实验结果与讨论	246
9.2.3	结论	246

9.3 超铀核素在混凝土中的扩散规律研究	246
9.3.1 实验部分	247
9.3.2 结论	255
9.4 膨润土回填材料的屏障性能研究	255
9.4.1 研究内容	255
9.4.2 渗透试验	256
9.4.3 分配系数测量	260
9.4.4 Np 在中国膨润土中的扩散研究	263
9.4.5 讨论	266
参考文献	267
第 10 章 超铀核素吸附特性研究	268
10.1 超铀核素迁移研究动向	268
10.2 超铀核素 ²³⁷ Np, ²³⁸ Pu 的静态吸附	270
10.2.1 实验准备	270
10.2.2 实验内容及方法	271
10.2.3 ²³⁸ Pu 的实验结果与讨论	273
10.2.4 ²³⁷ Np 的实验结果与讨论	276
10.2.5 结论	280
10.3 超铀核素 ²³⁷ Np, ²³⁸ Pu 的动态迁移	280
10.3.1 实验	281
10.3.2 实验结果与讨论	285
10.3.3 结论	293
10.4 碳酸盐和有机质对 ²³⁷ Np 和 ²⁴¹ Am 吸附的影响	294
10.4.1 实验	294
10.4.2 实验结果与讨论	297
10.4.3 结论	303
10.5 ²³⁷ Np 在实验容器器壁上的吸附	304
10.5.1 实验材料及设备	304
10.5.2 实验方法	304
10.5.3 实验结果与讨论	305
10.5.4 结论	307
10.6 黄土粒径和地下水中[Na ⁺]对 ²³⁷ Np 的吸附影响	307
10.6.1 实验	307
10.6.2 实验结果与讨论	309
10.7 稳定元素 Ce(Ⅲ), Nd(Ⅲ)在黄土上的吸附	310
10.7.1 实验	310
10.7.2 实验结果与讨论	311
10.8 ³ H, Br 在原状黄土柱上的迁移比较	313
10.8.1 实验	314

10.8.2	实验结果	314
10.8.3	讨论	316
10.9	超铀核素 ²³⁷ Np 的循环柱吸附	317
10.9.1	循环柱实验装置的设计	317
10.9.2	实验	318
10.9.3	实验结果与讨论	320
10.9.4	结论	324
	参考文献	325
第 11 章	超铀核素化学形态研究	329
11.1	Np, Pu 在地下水和工程屏障平衡水中的形态计算研究	329
11.1.1	地球化学模式	329
11.1.2	地下水及工程屏障平衡水的制备和分析	331
11.1.3	Np, Pu 的形态计算研究	333
11.1.4	结论	337
11.2	Np, Pu 在地下水中的价态	337
11.2.1	各种价态的稳定性	337
11.2.2	地下水中 Np, Pu 价态分析	338
11.2.3	结论	340
11.3	胶体的形成及对核素迁移的影响	340
11.3.1	文献综述	340
11.3.2	试验现场地下水中的天然胶体	343
11.3.3	Np, Pu 在现场地下水及载体胶体溶液中的胶体行为	345
11.3.4	胶体存在对核素在黄土上吸附行为的影响	347
11.3.5	结论	349
11.4	超铀元素络合行为及其对迁移的影响	350
11.4.1	文献综述	350
11.4.2	腐殖酸与超铀元素的络合及其对迁移的影响实验研究	352
11.4.3	实验总结	356
11.5	吸附在黄土中的 ²³⁷ Np 的形态研究	356
11.5.1	实验	356
11.5.2	实验结果与讨论	358
11.5.3	结论	360
11.6	现场核素迁移试验砂源中核素的形态及其淋洗研究	360
11.6.1	实验概述	360
11.6.2	实验结果与讨论	361
11.6.3	结论	363
	参考文献	363
第 12 章	核素在地质介质中迁移的数值模拟	368
12.1	核素在地质介质中迁移模式的研究进展	368

12.1.1	源项模式	368
12.1.2	地下水模式	369
12.1.3	地表水模式	369
12.1.4	剂量模式	370
12.1.5	综合模式	370
12.2	地下水流动与核素迁移模式	371
12.2.1	地下水非饱和带与饱和带中的流动数学模式	371
12.2.2	核素在非饱和带与饱和带中迁移的数学模式	373
12.3	地下水流动与核素迁移野外试验数值模拟	375
12.3.1	试验场地下水流场模拟	375
12.3.2	核素在包气带中迁移模拟	379
12.3.3	核素在含水层水平土柱中的迁移模拟	384
12.3.4	核素在含水层框架中迁移试验模拟	394
12.4	主要结论	400
	参考文献	401
第 13 章	结束语	404
13.1	研究工作特点	404
13.2	几个问题的讨论	405
13.2.1	屏流效应问题	405
13.2.2	水泥固化体非饱和浸出问题	407
13.2.3	变质水泥问题	410
13.2.4	非饱和流场问题	410
13.3	评价含长寿命放射性核素废物处置安全性应注意的几个问题	412
13.3.1	保护后代	412
13.3.2	关键组	413
13.3.3	防护最优化的几个问题	413
13.3.4	对长时期辐射的评价问题	414
	参考文献	415

第 1 章 绪 论

1.1 研究的目的与意义

中国辐射防护研究院与日本原子力研究所在 1988 年 1 月至 1993 年 1 月合作完成了中低放废物(以 ^{60}Co , ^{90}Sr 和 ^{137}Cs 为代表性核素)近地表处置安全评价方法学研究。为什么又在 1995 年 8 月至 2001 年 8 月合作开展超铀核素(以 ^{237}Np , ^{239}Pu , ^{241}Am 为代表性核素)近地表迁移行为及含其废物的近地表处置方法学研究呢?这首先是因为近地表处置废物安全性评价方法学完整性的要求;其次是长寿命放射性核素安全性评价中特殊性的要求;第三是因为国内外缺乏超铀核素等长寿命放射性核素的野外试验和模拟实验数据。另外,为我国高放废物处置的安全性评价方法学提供借鉴和做一些技术积累也是目的之一。

1.1.1 近地表处置废物评价方法学完整性的要求

国际上在过去几十年里为固体废物处置曾提出过一些方案。1972 年《伦敦公约》禁止在海洋处置固体放射性废物后,目前只有两种通用的处置方法——近地表处置与地质处置。近地表处置是一种用于处置含短寿命放射性核素(它们可能经过几百年衰变到对健康危害微不足道的水平)的放射性废物的方法。含有可接受的低浓度长寿命放射性核素的废物也可在近地表处置库处置。近地表处置库有两种主要类型:(1)近地表处置库,由位于原始地表上或地表下的处置单元组成,废物之上的覆盖层厚度一般为几米到十几米;(2)岩洞或钻孔处置库,废物处置于较大深度的岩石洞穴或钻孔中,废物上的岩层厚度可到几十米。对这些处置设施进行安全性评价,把废物类型与处置方案相匹配,包括与不同处置设施相关的一般人类闯入情景,是被普遍接受的方法^[1]。1994 年 IAEA 在按废物处置要求提出的体系中,将固体废物分为四类,即高放废物、长寿命中低放废物(其中包括 α 废物)、短寿命中低放废物(我国称为中低放废物)和免管废物(也就是非放射性废物)。明确提出短寿命中低放废物中的长寿命放射性核素比活度要有上限值,其中长寿命 α 核素在单个废物包中的限值为 4 000 Bq/g,总平均值为 400 Bq/g^[2]。不同国家或国际组织对放射性废物的分类方法及其近地表处置废物中的核素限值是不完全相同的^[3]。我国在中低放废物近地表处置规定中,对长寿命放射性核素比活度上限值也做了规定^[4],对非 α 核素如 ^{14}C 为 1.8×10^8 Bq/kg, ^{63}Ni 为 1.6×10^{10} Bq/kg, ^{99}Tc 为 7×10^7 Bq/kg 等,对半衰期大于 30 年的 α 放射性核素其比活度上限值为 4×10^6 Bq/kg,其中 ^{241}Pu 为 1.3×10^8 Bq/kg, ^{242}Cm 为 7.4×10^8 Bq/kg。由此可见,中低放废物近地表处置安全评价方法学若不包括对长寿命放射性核素的评价是不完整的。

1.1.2 长寿命放射性核素安全评价的特殊性^[5~7]

一般来说,大多数长寿命放射性核素的毒性大、半衰期大,任何暂存设施都无法把它们永

久地控制到无害化的程度。如果废物处置安全评价只考虑短寿命放射性核素而忽略长寿命放射性核素对剂量的贡献,可能会低估几百年后处置造成的集体剂量负担或截尾剂量负担。但是,如果不考虑下面两种情况,也会不合理地夸大长寿命放射性核素对环境的影响:(1)在测算某一时间(或一年的排放量)的剂量负担时,通常将公众中个人受照的微小剂量率对无限长的时间进行积分,它近似等于其初始剂量率与放射性核素在库室中的平均寿命 $\bar{T}$ 的乘积。对于短寿命放射性核素,可以直接采用物理半衰期 $T_{1/2}$ 来近似。对于长寿命放射性核素来说,因半衰期长,假如不考虑放射性核素在生物圈各库室中的迁移、转移、吸附、相互交换和生化作用的耗减,而只采用物理半衰期来近似,算出来的剂量负担值会很大,这样就不合理地夸大了其对环境的影响。(2)影响放射性核素向生物圈各库转移途径的潜在因素,有些与工程地质有关,有些与人类活动(如地质钻探、采矿、工程地质和人为闯入等)有关,有些则与地质状况(如底层断裂、地陷、热效应、地下水流场、腐蚀和冰蚀等)有关。如果不考虑这些因素及长寿命核素在模型中各库室间的转移参数,也会夸大长寿命放射性核素对环境的影响。

对于采用“浓集与滞留”方法处置含长寿命放射性核素废物的战略,其相关成员的主要放射防护问题,是潜在照射。潜在照射是一种有关在遥远的未来可能发生或者可能不发生的照射。评价长寿命固体放射性废物处置系统的可接受性的一个主要问题是,在遥远的未来照射产生的剂量或危险。由于对未来情况缺乏足够的认识,对这些剂量或危险的估算伴随有不确定性。评价一个废物处置系统的放射防护可接受性,核心方法是有约束的最优化;使用剂量或危险约束,而不是使用剂量或危险限值。天然过程和人的入侵是必须考虑的两种主要照射类型。这两种照射类型适用的放射防护原则是不同的。“天然过程”这一术语包含除人的入侵之外的导致个人受到照射的所有过程。核心准则是个人对源相关的约束。对于正常照射情况下,公众成员剂量约束的上限值为每年 0.3 mSv 。该值相应的危险约束为每年 10^{-5} 量级。关于“人的入侵”,这里仅考虑无意识的入侵。未来社会可能在不知情的情况下受到因入侵导致的照射,因此,在开发处置系统时,应该考虑任何需要的防护行动。入侵可能对未来个人产生急性或持续剂量。若人员入侵对生活在场址附近的个体产生的剂量预期足够高,按现在的准则判断采取干预几乎总是正当的话,则应当采取合理的努力来减少入侵概率或设法限制其后果。现有年剂量约 10 mSv 与 100 mSv ,可以作为一般考虑水平,低于 10 mSv ,干预不大可能是正当的,高于 100 mSv ,干预被认为几乎总是正当的。评价约束是否得到了遵守,可以采用危险约束的总危险评价方法,也可以采用剂量约束的分计剂量/概率方法,或两者的结合。论证放射防护准则是否得到遵守,不是简单地把计算出的剂量或危险与相应的约束值直接进行比较,而是需要某种程序的判断。对于一个放射性废物处置系统,既不能因计算出的结果逾越了约束就强行拒绝,也不能仅靠数值上的一致就被接受。对遥远未来时期来说,剂量和危险约束更多的应视为是一种参考水平。

1.1.3 国内外缺乏超铀核素迁移试验数据

中低放废物处置虽然是一项具有特色的安全系统工程,但在 20 世纪五六十年代,放射性废物的处理基本上只是放射化学工艺学中的一个分支,而中低放废物处置仅处于早期实践阶段,到 70 年代以后才发展成放射性废物处置学。70 年代以来,主要有四件事推动了放射性废物处置学的形成和发展^[8~11]。第一是 1972 年在斯德哥尔摩召开的联合国人类环境会议,唤醒了人们对环境问题和环境科学的普遍关注和重视。有关国家在放射性废物地下处置,处置