

# 中国高放废物深地质处置的缓冲材料 选择及其基本性能

温志坚

(核工业北京地质研究院, 北京 100029)

**摘要:** 人类的许多生产、生活活动均可能产生不同活度的放射性废物, 其中高放废物的安全处置倍受全球科学家和广大公众所重视。目前深地质处置被国际上公认为处置高放废物的最有效可行的方法。借鉴国外成熟的技术和经验, 我国采用多重工程屏障系统(包括废物固化体、废物容器及其外包装和缓冲/回填材料)和适宜的围岩地质体共同作用, 来确保高放废物与生物圈的安全隔离。膨润土由于具有极低的渗透性和优良的核素吸附等性能而被国际上选作缓冲材料的基础材料。经过全国膨润土矿床筛选, 我国高放废物深地质处置库缓冲材料的研究以产自高庙子膨润土矿床深部的钠基膨润土作为基本组成材料。本文介绍了高庙子膨润土矿床的地质特征以及高庙子钠基膨润土的基本特征。该膨润土与国外同类型材料相比具有蒙脱石含量高(75%左右)、杂质矿物相对较少的特点, 该材料的系统和深入研究对于开发我国缓冲回填材料技术、确保高放废物的安全有效处置有重要意义。

**关键词:** 高庙子钠基膨润土; 缓冲材料; 基本性能; 核废物处置

中图分类号: P579; P578.967; X705

文献标识码: A

文章编号: 1000-6524(2005)06-0583-04

## Selection and basic properties of China's buffer materials for high level radioactive waste repository

WEN Zhi-jian

(Beijing Research Institute of Uranium Geology, Beijing 100029, China)

**Abstract:** Radioactive wastes arising from a wide range of human activities are in many different physical and chemical forms, contaminated with varying radioactivity. Their common feature is the potential hazard associated with their radioactivity, and their disposal is of vital importance to the protection of human environment. The geological disposal is commonly regarded in the world as the most reasonable and effective way to the safe disposal of high-level radioactive wastes. The conceptual model of geological disposal in China is based on a multi-barrier system that combines an isolated geological environment with an engineered barrier system. The buffer is one of the main engineered barriers for HLW repository. The buffer material is expected to maintain its low water permeability, self-sealing property, radio nuclides adsorption and retardation property, thermal conductivity, chemical buffering property, overpack supporting property, and stress buffering property over a long period of time. Benotite is selected as the main content of the buffer material that can satisfy the above requirements. GMZ deposit is selected as the candidate supplier for Chinese buffer materials of high level radioactive waste repository. This paper presents geological features of GMZ deposit and basic property of GMZ Na bentonite. GMZ bentonite deposit is a superlarge scale deposit with a high content of montmorillonite (about 75%), and GMZ\_1, which is Na bentonite produced from GMZ deposit, is selected as a reference material for Chinese buffer material study.

**Key words:** GMZ Na bentonite; buffer material; basic property; nuclear waste disposal.

### 1 高放废物处置库概念模型

高放废物的特点为放射性水平高, 发热量大, 并含有对生

物极有害的 $\alpha$ 放射性的长寿命核素。深地质处置目前被国际公认为处置高放废物的有效方法, 其目标是将减容和稳定处理后并密封在合适容器里的高放废物放入与生物圈有足够距离的稳定安全场所中的设施里, 封闭隔离, 并在相当长的时

收稿日期: 2005-06-21

作者简介: 温志坚(1968-), 男, 博士, 高级工程师, 主要从事核废物处置与环境治理, E-mail: wenzhijian@hotmail.com.

期内阻止有害核素向生物圈迁移,使将来可能产生的核素泄漏和迁移引起的照射剂量不超过国家法律、法规规定的剂量限值。中国高放废物地质处置库概念模型是一个多重屏障系

统,从里往外依次为废物固化体、废物容器及其外包装、缓冲/回填材料和处置库围岩,前三者为人工屏障,后者为天然屏障(图1)。

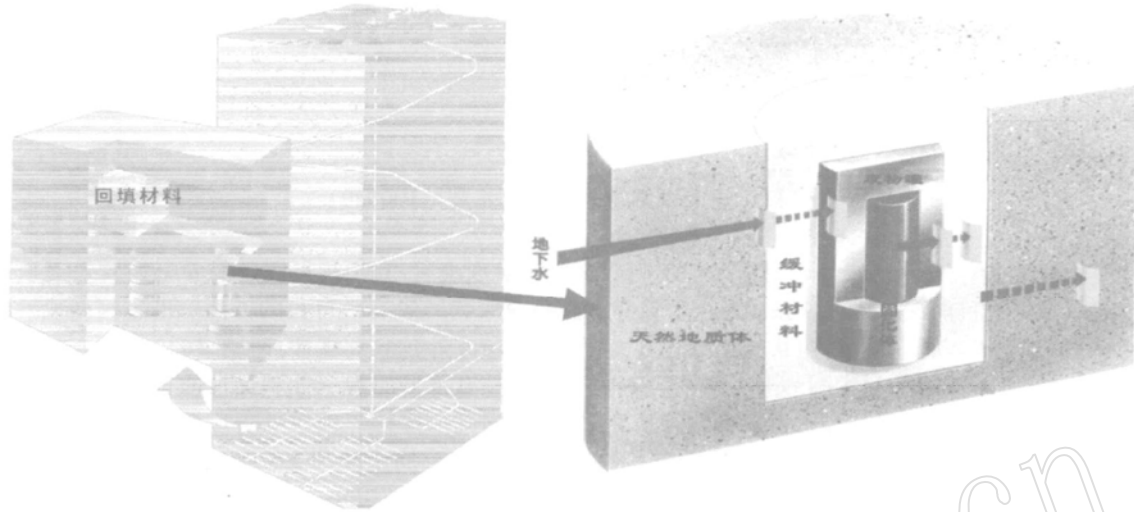


图1 中国高放废物处置概念模型

Fig. 1 A conceptual model for China's high radioactive waste disposal

## 2 缓冲/回填材料的作用

缓冲/回填材料是最后一道人工屏障,因此其材料的选择和工程特性对于整个高放废物处置系统显得非常重要。缓冲/回填材料作为高放废物处置库中的工程阻挡层,填充在废物容器和围岩之间,其作用为:①工程屏障作用:缓冲围岩压力对废物罐的影响,保持废物罐处于处置孔中心,维护处置库结构的稳定性;②水力学屏障作用:充填废物容器与围岩间的孔隙和近场岩石中的裂隙或孔隙,阻止地下水(可能含有腐蚀物质)流到废物罐表面;③化学屏障作用:阻滞核素迁移(处置库设计有一个重要前提:避免氧化侵蚀,因为氧化环境下腐蚀过程会加速,废物溶解度会增加),阻止氧化剂到达废物罐表面。废物罐被穿透和其内衬被腐蚀必须有水通过裂口加入,同时缓冲材料阻止放射性气体和水溶化合物渗漏到围岩中;④导热作用:传导核燃料残余能量即衰变能及其转化的热量(KASAM, 2001)。膨润土以其极低渗透性和良好的核素吸附性能被许多国家选作高放废物地质处置库的缓冲材料基材。

## 3 膨润土矿床筛选

不同的工业用途,对膨润土矿床有不同的评价要求,核工业北京地质研究院徐国庆等(2004)在1994~1996年间完成对84个膨润土矿床的调查,并对我国12个大型膨润土矿床(广西南明矿床、新疆乌兰林格矿床、内蒙古高庙子矿床、江苏句容甲山矿床、河北宣化堰家沟矿床、新疆柯尔碱矿床、安徽

新潭矿床、湖北上熊矿床、山东涌泉庄矿床、浙江平山矿床、山西抢风岭矿床、广西上思矿床)进行了综合对比研究。筛选标准为:①矿床规模大。在高放废物处置库投入运行和封闭期,回填/缓冲材料的用量大,而且目前距处置库投入使用的时间还很长,按在2040年建成处置库的设想,还要求矿山寿命长,在今后几十年仍能充分供应大量优质膨润土;②矿石质量好。要求作为回填/缓冲材料的膨润土矿石中蒙脱石含量高,渗透性低,吸附性、膨胀性、导热性和可塑性高,对热、辐射和化学具稳定性,并在材料的机械力学性质方面也有一定要求;③矿床开采条件好,开采成本低。要求矿床勘探程度较高,矿层厚度大,埋藏浅,易于露天开采。如需深部开采,则要求大部分矿层埋深以小于200m为宜,同时要求矿层顶、底板围岩比较稳定;矿床构造和水文地质条件简单,且没有严重的矿床充水问题;④矿床距处置库预选场地近,交通方便。尽量避免长距离运输,以减少运输费用。根据其研究结果,推荐内蒙古高庙子膨润土矿床为我国处置库回填/缓冲材料的首选矿床(徐国庆等,2004)。此后,相关研究工作围绕高庙子膨润土展开。

## 4 高庙子膨润土矿床

高庙子膨润土矿床主体位于内蒙古自治区境内。矿层主要分布于上侏罗统砾岩、砂砾岩及砾岩夹砂岩岩层中,共产出5层,编号为0、I、II、III、IV矿层,其中III矿层为主要工业矿层,全长约8150m。矿层厚度为8.78~20.47m,受一倒转向斜控制,北西翼倾向南东,倾角 $10^{\circ}$ ~ $15^{\circ}$ ,在13.43勘探线附近产状变陡,为 $30^{\circ}$ 左右;南东翼倾角近于直立或倒转。矿

床近地表出露钙基膨润土, 数十米深部开始产出钠基膨润土。根据处置库概念模型设计以及国际上 20 多年的研究经验, 我国高放废物深地质处置库缓冲材料的研究以产自该矿床深部的钠基膨润土作为基本组成材料。这也是我国十多年相关研究的基本结论。

### 5 高庙子钠基膨润土基本特性

#### 5.1 样品采集

据前期勘探报告, 本区原生矿石皆为钠基膨润土, 但由于富含钙镁离子地下水的作用, 在近地表部分, 膨润土矿石经与地下水发生离子交换而逐渐改型为钙基或钙镁基膨润土。在对内蒙古高庙子膨润土矿床地表 5 个矿层和多个地表采矿场进行系统野外调查的基础上, 利用斜井工程取到钠基膨润土混合大样 1 件和标本样 3 件, 4 个样均取自 III<sup>矿</sup>层空间上几乎相同的位置。样品描述见表 1。

从现场观察结果看, 不同色泽的膨润土在空间上密切接

表 1 高庙子钠基膨润土研究样品描述

Table 1 Description of selected GMZ Na bentonite samples

编号	采样地点	类型*	描述
GMZ_1	斜井	钠基膨润土	混合大样, 200 目, 灰白色
GMZ_2	斜井	钠基膨润土	块状, 浅灰白色
GMZ_3	斜井	钠基膨润土	块状, 紫红色
GMZ_4	斜井	钠基膨润土	块状, 深灰绿色

注: \* 膨润土类型是根据表 4 中碱性系数测定值而确定的。

触。由于钠基膨润土在外观颜色上可以呈现不同色泽, 3 个标本样的取得旨在了解外观存在明显差异的钠基膨润土, 在其主要性质(碱性系数、矿物组成等)是否存在差异。

#### 5.2 化学成分

化学成分分析结果见表 2。由表 2 可以看出, 膨润土是由含水的铝硅酸盐矿物组成, 主要成分是 SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 和 H<sub>2</sub>O。从化学成分、稀土元素组成分析, 样品 GMZ\_1、GMZ\_1 组成比较相似, 样品 GMZ\_3、GMZ\_4 组成比较相似。其所代表的成因意义有待后续深入工作来探讨。

表 2 高庙子钠基膨润土主量元素化学成分(w<sub>B</sub>/%)和稀土元素分析结果(w<sub>B</sub>/10<sup>-6</sup>)

Table 2 Chemical components (w<sub>B</sub>/%) and content of rare earth elements (w<sub>B</sub>/10<sup>-6</sup>) of GMZ Na bentonite

样号	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	CaO	K <sub>2</sub> O	TiO <sub>2</sub>	FeO	TFe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MgO	Na <sub>2</sub> O	MnO	烧失量
GMZ_1	14.20	67.43	0.02	1.13	0.73	0.12	0.29	2.40	< 0.10	1.75	0.02	11.38
GMZ_2	14.08	68.13	0.02	1.06	0.62	0.10	0.10	1.66	< 0.10	1.78	0.04	11.69
GMZ_3	14.72	63.67	0.08	1.28	1.86	0.34	0.47	3.90	0.64	2.44	0.04	10.33
GMZ_4	15.41	61.52	0.08	1.15	2.12	0.36	0.77	3.29	3.09	2.06	0.03	10.18

样号	Y	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
GMZ_1	50.40	14.84	35.57	4.40	18.40	7.06	0.27	7.98	1.54	9.28	1.79	5.10	0.79	5.03	0.62
GMZ_2	52.04	11.20	27.12	3.67	15.93	6.90	0.17	7.30	1.46	9.20	1.74	4.92	0.79	4.93	0.66
GMZ_3	44.04	22.45	48.34	6.02	25.34	7.86	0.56	7.58	1.40	8.36	1.55	4.28	0.70	4.41	0.59
GMZ_4	41.97	22.88	50.70	6.19	24.72	6.97	0.63	7.08	1.33	7.42	1.42	4.12	0.64	3.87	0.52

分析单位: 核工业地质分析测试研究中心; 测试方法和依据: X-荧光光谱法 Q/AS.c7\_2001。

#### 5.3 矿物学特性

应用粉末 X 射线衍射矿物定量分析获得的膨润土样品的矿物组成见表 3。

从表 3 可以看出, 高庙子钠基膨润土中组成矿物蒙脱石占 65% 以上, 主要的杂质矿物为石英、方英石和长石, 此外粘土矿物中可能有高岭石、伊利石等, 杂质矿物还可能有碳酸盐(白云石、方解石等)。国外的同类材料中还存在石膏、黄铁矿和方沸石等(JNC, 2000)。由于 GMZ\_1 是混合大样并经破磨粉碎到 200 目, 在加工过程中, 去掉了部分杂质矿物, 使其中蒙脱石含量有所提高。

考虑到分析过程可能存在一定的分析误差, 综合 4 个样品相关测试数据表明, 4 个样品在化学组成、矿物组成、碱性系数(表 4)等参数上没有显著差异, 据此, 用混合大样 GMZ\_1 的参数代表取样位置的钠基膨润土特性是适宜的。GMZ\_1 的基本特征参数除表 4 所示以外, 其他参数为: 蒙脱石含量

75.4%(蒙脱石含量与测定方法有关), 吸蓝量 102 mmol/100 g, 真密度 2.66 g/cm<sup>3</sup>, pH 值 8.68~9.86(pH 值与固液比有关, 固液比为 10 g/L 时, pH=9.86; 固液比为 200 g/L 时, pH=8.68)。

表 3 高庙子钠基膨润土 X 射线衍射矿物定量分析 w<sub>B</sub>/%

Table 3 Mineral composition of GMZ Na bentonite by quantitative XRD analysis

样品编号	石英	长石	方英石	蒙脱石	伊利石	高岭石	碳酸盐
GMZ_1	11.7	4.3	7.3	75.4	/	0.8	0.5(方解石)
GMZ_2	20.1	7.6	3.0	69.3	/	/	/
GMZ_3	14.6	7.4	7.2	65.5	1.3	/	4.0(白云石)
GMZ_4	12.0	15.0	5.5	66.2	1.3	/	/

分析单位: 石油勘探开发科学研究院; 使用仪器: D/max\_2500, D/max\_rA; 执行标准: SY/T 5163\_1995, 6210\_1996。

表4 高庙子钠基膨润土阳离子交换容量和可交换性阳离子  
Table 4 Results of the exchangeable cation measurement of GMZ Na bentonite

样号	阳离子交换容量 /mmol·100 g <sup>-1</sup>	可交换性阳离子 / mmol·100 g <sup>-1</sup>				碱性系数*
		E(K <sup>+</sup> )	E(Na <sup>+</sup> )	E(1/2Ca <sup>2+</sup> )	E(1/2Mg <sup>2+</sup> )	
GMZ_1	77.06	0.55	37.52	23.18	10.17	1.14
GMZ_2	82.06	0.47	38.48	20.65	13.40	1.14
GMZ_3	72.06	0.72	33.38	21.38	8.74	1.13
GMZ_4	62.59	1.01	29.66	19.73	7.90	1.11

分析单位: 国家建筑材料工业地质勘查研究院测试中心; 测试仪器和依据: 原子吸收分光光度计, JC/T 593\_1995, \* 碱性系数 =  $[E(K^+) + E(Na^+)] / [E(1/2Ca^{2+}) + E(1/2Mg^{2+})]$ , 碱性系数大于 1, 该膨润土为钠基膨润土; 碱性系数小于 1, 该膨润土为钙基膨润土。

## 6 结 语

由于高放废物含有高放射性、长半衰期的放射性核素, 按照国际上比较一致的认识, 高放废物处置库安全有效性应大于一万年, 而且这一时限还可能随着人类对环境安全要求的提高而延长。与此相适应, 对于处置库屏障层材料的选择和功能要求也是非常高的。综合国际上先进国家的研究认识, 缓冲材料的研究应涵盖材料组成及结构特性、材料稳定性、材料物理性能、材料化学缓冲性能、添加剂选择和缓释体系性能、材料工程特性以及热-水-力化学耦合特性等方面。根据我国具体国情, 以高庙子钠基膨润土作为缓冲回填材料并正在对其性能进行系统的研究。

高放废物安全处置工作具有技术难度大、研究周期长、涉及学科多、资金投入大等特点, 作为多重屏障系统之一的缓冲回填材料也是如此。在发展我国缓冲回填材料技术过程中需要国家主管部门稳定的、足够的经费支持, 在技术领域还需解决诸多测试技术及相关研究设备面临的一些难题。笔者期待国家有关部门能加大经费支持, 推动这一领域的研究进展, 确保高放废物安全处置, 为能源工业发展保驾护航。

致谢: 野外工作得到内蒙古 102 地质队、兴和县地矿局等单位及相关技术人员的支持, 徐国庆研究员和刘月妙女士曾与笔者进行了有益的交流和探讨, 在此一并致以衷心谢意!

## References

- KASAM (Swedish National Council for Nuclear Waste). 2001. Nuclear waste, State of the Art Reports 2001, KASAM[Z]. SOU2001: 35, Fritzes, Stockholm, Chapter 5, 195~228.
- Xu Guoqing, Li Yongli, Gu Qifang, et al. 2004. Selection of bentonite deposits[A]. Wang Ju, Fan Xianhua, Xu Guoqing, et al. Geological Disposal of High Level Radioactive Waste in China: Progress in Last Decade (1991~2000)[C]. Beijing: Atomic Energy Press, 318~328(in Chinese).
- JNC(Japan Nuclear Cycle Development Institute). 2000. H12: Project to establish the scientific and technical basis for HLW disposal in Japan[Z]. JNC TN1410 2000\_003.

## 附中文参考文献

- 徐国庆, 李永利, 顾绮芳, 等. 2004. 膨润土矿床筛选[A]. 王驹, 范显华, 徐国庆, 等. 中国高放废物地质处置十年进展[C]. 北京: 原子能出版社, 318~328.