

文章编号: 0253-9950 (2009) S0-0045-08

环境放射化学

刘春立

北京分子科学国家实验室, 放射化学与辐射化学重点学科实验室,
北京大学 化学与分子工程学院 应用化学研究所, 北京 100871

摘要: 环境放射化学是伴随着人们对环境中放射性核素健康效应的关注于 20 世纪 50 年代产生的一门交叉学科。在过去的半个多世纪里, 作为放射化学的一个重要分支, 环境放射化学在世界范围内得到快速发展。目前, 由于对高放废物安全性的严重关切, 人们需要深入了解一些弱吸附性放射性核素和超铀核素在环境介质中的扩散、迁移、吸附、解吸以及在植物和水生生物中的吸收、富集和载带过程, 以便为处置库安全评价提供基础参数。本文简要介绍了环境放射化学的产生、发展、现状及未来发展趋势, 以期为我国环境放射化学教育和科研服务。

关键词: 环境; 放射化学; 现状; 趋势

中图分类号: X131 **文献标志码:** A

Environmental Radiochemistry

LIU Chun-li

Beijing National Laboratory for Molecular Sciences, Department of Applied Chemistry, College of Chemistry and Molecular Engineering, Peking University, Beijing 100871, China

Abstract: Environmental radiochemistry was developed up in the middle of the 1950th along with the concerns of the health effects of radionuclides in the environment. During the past half century, as an important branch of radiochemistry, the environmental radiochemistry has been developed up rapidly in the world. Currently, since the serious concerns of the safety of high level radioactive wastes, the diffusion, migration, sorption in environmental media and taking up by plants and aquatic animals of weakly sorbed and long lived radionuclides need to be well understood in terms of safety assessment of geologic repositories. This paper briefly reviews the development of environmental radiochemistry, and the current focus of foundmental research of environmental radiochemistry in China is presented.

Key words: environment; radiochemistry; current status; developments

核材料生产和核技术应用不可避免地会向环境中释放数量可观的放射性核素。这些核素在环境介质中通过迁移、扩散、转移、转化等物理化学及生物化学过程, 最终进入食物链,

收稿日期: 2009-04-10

作者简介: 刘春立 (1964—), 男, 河南郑县人, 博士, 副教授, 博士生导师, 从事环境放射化学研究

对人类健康构成潜在危险。早在 20 世纪 50 年代,人们就开始关注环境中放射性核素的行为。最早关注的环境放射性是核爆产生的落下灰^[1],当时人们主要进行环境放射性的监测工作。在早期的核工业活动中,人们还没有严格的废物处置概念,为方便起见,核设施工作人员通常以简易的方式把放射性废物罐埋置在核设施周围的土壤中(图 1)^[2]。由于天然降水和人类活动的侵扰,这些埋置在土壤中的放射性废物罐或被雨水冲刷到地表,或受到周围环境的侵蚀而破损,随之而来的是放射性核素释放到环境之中。图 2 为一典型废物罐受雨水冲刷后的状况^[2]。进入环境中的放射性核素随地下或地面水体的运动,到达人们的日常用水水体,再通过食物链进入人体。除此之外,核设施的退役以及核事故也向环境中释放数量可观的放射性核素。到目前为止,进入环境中的放射性核素约在 10^{20} 居里数量级^[3]。

人类活动释放到环境中的放射性核素以及

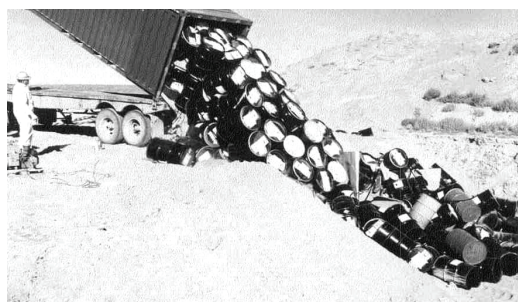


图 1 简易方式处理放射性废物^[2]

Fig. 1 Picture of a pit after a load of waste had been dumped^[2]

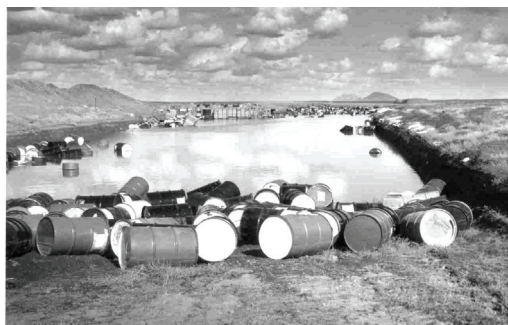


图 2 早期放射性废物坑受到侵扰的情形^[2]

Fig. 2 Picture of a pit with water and surrounded barrels^[2]

环境中存在的天然放射性核素在环境中的迁移、扩散、转移、转化过程中所经历的物理化学和生物化学过程直接或间接地影响到其对人群所造成的剂量。这是人们最为关心的问题之一。随着人们生活水平的不断提高和环境意识的不断提升,人们对环境中的放射性核素也日益关注,由此衍生出环境放射化学这一交叉学科。从环境放射化学的研究内容看,环境放射化学目前主要关注以下几个方面的问题:

- (1) 环境放射性研究: 研究环境中存在的放射性核素的迁移、扩散、转移、转化、吸附、脱附(解吸)、载带、富集、种态变化规律及其影响因素;
- (2) 核设施周围环境中重要核素的迁移、扩散、转移、转化、载带、吸附、脱附(解吸)、富集、种态变化规律及其影响因素;
- (3) 环境污染物变化规律研究: 用放射化学手段研究典型污染物在环境中的迁移、扩散、转移、转化、吸附、脱附(解吸)、载带、富集、种态变化规律及其影响因素;
- (4) 新型材料安全性研究: 用放射化学手段研究纳米材料等在环境中的迁移、扩散、转移、转化、吸附、脱附(解吸)、载带、富集、种态变化规律及其影响因素。

1 环境放射性研究

环境放射性是随着地球的诞生而诞生的。自然界主要有 3 个天然放射系^[4]: 钍系($4n$ 系)、铀系($4n+2$ 系)和锕系($4n+3$ 系)。这些天然放射系在长期的衰变过程中生成寿命长短不一的放射性核素,其中寿命较长的放射性核素,如铀-238、钍-232、镭-226、铀-235 等遍布地球的各个角落,是我们日常生活中无法回避的天然放射性核素。法国科学家贝克勒尔(Becquerel H)发现放射性现象的过程实际上是环境放射化学研究的雏形^[4]。

环境放射性研究主要包含以下内容: 天然放射性本底调查,天然放射性核素随环境条件的改变而发生的迁移、在农作物及环境土壤中的浓集,天然放射性矿物的成因等。在 1950—1960 年,人们开展了大量的环境放射性本底调查工作^[5-11],以期得到天然放射性本底资料以及天然本底辐射与一些遗传疾病的关系。到 1980—1990 年,人们开始关注核爆产生的放射性污染问题^[12]。这时,人们不仅关注放射性核素的分布问题,同时关注放射性核素在大气、土壤中

的运移以及在动植物中的富集等问题。也正是在这个时期，环境放射性一词频繁地出现在公开发表的文献中。在这一时期，我国开展的有影响的工作是长江水系放射性水平调查^[13]。这是1984—1985年完成的1项区域性大规模调查工作。调查对象有水体、泥、鱼体和部分沿岸土壤；涉及的分析测量项目有总 α ，总 β ，U，Th， ^{226}Ra ， ^{210}Po ， ^{40}K ， ^3H ， ^{90}Sr ， ^{137}Cs 和 ^{239}Pu 等11项。在这一时期，国内研究人员还开展过多项环境放射性调查和评价研究工作^[14-18]。

2 核设施周边环境放射性研究

核设施主要包括与核燃料循环各环节有关的设施，包括矿冶、铀的富集、核反应堆和乏燃料后处理等设施。除原爆场点外，核设施是向环境释放放射性核素的最集中场所之一。因此，核设施周围的环境放射性研究一直是环境放射化学的一个重要研究领域。核设施周边环境放射性研究主要包括核设施建设前的环境放射性本底调查，核设施运行中的环境放射性检测与评价，核设施事故释放的放射性核素的检测与评价以及放射性核素在核设施周围环境介质中的扩散、迁移、富集、载带等物理化学过程。

3 放射性废物处理与处置中的环境放射化学研究

核燃料循环的各个环节都释放大量的放射性废弃物。这些放射性废弃物包括气载放射性废物、液态放射性废物和固体放射性废物^[19]。净化后的气载废物和液体废物可控制性地向环境排放。在净化过程中，绝大部分放射性核素被浓集后，通过某种整备技术转变为适于处置的固化体。因此，放射性废物最终为放射性固体废物。

放射性废物的安全处置是世界上许多国家面临的集科技、政治、经济、核能可持续发展、社会稳定和环境保护等诸多因素为一体的重大问题之一，其中以高水平放射性废物（高放废物）的安全处置尤为突出。随着我国核电的积极快速发展，我国高放废物的积存量将快速增长。为解决好我国核电快速发展与高放废物安全处置这一关系到我国核事业健康、可持续发展的大事，国防科工委（现国家国防科技工业局）、科技部和国家环保总局（现环保部）于2006

年2月联合发布了我国《高放废物地质处置研究开发规划指南》（以下简称《指南》）。《指南》依据我国的实际情况，提出在2020年前后完成各学科实验室研究开发任务，2040年前后完成地下实验室研究开发任务、初步确认处置库场址的阶段性目标，在本世纪中叶建成处置库、通过处置库运营安全审评的总目标。

在高放废物处置库安全评价中，随着时间的推移，诸如 ^{36}Cl ， ^{79}Se ， ^{99}Tc ， ^{129}I 等弱吸附性核素以及 ^{237}Np ， ^{239}Pu ， ^{241}Am 等超铀核素对关心点人群的剂量贡献愈显突出。因此，其在处置库周围岩体（围岩）中的吸附、扩散、迁移、种分布是最受关注的问题之一^[20]。

就高放废物安全处置而言，目前普遍接受的最为可行的处置方式是深地质处置，即把高放废物埋置在距地表约500~1 000 m的地质岩体中，使之与人类的生存环境长期有效隔离。尽管人们在高放废物处置库的设计和建造中已经考虑到了多方面的安全性问题，然而，由于人们不可能长期准确地预测地质构造的变化情况（例如地震的发生时间、地点、烈度），处置库破损或失效后所造成的放射性核素的释放和在围岩中的扩散和迁移是高放废物处置库安全评价中需要回答的重要问题之一，其中因弱吸附性核素的吸附能力弱、扩散系数大，迁移速度快，其在处置库围岩中的扩散和迁移问题是最为重要的问题之一。尽管各国对处置库围岩的选择不尽相同，如瑞典、法国、加拿大和瑞士选用花岗岩，德国选用岩盐，美国选用凝灰岩，比利时则选用粘土岩，研究的侧重点也因此不尽相同，但都非常重视研究超铀核素和弱吸附性核素的吸附、扩散和迁移问题。根据我国的具体情况，经华南、华东、西南、内蒙和西北等全国性区域筛选和地段筛选后，目前已经确定甘肃北山地区为我国处置库预选场址的重点研究区，候选处置库围岩为岩性单一的花岗岩。

针对不同的花岗岩岩体，国际上已经开展了不少有关放射性核素在花岗岩中扩散和迁移的实验室和现场研究工作^[21-42]。例如，加拿大原子能公司白壳实验室从1996年开始，利用地下实验室，在450 m深的、具有零星裂隙分布特征的花岗岩中（sparsely fractured rock），用碘作示踪剂开展了4个扩散实验，分别得到了花

岗岩的渗透系数和有效扩散系数。实验发现在距孔壁 (open borehole wall) 几厘米范围内, 碘的浓度急剧衰减^[23]; 美国 LANL 在地下核试验场附近的裂隙花岗岩中开展了非吸附性示踪剂和弱吸附性示踪剂的吸附扩散实验。发现扩散主要发生在花岗岩的孔隙水部分, 而不是不动的裂隙水部分, 对实验结果的分析认为后期的有效扩散空间仅为总体积的 50%^[22]; 匈牙利科学院原子能研究所则利用扩散装置在实验室内测量了 ^3H , ^{99}Tc , ^{125}I , ^{36}Cl 和 ^{85}Sr 在花岗岩中的扩散系数^[25]; 加拿大 Kumata 和 Vandergraaf^[24] 利用地下实验室研究了 Np 在现场地质条件下在粉碎花岗岩柱中的迁移, 发现 Np 的滞后系数与水流速率密切相关; Vilks 等^[35] 研究了胶体在花岗岩裂隙中的迁移, 发现胶体和弱吸附性示踪剂的洗脱曲线 (elution profile) 相似, 证明胶体可迁移的距离大于 17 m; 美国沙漠研究所 (Desert Res. Inst.) Papelis^[27] 则研究了阳离子 Pb^{2+} , Sr^{2+} 和 Cs^+ 、阴离子亚硒酸根和铬酸根在花岗岩中的吸附现象, 发现 Pb^{2+} 的吸附因 pH 不同而不同, 而 Cs^+ 的吸附与 pH 无关, 亚硒酸根和铬酸根的吸附则与离子强度有关。有关超铀核素 ^{237}Np , ^{239}Pu , ^{241}Am 在花岗岩中扩散和迁移方面的研究工作也不少^[40-42], 主要的研究成果也是获取扩散参数。例如, 得到 Np 和 Pu 在日本花岗岩中的有效扩散系数分别为 $(4.0 \pm 1.5) \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 和 $(2.0 \pm 1.6) \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ ^[40]。目前该领域的研究重点主要集中在现场实验、天然胶体对关键核素的吸附、扩散和迁移的影响以及阴、阳离子在花岗岩裂隙中的吸附机理方面^[28]。

我国在这方面也做了不少工作^[26, 29, 31-34, 36-38]。北京大学刘元方院士^[26]于 1990 年对核素迁移的若干问题作了全面的论述和展望; 温瑞媛等^[31]在 20 世纪 90 年代中期系统研究了裂片核素 ^{125}I , ^{75}Se , ^{134}Cs 和 $^{85,90}\text{Sr}$ 在花岗岩中的扩散并得到了相应的扩散系数; 刘春立等^[29, 36]于本世纪初用改进的扩散池研究了 $^{99}\text{TcO}_4^-$ 和 HTO 在花岗岩中的扩散, 并初步分析了表观扩散系数与物种分子量之间的关系; 中国辐射防护研究院陈式、李春江, 中国原子能科学研究院林漳基、汪德熙等^[37]研究了 ^3H 和 ^{125}I 在花岗岩单裂隙中的迁移, 得到了 ^3H 和 ^{125}I 在花岗岩单裂隙中的弥散系数和表面阻滞系数; 兰州大学陶祖贻等^[32]在核素的吸附规律方面开展了大量的工作, 复

旦大学陆誓俊等^[38]则研究了放射性碘在粉碎花岗岩、紫色页岩和凝灰岩中的吸附和迁移行为, 发现 I^- 和 IO_3^- 基本上不吸附; 南京大学闵茂中等^[30]研究了一些元素和放射性核素在花岗岩-花岗岩接触带中的迁移行为; 中国原子能科学研究院章英杰等^[43]近年来在超铀核素的迁移和吸附方面开展了不少研究工作; 中国工程物理研究院^[33]、四川大学^[34]在这方面也开展了大量研究工作; 核工业北京地质研究院近年来针对甘肃北山花岗岩开展了不少地球化学方面的研究工作^[39]。国内其他高等院校和研究院所近年来也在核素的吸附、扩散、迁移、萃取等诸多方面开展了大量工作。

高放废物地质处置库安全评价的关键点是关键放射性核素在处置库围岩和缓冲回填材料中的吸附和扩散问题。当废物库中的放射性核素离开处置库近场后, 对其行为的研究应归属环境放射性的研究范畴。

废物体中的放射性核素离开废物库近场的途径主要有放射性核素在废物体中的浸出、在回填材料中的扩散和迁移, 以及在近场围岩中的扩散和迁移。就放射性核素在废物体中的浸出而论, 涉及的研究工作主要有废物罐材料的腐蚀行为 (尤其是在辐射场作用下的腐蚀行为) 和核素与废物罐材料的相互作用。与放射化学密切相关的研究工作包括辐射场对废物罐腐蚀的影响研究, 在 γ 辐射场存在条件下, 关键核素与废物罐材料的物理化学作用研究。

放射性核素在回填材料 (主要是粘土类矿物) 中将发生吸附、扩散和弥散。一般情况下, 在压实密度大于 $1.8 \text{ kg}/\text{dm}^3$ 的膨润土中, 地下水的流速通常很小^[44], 因此, 放射性核素在粘土类矿物中的吸附和扩散行为以及 pH、Eh、温度、有机物、胶体等对其吸附和扩散行为的影响研究是各国研究人员关注的焦点, 并开展了大量的研究工作^[45-76]。这些工作主要包括测量特定膨润土的物化性质^[45-47]、在一定条件下观测膨润土的性能变化^[48-49, 51-52, 54]、在多因素耦合下研究膨润土的性能变化^[55]、在特定条件下研究污染物在膨润土中的扩散和迁移^[53, 56-57, 59, 61-65, 67-68, 70], 以及用模型预测其性能的变化^[50, 58, 73]。国内已发表的研究工作主要有清华大学李国鼎课题组在 20 世纪 90 年代开展的针对新疆钠基膨润土的渗透、膨胀和核素迁移规律研究^[71-72]和近年

来中国科学院等离子体物理研究所王祥科课题组开展的用毛细管法研究一些核素在美国膨润土(MX-80)中的扩散情况^[60, 63-64, 68-69]。李国鼎课题组的研究工作利用自制的实验装置,研究了²³⁹Pu, ²⁴¹Am, ⁹⁹Tc 和 ¹³⁷Cs 在新疆钠基膨润土中的扩散。王祥科课题组的主要研究工作是利用毛细管实验技术研究一些核素在 MX-80 膨润土中的吸附及影响因素。此外,中国原子能科学研究院、中国辐射防护研究院和中国工程物理研究院也开展过一些相关研究工作。目前,国际上的研究热点是放射性核素在粘土类矿物表面的吸附机理^[73]以及胶体对核素迁移的影响^[66]。

在处置库围岩中,放射性核素将主要发生吸附、扩散和弥散。硬岩类处置库围岩(如花岗岩)中通常有裂隙,这是放射性核素弥散的主要途径之一,近年来受到普遍关注^[74-77]。

4 我国环境放射化学研究面临的问题

我国核电的快速发展必将引起公众对环境放射性的进一步关注,这将赋予我国环境放射化学研究工作新的使命和要求:在 5~10 a 内,为可能建造核电站的地区建立一个较全面的环境放射性本底资料库;10~20 a 内,系统研究高放废物关键核素在候选岩体和回填材料中吸附、扩散和弥散规律,以便为处置库安全评价提供基本数据库;20~30 a 内,把我国环境放射化学的总体研究水平赶超过国际领先水平,为我国核事业的健康发展提供科学基础。

目前,我国环境放射化学研究的主要矛盾之一是国家需求和人才短缺之间的矛盾。为缓解这一矛盾,我国老、中、青三代核化学与放射化学工作者大胆呼吁、积极行动。兰州大学于 2006 年率先成立了“核科学与技术研究院”,设立了放射化学学科;四川大学与成都市政府、中国核工业集团公司 2007 年 9 月决定,三方共建四川大学核科学与工程技术学院;国防科工委“放射化学与辐射化学”国防重点学科实验室于 2007 年 10 月在北京大学授牌;北京大学 2008 年开始招收 3 年制核化学专业硕士研究生^[78]。我国环境放射化学的另一主要矛盾是国家需求与资金投入。尽管核电快速发展急需开展大量的环境放射化学基础和应用研究工作,具有标志性的基础研究投入——国家自然科学基金至 2008 年末尚未在环境放射化学领域支持 1 项重点项目或重大项目或杰出青年基金项目。

参考文献:

- [1] Merril Eisenbud, John H Harley. Radioactive Fallout Through September 1955[J]. Science, 1956, 124 (3 215): 251-255.
- [2] Sue B Clark. Environmental Radiochemistry[C]//Presentation at the International Workshop on Radionuclide Migration and Waste Disposal, Oct. 12-16, 2008, Beijing, China.
- [3] Annie Keresting. Advancing Our Understanding of Pu Transport[C]//Presentation at the International Workshop on Radionuclide Migration and Waste Disposal, Oct. 12-16, 2008, Beijing, China.
- [4] 王祥云,刘元方.核化学与放射化学[M].北京:北京大学出版社,2007.
- [5] Solon L R, Lowder W M, Zila A V, et al. Measurement of External Environmental Radiation in the United States[J]. Science, 1958, 127: 1 183-1 184.
- [6] Solon L R, Lowder W M, Shambon A, et al. Investigation of Natural Environmental Radiation[J]. Science, 1960, 131, 903-906.
- [7] Nezu N, Asano M, Ouchi S. Cerium -144 in Food[J]. Science, 1962, 135: 102-103.
- [8] Hallden N A, Fisenne I M, Harley J H. Radium in Human Diet and Bone[J]. Science, 1963, 140: 1 327-1 329.
- [9] Eisenbud M, Petrow H G. Radioactivity in the Atmospheric Effluents of Power Plants That Use Fossil Fuels[J]. Science, 1964, 144: 288-289.
- [10] Gustafson P F, Kastner J, Luetzelschwab J. Environmental Radiation: Measurements of the Dose Rates[J]. Science, 1964, 145: 44-47.
- [11] Machta L. Radioiodine Fallout Over the Midwest in May[J]. Science, 1968, 160: 64-66.
- [12] Turco R P, Toon O B, Ackerman T P, et al. Nuclear Winter: Global Consequences of Multiple Nuclear Explosions[J]. Science, 1983, 222: 1 283-1 290.
- [13] 李振平.长江水系放射性水平调查及评价.1984[M].北京:原子能出版社,1988.
- [14] 尚兵,王作元,高印平,等.1995 中国甘肃东部地区居民窑洞中的氡浓度[J].辐射防护,1996, 15 (6): 461.
- [15] 李长兴,李钟伟,冯志国,等.大庆地区土壤环境放射性水平的调查[J].环境科学,1997, (4): 73-76.
- [16] 江山.安徽省石煤区天然放射性水平调查[J].辐射防护通讯,2000, 20 (1): 24.

- [17] 张起虹,刘明,王凤英.田湾核电厂环境辐射本底初步调查[J].辐射防护通讯,2001, 3: 25-30.
- [18] 陈志东,邓飞,刘瑛,等.大亚湾核电站周围陆地环境放射性水平简介[J].辐射防护通讯,2003, (1): 29-33.
- [19] 陈式,马明燮,等.中低水平放射性废物的安全处置[M].北京:原子能出版社,1998.
- [20] 郭择德.国外高放废物处置安全评价概况和趋势[C]//高放废物地质处置2007年度工作会议暨专家组年会会议资料,国防科工委系统工程二司,北京怀柔,2007-12-25.
- [21] Mazurek M, Jakob A, Bossart P. Solute Transport in Crystalline Rocks at Aspo: I Geological Basis and Model Calibration[J]. J Contam Hydrol, 2003, 61 (1-4): 157-174.
- [22] Reimus P, Pohll G, Mihevc T, et al. Testing and Parameterizing a Conceptual Model for Solute Transport in a Fractured Granite Using Multiple Tracers in a Forcedgradient Test[J]. Water Resources Research, 2003, 39 (12): 1356.
- [23] Vilks P, Cramer J J, Jensen M, et al. In Situ Diffusion Experiment in Granite: Phase I[J]. J Contam Hydrol, 2003, 61 (1-4): 191-202.
- [24] Kumata M, Vandergraaf T T. Experimental Study on Neptunium Migration Under in Situ Geochemical Conditions[J]. J Contam Hydrol, 1998, 35 (1-3): 31-40.
- [25] Szanto Z, Svingor E, Molnar M, et al. Diffusion of H-3, Tc-99, I-125, Cl-36 and Sr-85 in Granite, Concrete and Bentonite[J]. J Radioanal Nucl Chem, 2002, 252 (1): 133-138.
- [26] 刘元方.我国核素迁移研究的若干进展[J].核化学与放射化学,1990, 12 (1): 1-5.
- [27] Papelis C. Cation and Anion Sorption on Granite From the Project Shoal Test Area, Near Fallon, Nevada, USA[J]. Adv Environ Res, 2001, 5 (2): 151-166.
- [28] Vilks P, Baik M H. Laboratory Migration Experiments With Radionuclides and Natural Colloids in a Granite Fracture[J]. J Contam Hydrol, 2001, 47 (2-4): 197-210.
- [29] Liu C L, Wang X Y, Li S S, et al. Diffusion of ^{99}Tc in Granite: A Small Scale Laboratory Simulation Experiment[J]. Radiochimica Acta, 2001, 89: 639-642.
- [30] Luo X Z, Min M Z, Zhang G H, et al. Migration of Some Radionuclides Across a Granite -Granite Contact Zone: A Natural Analogue for Safe Disposal of High-Level Radwastes[J]. Acta Geological Sinica English Edition, 1999, 73 (4): 418-428.
- [31] Wen R Y, Gao H C, Wang X Y, et al. Diffusion of Fission Fragment Nuclides in Granite[J]. Radiochimica Acta, 1997, 76: 137-142.
- [32] Tao Z Y, Dong W M. Additivity Rule and Its Application to the Sorption of Radionuclides on Soils[J]. Radiochimica Acta, 2003, 91 (50): 299-303.
- [33] 李利华,傅依备,周秀鹏,等.Sr, Cs 在回填材料中的吸附与迁移研究[J].原子能科学技术,1998, 32 (S1): 76-82.
- [34] 刘期凤,刘宁,廖家莉,等.放射性核素迁移研究的现状与进展[J].化学研究与应用,2006,(5): 465-471.
- [35] Vilks P, Frost L H, Bachinski D B. Field-Scale Colloid Migration Experiments in Granite Fracture[J]. J Contam Hydrol, 1997, 26 (1-4): 203-214.
- [36] 刘春立,王祥云,高宏成,等. $^{99}\text{TcO}_4^-$, HTO 在花岗岩中的扩散研究[J].核化学与放射化学,2003, 25 (4): 204-208.
- [37] 李春江,陈式,林漳基,等.花岗岩体单裂隙中核素迁移研究: I 弥散系数的测定[J].核化学与放射化学,1999, 21 (3): 165-169.
- [38] 陆誓俊,叶明吕,王坚,等.放射性碘在地质材料中吸附和迁移的研究[J].核化学与放射化学, 1991, 13 (2): 92-95.
- [39] 王驹.我国高放废物深地质处置战略规划探讨[J].铀矿地质,2004, 20 (4): 196-212.
- [40] Yamaguchi T, Nakayama S. Diffusivity of U, Pu and Am Carbonate Complexes in a Granite From Inada, Ibaraki, Japan Studied by Through Diffusion[J]. J Contam Hydrol, 1998, 35 (1-3): 55-65.
- [41] Yamaguchi T, Nakayama S, Okamoto H. Effective Diffusivity of Neptunium and Plutonium in Granite From Inada, Ibaraki, Japan Under Anaerobic Condition[J]. Radiochimica Acta, 2002, 90 (12): 863-868.
- [42] Sakamoto Y, Nagao S, Ogawa H, et al. The Migration Behavior of Np (V) in Sandy Soil and Granite Media in the Presence of Humic Substances[J]. Radiochimica Acta, 2000, 88 (9-11):

- 651-656.
- [43] 章英杰,范显华,苏锡光,等.Pu 在铁及铁氧化物上的吸附行为研究[J].核化学与放射化学,2005, 27 (4): 1-5.
- [44] Arcos D, Grandia F, Domenech C, et al. Long-Term Geochemical Evolution of the Near Field Repository : Insights From Reactive Transport Modelling and Experimental Evidences[J]. J Contam Hydrol, 2008, 102 (3-4): 196-209.
- [45] Christidis G E. Physical and Chemical Properties of Some Bentonite Deposits of Kimolos Island, Greece[J]. Applied Clay Science, 1998, 13 (2): 79-98.
- [46] Christidis G E, Scott P W. Physical and Chemical Properties of Bentonite Deposits of Milos Island, Greece, Transactions of the Institution of Mining and Metallurgy Section B[J]. Applied Earth Science, 1996, 105: 165-174.
- [47] Villar M V, Martin P L, Barcala J M. Modification of Physical, Mechanical and Hydraulic Properties of Bentonite by Thermo-Hydraulic Gradients[J]. Engineering Geology, 2005, 81 (3): 284-297.
- [48] Vaunat J, Gens A. Analysis of the Hydration of a Bentonite Seal in a Deep Radioactive Waste Repository[J]. Engineering Geology, 2005, 81 (3): 317-328.
- [49] Huang W H, Chen W C. Swelling Behavior of a Potential Buffer Material Under Simulated Near Field Environment[J]. J Nucl Sci Technol, 2004, 41 (12): 1 271-1 279.
- [50] Dellisanti F, Valdre G. Study of Structural Properties of Ion Treated and Mechanically Deformed Commercial Bentonite[J]. Applied Clay Science, 2005, 28 (1-4): 233-244.
- [51] Komine H, Ogata N. Predicting Swelling Characteristics of Bentonites[J]. Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, 2004, 130 (8): 818-829.
- [52] Fernandez A M, Baeyens B, Bradbury M, et al. Analysis of the Porewater Chemical Composition of a Spanish Compacted Bentonite Used in an Engineered Barrier[J]. Physics and Chemistry of the Earth, 2004, 29 (1): 105-118.
- [53] Sato H, Miyamoto S. Diffusion Behaviour of Selenite and Hydroselenide in Compacted Bentonite[J]. Applied Clay Science, 2004, 26 (1-4): 47-55.
- [54] Borgesson L, Chijimatsu M, Fujita T, et al. Thermo-Hydro-Mechanical Characterisation of a Bentonite-Based Buffer Material by Laboratory Tests and Numerical Back Analyses[J]. International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences, 2001, 38 (1): 95-104.
- [55] Cho W J, Lee J O, Kang C H. Influence of Temperature Elevation on the Sealing Performance of a Potential Buffer Material for a High-Level Radioactive Waste Repository[J]. Ann Nucl Energy, 2000, 27 (14): 1 271-1 284.
- [56] Chijimatsu M, Fujita T, Kobayashi A, et al. Experiment and Validation of Numerical Simulation of Coupled Thermal, Hydraulic and Mechanical Behaviour in the Engineered Buffer Materials[J]. International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics, 2000, 24 (4): 403-424.
- [57] Kozaki T, Sato Y, Nakajima M, et al. Effect of Particle Size on the Diffusion Behavior of Some Radionuclides in Compacted Bentonite [J]. J Nucl Mater, 1999, 270 (1-2): 265-272.
- [58] Sakashita H, Kumada T. Heat Transfer Model for Predicting Thermal Conductivity of Highly Compacted Bentonite[J]. Journal of the Atomic Energy Society of Japan, 1998, 40 (3): 235-240.
- [59] Ohe T, Tsukamoto M. Geochemical Properties of Bentonite Pore Water in High-Level-Waste Repository Condition[J]. Nucl Technol, 1997, 118 (1): 49-57.
- [60] Wang X K, Tan X L, Ning Q L, et al. Simulation of Radionuclides Tc-99 and Am-243 Migration in Compacted Bentonite[J]. Appl Radiat Isot, 2005, 62 (5): 759-764.
- [61] Xia X, Idemitsu K, Arima T, et al. Corrosion of Carbon Steel in Compacted Bentonite and Its Effect on Neptunium Diffusion Under Reducing Condition[J]. Applied Clay Science, 2005, 28 (1-4): 89-100.
- [62] Lo I M C, Luk A F T, Yang X Y. Migration of Heavy Metals in Saturated Sand and Bentonite/Soil Admixture[J]. Journal of Environmental

- Engineering-ASCE, 2004, 130 (8): 906-909.
- [63] Wang X K, Chen Y X, Wu Y C. Diffusion of Eu (III) in Compacted Bentonite Effect of pH, Solution Concentration and Humic Acid[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2004, 60 (6): 963-969.
- [64] Wang X K. Diffusion of Cs-137 in Compacted Bentonite: Effect of pH and Concentration[J]. J Radioanal Nucl Chem, 2003, 258 (2): 315-319.
- [65] Tsukamoto M, Ohe T. Diffusion Measurement of Caesium in Compacted Bentonite[J]. Czechoslovak Journal of Physics, 2003, 53 (2): 679-686.
- [66] Mori A, Alexander W R, Geckeis H, et al. The Colloid and Radionuclide Retardation Experiment at the Grimsel Test Site: Influence of Bentonite Colloids on Radionuclide Migration in a Fractured Rock[J]. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 2003, 217 (1-3): 33-47.
- [67] Missana T, Alonso T, Turrero M J S. Generation and Stability of Bentonite Colloids at the Bentonite/Granite Interface of a Deep Geological Radioactive Waste Repository[J]. J Contam Hydrol, 2003, 61 (1-4): 17-31.
- [68] Wang X K, Dong W M, Gong Y C, et al. Sorption Characteristics of Radioeuropium on Bentonite and Kaolinite[J]. J Radioanal Nucl Chem, 2001, 250 (2): 267-270.
- [69] Dong W M, Wang X K, Shen Y, et al. Sorption of Radiocobalt on Bentonite and Kaolinite[J]. J Radioanal Nucl Chem, 2000, 245 (2): 431-434.
- [70] Nagasaki S, Tanaka S, Suzuki A. Sorption of Neptunium on Bentonite and Its Migration in Geosphere[J]. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 1999, 155 (2-3): 137-143.
- [71] 周抗寒,李国鼎.²³⁹Pu、²⁴¹Am、⁹⁹Tc 和 ¹³⁷Cs 在高压实缓冲材料中的扩散系数[J].辐射防护,1998, 18 (2): 110-118.
- [72] 周抗寒.高压实缓冲材料渗透、膨胀特性及核素迁移规律[D].北京:清华大学,1995.
- [73] Curtius H, Paparigas Z, Kaiser G. Sorption of Selenium on Mg-Al and Mg-Al-Eu Layered Double Hydroxides[C]//Proceedings of the Eleventh International Conference on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere, Munich, Germany, Aug. 26-31, 2007: 651-655.
- [74] Borrelli R A, Ahn Joonhong. Radionuclide Transport in a Water-Saturated Planar Fracture With Bentonite Extrusion[J]. Nucl Technol, 2008, 164 (3): 442-464.
- [75] Holtta P, Poteri A, Siitari-Kauppi M, et al. Retardation of Mobile Radionuclides in Granitic Rock Fractures by Matrix Diffusion[J]. Physics and Chemistry of the Earth, 2008, 33 (14-16): 983-990.
- [76] Hu Q H, Mori A. Radionuclide Transport in Fractured Granite Interface Zones[J]. Physics and Chemistry of the Earth, 2008, 33 (14-16): 1 042-1 049.
- [77] Cui D Q, Eriksen T. Reactive Transport of Sr, Cs and Tc Through a Column Packed With Fracture-Filling Material[J]. Radiochimica Acta, 1998, 82: 287-292.
- [78] 刘春立.放射性、环境与健康:放射化学一隅[J].大学化学,2008, 23 (5): 11-15.