

花岗岩介质中 Sr、I 和 Pu 的扩散行为

党海军^{1,2}, 侯小琳², 刘文元¹, 刘冲¹, 徐江¹

1. 西北核技术研究所, 陕西 西安 710024;

2. Center for Nuclear Technologies, Technical University of Denmark, Roskilde DK-4000, Denmark

摘要:采用穿透扩散法研究了 Sr、I 和 Pu 等 3 种元素在花岗岩中的扩散行为, 获得了 26 °C 下离子强度为 0.1 mol/L 的中性水溶液环境中 Sr、I 和 Pu 的有效扩散系数分别为 $(1.24 \pm 0.03) \times 10^{-13}$ 、 $(2.88 \pm 0.02) \times 10^{-13}$ 、 $(1.33 \pm 0.52) \times 10^{-13}$ m²/s。研究表明, 水溶液与花岗岩平衡过程中核素的存在形态与化学种态的变化对其迁移行为有明显影响。

关键词:扩散; 花岗岩; 吸附; 高放废物处置; Sr; I; Pu

中图分类号: TL942.1 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9950(2014)01-0053-07

doi: 10.7538/hhx.2014.36.01.0053

Diffusivity of Sr, I and Pu in Granite With Through-Diffusion Experiment

DANG Hai-jun^{1,2}, HOU Xiao-lin², LIU Wen-yuan¹, LIU Chong¹, XU Jiang¹

1. Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China;

2. Center for Nuclear Technologies, Technical University of Denmark, Roskilde DK-4000, Denmark

Abstract: The diffusion behavior of Sr, I and Pu in granite was investigated by through-diffusion experiment. The effective diffusion coefficients of Sr, I and Pu in granite at 26 °C were determined to be $(1.24 \pm 0.03) \times 10^{-13}$ m²/s, $(2.88 \pm 0.02) \times 10^{-13}$ m²/s and $(1.33 \pm 0.52) \times 10^{-13}$ m²/s, respectively. It is also observed that the speciation and species distribution of element have significant effects on its diffusion behavior.

Key words: diffusion; granite; sorption; high-level radioactive waste disposal; Sr; I; Pu

深地质处置是目前认为最有前景的高放废物处置方法之一^[1]。深埋于地下的核废物包装破损后, 放射性核素将随地下水渗透扩散到围岩介质中, 这一动态过程包括由于核素浓度差别引起的扩散、核素随地下水流的渗透迁移和多孔介质岩石孔隙表面力不平衡引起的吸附等。围岩裂隙是核素迁移的主要通道, 而核素在矿物表面的吸附和向岩石基体内部微孔中的渗透扩散则是阻滞核素迁移的主要过程^[2]。花岗岩是目前公认的比

较适合于废物处置的地质介质之一, 我国高放废物深地质处置候选场址的甘肃北山就是花岗岩环境。因此, 研究放射性核素在花岗岩中的扩散行为可以为高放废物处置库的方案设计、安全评估、以及区域放射性影响评价提供基础数据。

放射性核素在花岗岩中的迁移研究很早就受到人们的关注。Ménager 等^[3]于 1992 年对现场模拟研究花岗岩中放射性核素的迁移进行总结, 指出水岩相互作用对核素迁移具有重要作用; Baik 等^[4]

则对韩国高放废物处置评估中的核素迁移和阻滞的数据进行了总结和编译。核素在地质介质中的吸附行为研究可以通过静态批式法(batch experiment)测定分配系数,也可以通过穿透扩散(through diffusion experiment)实验研究其动态吸附性能。陈涛^[5]研究了¹²⁵I在花岗岩中的吸附扩散模型,采用一级动力学吸附和等温线性吸附混合模型较好地模拟了实验结果。Park等^[6]采用穿透扩散实验研究了氟、氯、铀、钍、镭、铯、钡等多种不同类型的核素在花岗岩中的扩散行为、吸附机理以及酸度和碳酸根浓度的影响,结果表明,核素向岩石基体中的扩散在迁移中有着重要作用,而迁移过程中地球化学条件的变化也不断改变着核素的吸附行为。Tao等^[7]采用穿透扩散和外向扩散实验(through-diffusion and out-diffusion)测定了环境条件下Np(V)在孔隙水和粘土中的扩散系数分别为 $(6.0 \pm 1.0) \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ 和 $(6.9 \pm 1.1) \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 。刘春立等^[8-9]研究了弱吸附核素⁹⁹Tc(TcO_4^-)、¹²⁵I和³H(HTO)在花岗岩中的扩散,初步分析了扩散系数与扩散物种分子量的相关性。Lee等^[10]研究了试样厚度对HTO和Cs在粉碎花岗岩中吸附扩散的影响,发现不同厚度下实验得到的有效扩散系数有明显差异。由于实验室条件限制,关于Pu的扩散实验工作一直相对较少。Yamaguchi^[11]采用穿透扩散法测定了0.1 mol/L NaHCO_3 (pH=9.3)溶液中U和Pu的碳酸根络合物 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ 和 $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ 在花岗岩中的有效扩散系数分别为 $(1.42 \pm 0.24) \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 和 $(5.1 \pm 2.0) \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$,碳酸根的存在使核素迁移性明显增强。本工作拟以我国西北部的花岗岩介质为对象,采用静态穿透扩散实验测定Sr、I和Pu的扩散系数,并对其在花岗岩介质中的扩散行为进行比较。

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

实验所用化学试剂均为市售分析纯,不经过进一步纯化,用去离子水(18.2 M Ω ·cm, Sartorius Stedim Biotech公司的arium® 611VF纯水器发生)配制成需要的溶液。X射线荧光光谱仪(XRF),荷兰Panalytical公司;IRIS Intrepid II XSP型等离子体发光光谱仪、X Series II型等离子体质谱仪(ICP-MS),美国Thermo Fisher Scientific公司;NaI(Tl)谱仪,法国Canberra公司。

1.2 扩散实验

岩石样品取自中国西北花岗岩地区,X射线荧光光谱分析(XRF)和等离子体原子发射光谱法(ICP-AES)分析表明,矿物组成以石英和斜长石为主,孔隙率约1.9%,化学成分以 Al_2O_3 、 CaCO_3 、 Fe_2O_3 、 Na_2O 、 K_2O 、 MgO 为主,实验前后花岗岩中主要化学组成对比列入表1。样品加工成直径为60 mm、厚度为5 mm和10 mm的两种规格的样片。实验前,试样用去离子水浸泡20 d以上,除去微孔中的空气,然后用橡胶密封圈固定在图1所示的圆柱形扩散池的上下游溶液池之间,下游池的体积约为165 mL。上游池中的溶液为0.010 23 mol/L的 SrCl_2 和0.010 57 mol/L的KI,同时加入放射性核素⁸⁵Sr($1.6 \times 10^5 \text{ Bq}$, SrCl_2)、¹²⁵I($6.5 \times 10^6 \text{ Bq}$, KI)和²⁴²Pu(100 Bq, Pu^{4+} , 2 mol/L HNO_3 体系),溶液pH=7.0,总离子强度为0.107 mol/L。下游池采用KCl配制的离子强度为0.107 mol/L的平衡液(等渗液)。两池保持液位平齐,以消除液位差引起的宏观溶液扩散。扩散池置于恒温水槽中,经过一定的时间从下游池取出5~10 mL样品进行 γ 计数测量和质谱分析,测量Sr、I和Pu的浓度随时间的变化。取样后补充等渗液保持两池液位平齐。在下游池累积浓度的计算中,对取样过程中的稀释效应进行相应校正。

1.3 Sr、I和Pu的浓度测定

¹²⁵I和⁸⁵Sr伽玛计数使用伽马探测器测量,测量在完全相同的几何和溶液介质条件下进行,并用同一个溶液进行仪器的效率监督,所有数据校正到实验开始时刻。稳定的Sr和I浓度测量,采用稀释后直接用电感耦合等离子体质谱仪用外标法测量,其中Sr的测量用 $\varphi=2\%$ HNO_3 溶液稀释,以¹¹⁵In为内标核素;I的测量用 $\varphi=1\%$ $\text{NH}_3\text{H}_2\text{O}$ 溶液稀释,以¹³³Cs为内标核素。测量中间隔插入空白样品和标准溶液($2.00 \times 10^{-9} \text{ g/mL}$)以确保测量结果的可靠性。在每次ICP-MS测量前,对仪器条件进行优化以获得较好的响应。样品测量不确定度通常小于5%($K=2$)。²⁴²Pu的分析在文献[12]方法基础上根据样品特点进行了简化:用²³⁹Pu作为稀释剂,采用 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沉淀富集Pu,去除基质干扰,再经过AG1 $\times$ 4阴离子交换树脂纯化除U,收集液蒸干,用 $\varphi=2\%$ HNO_3 溶液定量溶解后,加入¹¹⁵In内标后用ICP-MS测量。

表 1 实验前后花岗岩中主要化学组成对比

Table 1 Chemical composition of the granite before and after diffusion experiment

化学组成 (Chemical composition)	10 ⁶ w		
	原始矿样 (Original rock sample)	5 mm 岩片实验后 (Sample after 5 mm test)	10 mm 岩片实验后 (Sample after 10 mm test)
Al ₂ O ₃	1.40×10 ⁵	1.20×10 ⁵	1.40×10 ⁵
B	90	50	60
Ba	6.0×10 ²	1.00×10 ³	9.0×10 ²
CaO	1.80×10 ⁴	1.60×10 ⁴	1.80×10 ⁴
Ce	90	80	90
Co	40	15	20
Cr	1.20×10 ²	75	75
Cu	3.60×10 ²	25	90
Fe ₂ O ₃	1.00×10 ⁵	4.50×10 ⁴	5.50×10 ⁴
Hf	15	10	10
K ₂ O	2.80×10 ⁴	3.50×10 ⁴	3.50×10 ⁴
La	40	40	40
Li	15	10	10
MgO	2.30×10 ⁴	1.70×10 ⁴	2.00×10 ⁴
Mn	1.00×10 ³	1.00×10 ³	8.8×10 ²
Na ₂ O	3.00×10 ⁴	3.10×10 ⁴	3.20×10 ⁴
Nb	20	20	15
Ni	60	20	35
P	4.80×10 ²	5.00×10 ²	6.00×10 ²
Pb	1.20×10 ²	30	50
Rb	45	20	50
Sc	15	10	10
Sr	1.20×10 ²	1.70×10 ²	1.50×10 ²
Ta	5.00	2.00	2.00
Th	60	60	60
Ti	5.50×10 ³	4.00×10 ³	4.50×10 ³
V	1.30×10 ²	60	70
Y	20	20	20

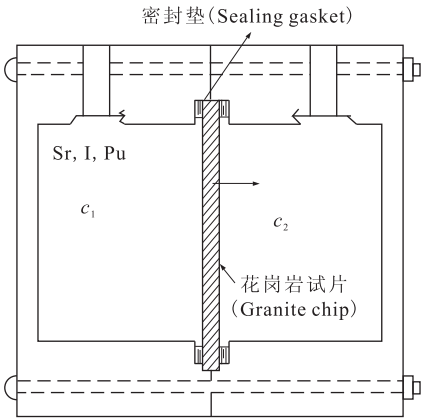


图 1 扩散池示意图

Fig. 1 Diagram of the diffusion cell

2 结果与讨论

2.1 核素在花岗岩中的吸附及在溶液中的种态分布

XRF 分析表明,扩散实验前后矿物组成变化不大,仍然以石英为主,质量分数占 60%左右,其次为斜长石,约占 13%~18%。钾长石的质量分数从 6%降低到 4%。但光谱半定量分析表明,实验后岩石样品中的 K 含量和 Sr 含量明显增大(见表 1),主要是溶液中的 K 扩散和包容在岩石结构中,Sr 可能吸附或沉淀于花岗岩空隙中;而 Fe、Ni、Pb、Rb、Ti、B、Co 等元素含量明显减小,表明这些元素容易浸出。将实验后的岩片进行分层分析,采用同位素稀释法测定了样品中的 I 和

Pu,结果表明,I 和 Pu 在岩石中均有明显吸附,其含量从上游面到下游面呈指数降低趋势。

利用 MINTEQ. V4 数据库,采用地球化学热力学软件 PHREEQC-2 FOR WINDOWS (Ver 2. 12. 1)计算了不同实验上游池和下游池条件下, Sr、I 和 Pu 3 种元素在不同水环境中的种态及总浓度。计算中不考虑反应动力学因素,将溶液与花岗岩中主要矿物按照实验量比例接触,获得平衡后溶液中各元素的主要种态和可能的固相变化。实验母液(上游池溶液)和典型下游池溶液中主要元素的总浓度变化列入表 2。由表 2 可知,溶液与花岗岩长期接触后呈碱性,pH 值明显升高,而氧化还原电位降低,I 和 Pu 这些变价元素主要以低价态存在。另外,除了花岗岩中的 Sr、

Ca、S 和 Si 有明显溶解外,溶液中的 Pu 浓度显著减小,说明 Pu 在花岗岩孔隙中的吸附(沉淀)明显。而实验结果表明,上游池中 I 的浓度基本不变,Sr 的浓度稍有下降,Pu 的浓度则从 1.10×10^{-9} mol/L 降低为 1.64×10^{-10} mol/L。

表 3 是实验溶液中 Sr、I 和 Pu 3 种元素的主要种态计算结果。由表 3 可知,与花岗岩平衡的溶液中,由于体系氧化还原电位的降低,I 全部以 I^- 形式存在,Pu 也出现了少量 Pu(Ⅲ)(种态 $Pu(OH)_4^-$);同时,随着 pH 的增大, OH^- 离子浓度增大,同价态 Pu 的高 OH 配位数络合态如 $Pu(OH)_5^-$ 的比例从原母液中的 76% 增大至几乎 100%,Sr 也出现了氢氧根配合离子 $SrOH^+$ 。由此可见,核素在花岗岩介质中的扩散必然与核素

表 2 与花岗岩平衡后溶液中 Sr、I、Pu 的浓度变化计算结果
Table 2 Chemical composition of solutions before and after contacting with granite sample mol/L

元素/项目 (Element/item)	实验母液(Feed solution)		下游池溶液(Downstream solution)	
	平衡前	平衡后	平衡前	平衡后
	(Before equilibrium)	(Equilibrium with granite)	(Before equilibrium)	(Equilibrium with granite)
pH	7. 0	10. 9	7. 0	10. 2
Eh/V	0. 24	−0. 56	0. 24	−0. 50
Sr	1.03×10^{-2}	1.26×10^{-2}	2.07×10^{-5}	1.19×10^{-2}
I	1.06×10^{-2}	1.06×10^{-2}	2.06×10^{-5}	2.06×10^{-5}
Pu	1.10×10^{-9}	1.04×10^{-12}	1.76×10^{-12}	2.13×10^{-13}
Cl	2.06×10^{-2}	2.06×10^{-2}	1.08×10^{-1}	1.08×10^{-1}
K	1.05×10^{-2}	3.62×10^{-7}	1.08×10^{-1}	3.87×10^{-2}
Ca	0	2.38×10^{-2}	0	2.38×10^{-2}
S	0	1.94×10^{-2}	0	6.98×10^{-4}
Si	0	1.75×10^{-3}	0	4.35×10^{-4}

表 3 实验溶液中 Sr、I、Pu 的主要种态计算结果
Table 3 Main chemical species of Sr, I and Pu in solutions

元素 (Elements)	配制的母液		花岗岩平衡后的母液		下游池溶液	
	(Feed solution as prepared)		(Feed solution in equilibrium with granite)		(Downstream solution)	
	种态(Species)	$\varphi/\%$	种态(Species)	$\varphi/\%$	种态(Species)	$\varphi/\%$
I	IO_3^-	100	I^-	100	I^-	100
Pu	$Pu(OH)_5^-$	76	$Pu(OH)_5^-$	≈ 100	$Pu(OH)_5^-$	≈ 100
	$Pu(OH)_4$	19. 83	$Pu(OH)_4^-$	0. 039	$Pu(OH)_4^-$	0. 026
	$Pu(OH)_3^+$	3. 82				
	$Pu(OH)_3CO_3^-$	0. 017				
Sr	Sr^{2+}	100	Sr^{2+}	99. 7	Sr^{2+}	99. 9
			$SrOH^+$	0. 3	$SrOH^+$	0. 1

在溶液中的种态分布有关,这一点必须在实验结果分析时给予考虑。

2.2 5 mm 岩片中的扩散行为

Sr 和 I 扩散通过 5 mm 岩片时,下游池中的浓度变化结果示于图 2,并对比了稳定核素和放射性示踪剂核素的扩散行为。由图 2 可以看出,从第 1.4×10^4 min(约 10 d)到第 8.6×10^4 min(约 60 d),Sr 和 I 的浓度均线性增加。离子通过岩石的交联多孔的扩散一般认为与其在溶液中的本体扩散性能成正比,同时与孔的几何参数有关,包括孔隙率、迂回因子和限制因子等。对于本工作的穿透扩散实验,可以将花岗岩看作孔隙介质按照一维扩散模型处理^[10]。根据 Fick 定律:

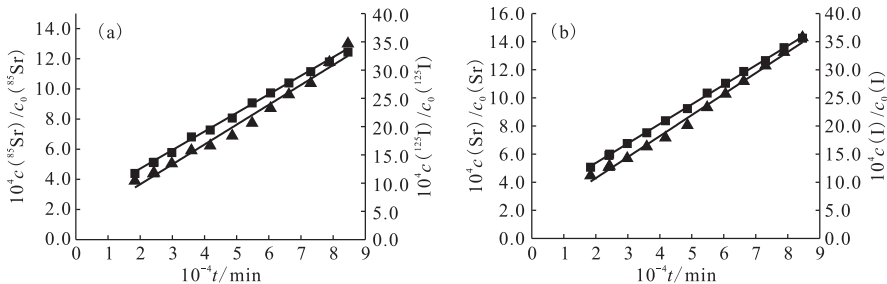
$$\frac{\partial c}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} = \frac{D_e}{\alpha} \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (1)$$

$$\alpha = \theta + \rho_b K_d \quad (2)$$

式中: c 为 t 时刻岩石厚度方向 x 处的核素浓度, D_a 为核素在花岗岩中的表观扩散系数, D_e 为核素的有效扩散系数, α 为容量因子, θ 为花岗岩作为孔隙介质处理的孔隙率, ρ_b 为花岗岩密度, K_d 为核素在花岗岩的吸附分配系数。边界条件为:

$$\begin{cases} c(x, 0) = 0, 0 < x < L \\ c(0, t) = c_0 \\ \frac{\partial c(L, t)}{\partial t} = 0 \end{cases} \quad (3)$$

式中: L 为样品厚度, c_0 为上游池溶液核素的初始浓度。由于下游池中核素的浓度远小于上游池中的核素浓度,当时间足够长时可假设扩散出下游边界的核素在溶液中混合均匀,则下游池的浓度可用如下直线表示:



(a): $\blacktriangle$ —Sr, $y = (1.32 \pm 0.05) \times 10^{-8} x + (1.04 \pm 0.29) \times 10^{-4}$, $r = 0.99$;
 $\blacksquare$ —I, $y = (3.29 \pm 0.01) \times 10^{-8} x + (5.93 \pm 0.01) \times 10^{-4}$, $r = 0.9999$
(b): $\blacktriangle$ —Sr, $y = (1.50 \pm 0.04) \times 10^{-8} x + (1.30 \pm 0.20) \times 10^{-4}$, $r = 0.997$;
 $\blacksquare$ —I, $y = (3.48 \pm 0.03) \times 10^{-8} x + (6.43 \pm 0.14) \times 10^{-4}$, $r = 0.9999$

图 2 26 °C 下 Sr 和 I 通过 5 mm 厚花岗岩片扩散至下游池放射性核素(a)和稳定核素(b)的浓度变化

Fig. 2 Radionuclide(a) and stable isotopes(b) concentrations of Sr and I in downstream cell diffusing through 5 mm granite chip at 26 °C

$$c(t)/c_0 = \frac{\alpha A}{VL} \left(D_a t - \frac{L^2}{6} \right) \quad (4)$$

式中: V 和 A 分别为下游池溶液体积(165 cm^3)和花岗岩样品有效扩散截面(16.6 cm^2)。通过实验测量不同时间下游池中核素的浓度获得有效扩散系数。设斜率为 k , 则:

$$D_e = kVL/A \quad (5)$$

对实验数据进行线性拟合,可以求出 Sr 和 I 在花岗岩中的有效扩散系数分别为 $(1.24 \pm 0.03) \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 和 $(2.88 \pm 0.02) \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$,放射性测量结果给出的 ^{85}Sr 和 ^{125}I 的有效扩散系数分别为 $(1.09 \pm 0.05) \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 和 $(2.73 \pm 0.04) \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 。因此,可以认为扩散中同位素之间没有明显差别。

图 3 是 Pu 扩散通过 5 mm 岩片时下游池中的浓度变化。由图 3 可知,在扩散实验开始的前 2.2×10^4 min(约 15 d),Pu 的浓度增大,之后一直稳定到第 6.0×10^4 min(约 42 d)后,浓度又有所上升。具体机理可能与 Pu 在上下游池中的吸附沉淀有关。由于实验体系为中性,且岩片试样中含有还原性矿物成分,使得 Pu 可能在介质表面缓慢还原至 +4 价并形成胶体形态而被吸附,表 3 的化学热力学模拟结果证明了吸附/沉淀过程的存在。另外,上述热力学计算固相矿物组成结果表明,含 Pu 溶液与岩石平衡后有 PuO_2 晶体相生成,其中上游池中几乎 100% 的 Pu 沉淀,而下游池由于总浓度很低,沉淀 Pu 约为 90%。这种计算完全基于热力学平衡,而由于形态转化和吸附过程的动力学较慢,实际情况下的过程更为复杂:实验开始阶段下游池的浓度线性增大,随着上游

浓度因吸附显著降低,下游池随着 Pu 浓度的升高也开始发生池壁吸附等,约 15 d 后下游池中 Pu 的总浓度在一段时间内保持基本不变。大约 42 d 后,下游浓度又开始增加,这可能是池壁吸附到一定状态,胶体态的 Pu 开始分散到溶液相,且其浓度随着扩散的继续而增加。但由于实验没有分离胶体态 Pu,图中总 Pu 浓度的变化不能给出合理的解释,需要今后深入研究。如不考虑吸附沉淀过程的影响,用起始阶段实验数据进行拟合,得到的 $\text{Pu}(\text{OH})_5^-$ 在花岗岩中的有效扩散系数为 $(1.33 \pm 0.52) \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 。

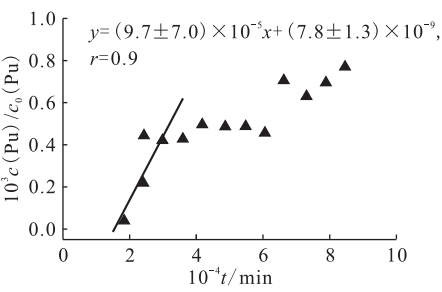


图 3 26 °C 下 Pu 通过 5 mm 厚花岗岩片扩散至下游池的浓度变化
Fig. 3 Concentration of Pu in downstream cell diffusing through 5 mm granite chip at 26 °C

2.3 10 mm 岩片实验结果

在 10 mm 厚花岗岩扩散实验中间将温度从 26 °C 调整到 20 °C,以考察温度对扩散系数的影响。图 4 显示了 Sr 和 I 扩散通过 10 mm 岩片时下游池中的浓度变化。一般来说,扩散实验中由

于介质中微孔的滞留和吸附,下游浓度的增长存在一个诱导期,在诱导期之后浓度大致线性上升,如图 4 中 I 的扩散穿透曲线可以明显看到这一点,而在 5 mm 厚岩片的实验中由于首次取样时间过晚,没有观察到诱导期。而低温下, Sr 的扩散系数很低,下游池溶液浓度测量的不确定度很大,数据线性很差(图 4(b))。另外,可以看到,温度变化后扩散速率明显下降,按照该斜率可以获得其有效扩散系数,与 5 mm 花岗岩片的实验结果一起列入表 4。理论上,有效扩散系数与实验所用的岩片厚度和初始浓度无关。但从表 4 的数据看出,在相同温度下 Sr 和 I 通过 10 mm 厚花岗岩片的扩散系数约是通过 5 mm 厚花岗岩片的 1/10,这可能与一维扩散假设的近似有关。文献[10]中也发现了有效扩散系数随试样的长径比变化的现象。本工作测定的 26 °C 下 Sr、I 和 Pu 在花岗岩中的有效扩散系数在 $10^{-14} \sim 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 量级,与其他研究的实验值或理论推荐值一致^[4,6,11]。

3 结 论

采用静态穿透扩散实验方法,获得了不同条件下 Sr、I 和 Pu 等元素在花岗岩介质中的有效扩散系数在 $10^{-14} \sim 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 量级,与文献结果一致。核素的扩散行为与其在体系中的存在形态和化学种态有关,对于易吸附的核素如 Pu,其扩散过程与其在岩石(孔隙)表面的吸附沉淀过程同时进行,且扩散池壁的吸附以及 Pu 的水解胶体生成等都会影响实验测量的 Pu 浓度数

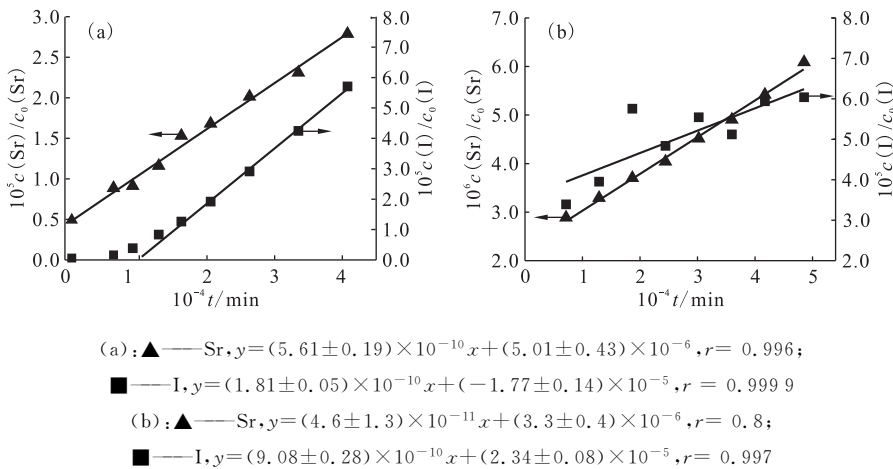


图 4 26 °C (a) 和 20 °C (b) 下 Sr 和 I 扩散通过 10 mm 厚花岗岩片后溶液浓度变化
Fig. 4 Concentrations of Sr and I in downstream cell diffusing through 10 mm granite chip at 26 °C (a) and 20 °C (b)

表 4 Sr、I 和 Pu 穿透岩片中的有效扩散系数
Table 4 Effective diffusion coefficients of Sr, I and Pu in granite

元素 (Elements)	样品厚度 (Sample thickness)/mm	t/℃	D _e / (m ² · s ⁻¹)
Sr	5	26±0.5	(1.24±0.03)×10 ⁻¹³
Sr	10	26±0.5	(9.38±0.24)×10 ⁻¹⁵
Sr	10	20±0.5	(7.64±1.1)×10 ⁻¹⁶
I	5	26±0.5	(2.88±0.02)×10 ⁻¹³
I	10	26±0.5	(3.01±0.04)×10 ⁻¹⁴
I	10	20±0.5	(1.50±0.02)×10 ⁻¹⁴
Pu	5	26±0.5	(1.33±0.52)×10 ⁻¹³

据,因此其扩散行为不能用简单的模型分析,需要开展更系统的实验研究和理论模拟以获得更明确的认识。

致谢:感谢丹麦技术大学核技术中心 Per Roos 博士和 Nielson Sven 博士在实验方面的帮助。

参考文献:

[1] 王驹,陈伟明,郭永海,等. 高放废物地质处置选址和厂址评价研究进展[C]//国防科工委高放废物地质处置研讨会论文集. 北京:国防科工委,2005:43-49.

[2] Keita O, Akira S, Kenji N, et al. A method for determining both diffusion and sorption coefficients of rock medium within a few days by adopting a micro-reactor technique[J]. Appl Geochem, 2008, 23: 2130-2136.

[3] Ménager M T, Petit J C. The migration of radionuclides in granite: a review based on natural analogues[J]. Appl Geochem, 1992, (Suppl 1): 217-238.

[4] Baik M H, Lee S Y, Lee J K, et al. Review and compilation of data on radionuclide migration and retardation for the performance assessment of a HLW repository in Korea[J]. Nucl Eng Technol, 2008, 40(7): 593-606.

[5] 陈涛,田文字,孙茂,等. ¹²⁵I 在甘肃北山深部花岗岩中的吸附扩散模型[C]//第二届废物地下处置学术

研讨会论文集. 甘肃敦煌:核工业北京地质研究院, 2008:353-361.

[6] Park C K, Baik M H. Diffusion of some chemical species through a granite considering their geochemical properties[J]. Korean J Chem Eng, 2009, 26 (5): 1279-1285.

[7] Tao Wu, Ameyri S, Drebert J, et al. Neptunium(V) sorption and diffusion in opalinus clay[J]. Environ Sci Technol, 2009, 43: 6567-6571.

[8] 刘春立,王祥云,高宏成,等. ⁹⁹TcO₄⁻, HTO 在花岗岩中的扩散研究[J]. 核化学与放射化学,2003, 25 (4):204-209.

[9] 吕传君,刘春立,王祥云,等. 衰变和吸附对放射性核素在花岗岩中扩散曲线的影响[J]. 核化学与放射化学,2007,29(4):193-199.

[10] Lee C P, Tsai S C, Jan Y L, et al. Sorption and diffusion of HTO and cesium in crushed granite compacted to different lengths[J]. J Radioanal Nucl Chem, 2008, 275(2): 371-378.

[11] 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 Contaminant Hydrology, 1998, 35: 55-65.

[12] Qiao J X, Hou X L, Roos P, et al. Rapid isolation of plutonium in environmental solid samples using sequential injection anion exchange chromatography followed by detection with inductively coupled plasma mass spectrometry[J]. Anal Chim Acta, 2011, 685(2): 111-119.