

高放废物地质处置中的地质、水文 地质、地球化学关键科学问题

郭永海, 王 驹

(核工业北京地质研究院, 北京 100029)

摘要: 深地质处置是目前国际上普遍接受的高放废物最终处置方案。该方案对处置库采用人工屏障和天然屏障的“多重屏障系统”概念设计。天然屏障是处置库长期安全至关重要的保证。如何选择可靠的天然屏障, 主要靠地质、水文地质、地球化学等工作来完成。通过对国内外高放废物地质处置研究的回顾, 阐述高放废物地质处置研究与地质、水文地质、地球化学相关的关键科学问题, 重点介绍预选场地地质、水文地质、地球化学研究的主要内容、主要方法和手段, 讨论目前国际上关注的关键水文地质、地球化学问题, 如水文地质、水文地球化学模拟、核素在天然介质中迁移、地下水-废物-岩石相互作用、岩体地球化学封闭性等。

关键词: 环境地质学; 高放废物; 地质处置; 关键科学问题

中图分类号: X 141; TL 942

文献标识码: A

文章编号: 1000-6915(2007)增 2-3926-06

KEY SCIENTIFIC ISSUES OF GEOLOGY, HYDROGEOLOGY AND GEOCHEMISTRY IN HIGH-LEVEL RADIOACTIVE WASTE GEOLOGICAL DISPOSAL

GUO Yonghai, WANG Ju

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

Abstract: The deep geological disposal scheme is widely accepted for high-level radioactive waste disposal in the world. The conceptual design of “multi-barrier system”, man-made and natural barriers, is adopted for disposal repository in the scheme. The natural barrier is a very important safe guarantee for repository operation in long term. The selection of reliable natural barrier depends mainly on the work related to geology, hydrogeology and geochemistry. Through the review of high-level radioactive waste disposal research in home and abroad, the key scientific issues related to geology, hydrogeology and geochemistry in the high-level radioactive waste disposal research are explained in detail; and the mainly content, method and means used in the investigation for disposal site are introduced. The hydrogeological, geochemical issues regarded in the world at present, such as hydrogeological and hydrogeochemical modelling, migration of radionuclide in the natural medium, the interaction among groundwater-waste-rock, the geochemical closeness of rock mass and so on, are also discussed.

Key words: environmental geology; high-level radioactive waste; geological disposal; key scientific issues

1 引 言

对于高放废物的最终处置, 目前国际上普遍接

受的可行方案是深地质处置, 即把高放废物埋在距离地表深 400~1 000 m 的地质体中, 使它永久与人类的生存环境隔离。埋藏高放废物的地下工程即称为高放废物处置库。高放废物处置库采用的是“多

收稿日期: 2007-03-07; **修回日期:** 2007-05-16

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(40672155); 国防科工委高放废物处置项目

作者简介: 郭永海(1957-), 男, 博士, 1982年毕业于长春地质学院水利工程系水文地质专业, 现任研究员, 主要从事放射性废物处置及水文地质方面的研究工作。E-mail: guoyonghai@163.net

重屏障系统”设计,即把废物贮存在废物罐中,外面包裹缓冲材料,再向外为围岩。一般把废物体、废物罐和缓冲材料称为工程屏障,把周围的地质体称为天然屏障。

处置库开发是一个长期的系统化的过程,一般需要经过处置库选址和场址评价,地下实验室研究,处置库设计、建设和关闭等阶段。各阶段的中心任务不同,对应不同的阶段,都需要配合有不同的基础研究工作。

处置库系统中核素释放的主要途径包括:被地下水溶解并带出;被岩浆熔融体带到地表;风化剥蚀使处置库裸露;人类对处置库的无意揭露。这些构成了主要的不安全因素。要使处置库系统不安全因素的作用减小到最低限度,首先是要选择一个合适的场址,其次是设计有效的工程屏障。然而,处置库系统中的工程屏障一般认为仅可以维系数千年的时间,最终不可避免地要丧失隔离性能,因此,天然屏障是处置库长期安全至关重要的保证。如何选择可靠的场址,则主要靠地质、水文地质、地球化学等地质工作来实现。本文对高放废物地质处置中的地质、水文地质、地球化学关键问题进行初步的剖析和说明^[1, 2]。

2 高放废物地质处置中的地质学关键问题

在高放废物处置库选址中涉及的地质学问题很多,如地壳稳定性问题、构造地质问题、岩石和矿物学问题、地震和火山学问题、地质发展史问题等,这些问题都必须在研究中加以明确。其中最关键的问题包括以下几个方面。

2.1 地壳稳定性问题

这是选址过程中需要回答的首要问题。主要涉及:

(1) 深部地壳结构。这是引起地壳运动的主要原因。主要通过地壳重力梯度变化、地壳厚度和上地幔深度、地球物理测量、遥感等方面的研究获得信息^[3, 4]。

(2) 深大断裂及其活动性研究。是评价区域地壳稳定性的重要依据,深大断裂年龄越新,地壳完整性越差,地壳的稳定性也就越差。主要通过地球物理测量、遥感、地震测量等方法开展工作。

(3) 新构造运动研究。是评价区域地壳稳定性的关键因素。主要通过地震监测、大地形监测、断

层年龄测定、地质、地貌、遥感等方法加以解决。

(4) 构造应力场研究。了解构造应力的继承、演化和发展,确定不同时代、不同成因构造体系的分布规律。

(5) 地震、火山活动研究。

通过以上几个方面的综合研究,为确定预选场地及其周围一定范围内的地壳稳定性提供依据。

2.2 岩石学问题

主要研究岩石均一性问题、岩石抵抗构造应力的坚韧性问题、岩石受热变化及次生矿物形成等问题。这些问题都与岩体的隔离性能直接相关,构成了以往高放废物地质处置库围岩选择中的重要地质问题。

通过大量研究工作,目前,结晶岩、岩盐、泥岩作为处置库围岩已经得到公认(见表 1)。在结晶岩中,认为对构造负荷承受能力最强的韧性坚固型岩石,如玄武岩、辉绿岩、辉长岩、角闪岩是最好的围岩类型。

表 1 一些国家和地区高放废物处置库选择的围岩类型
Table 1 Surrounding rock types of high-level radioactive waste repository in some countries and regions

| 国家(地区) | 围岩类型 | 国家(地区) | 围岩类型 |
|--------|----------|--------|-----------|
| 中国 | 花岗岩 | 罗马尼亚 | 盐岩 |
| 美国 | 凝灰岩 | 西班牙 | 黏土岩、花岗岩 |
| 加拿大 | 花岗岩 | 南非 | 黏土岩、花岗岩 |
| 芬兰 | 花岗岩 | 瑞典 | 花岗岩 |
| 法国 | 泥岩、花岗岩 | 瑞士 | 泥灰岩、花岗岩等 |
| 德国 | 岩盐 | 中国台湾 | 花岗岩、页岩、泥岩 |
| 印度 | 花岗岩 | 俄罗斯 | 硬岩 |
| 日本 | 结晶岩或沉积岩 | 荷兰 | 岩盐、黏土岩 |
| 韩国 | 中生代火成岩 | 波兰 | 页岩、黏土岩 |
| 阿根廷 | 黏土岩、花岗岩等 | 捷克 | 花岗岩 |

美国确定了内华达州 Yucca 山凝灰岩为高放废物处置库围岩。

2.3 断裂构造地质学问题

主要工作包括:

(1) 确定场地内所有断裂的位置、产状、长度、深度和最新活动年代,为场地构造不均一性、场地边界识别、地质模型建立及场地地壳稳定性确认提供依据。主要通过地面地质调查、钻孔勘察、遥感、

地球物理测量等途径来实现。

(2) 裂隙网络系统研究, 确定场地裂隙空间分布、密度、连通程度等裂隙特征。主要通过地面裂隙测量、统计、钻孔勘察等途径来实现。

3 高放废物地质处置中的水文地质关键问题

在场址选择过程中, 水文地质是一个非常重要的研究方面。因为在核废处置库关闭和重新饱和地下水后, 随着时间的推移和地下水对工程屏障的侵蚀破坏, 放射性核素最终都将溶解于地下水中, 并随地下水穿过地质圈向生物圈迁移。溶解于地下水中的核素一方面随水流迁移, 另一方面, 在流动过程中, 又可能与水溶液中的某些化学成分发生化学反应, 从而减缓核素的迁移速度, 延长它们在地下水中滞留的时间。由此可见, 地下水的流速、流向和化学成分等水文地质因素对核素返回生物圈的过程起着极其重要的影响和控制作用。因此, 水文地质调查和研究, 成为高放废物处置库场址选择中十分重要的研究内容。并且由于要求的研究精度高, 在许多方面都面临着极大的挑战, 其关键问题可以归纳为以下几个方面。

(1) 钻孔水文地质勘察、试验和测试

水文地质钻探是水文地质调查最重要的勘察手段之一。由于高放废物处置库概念设计深度为500~1 000 m, 水文地质钻探是必不可少的内容。其主要意义在于, 揭露地下水, 确定水位、含水裂隙分布位置及空间变化、测定含水岩体的水文地质参数、采集地下水样品进行水质分析、进行地下水动态的长期观测。总之, 地水文质钻探是获取处置库选址、评价所需水文地质基础数据的主要途径。由于处置库围岩大多为低渗透岩体, 如美国在确定Yucca山处置场地过程中, 共施工约150个钻孔; 法国场址评价共施工了约50个钻孔。钻进工艺上采用清水钻进、冷冻钻进、去离子水钻进等技术, 以确保地水文地质工作的开展。

钻孔内的试验和测试也在传统项目基础上不断翻新和增加。针对高放废物处置库选址研究施工的水文地质钻孔, 一般所要开展的与水文地质相关的试验和测试项目包括钻孔电视测井、钻孔雷达测井、钻孔地球物理测井, 钻孔多参数水质测井、钻孔流量测井、Packer水文地质抽水试验、Packer水文地质注水试验、Packer水文地质压水试验、钻孔跨孔

水文地质示踪试验、分层水质、水位观测等等。通过这些试验和测试, 可以获得内容丰富的水文地质信息, 但是试验和测试的设备一般都比较昂贵, 有些试验的实施也需要较多的经费和时间^[5-8]。

(2) 水文地质参数的测定

测定岩石的水文地质参数是水文地质的基础工作, 一般是通过钻孔水文地质试验来实现, 对于强渗透介质而言, 如松散介质(渗透系数一般为 $5.80 \times 10^{-3} \sim 1.16 \times 10^{-8}$ m/s), 其现场测定方法是比较成熟的, 但是, 对于低渗透介质而言(渗透系数可以小到 1×10^{-13} m/s), 水文地质参数的测定就相当困难。为此, 发达国家针对这项研究曾投入巨大的财力和物力, 研制试验设备和方法, 如美国、瑞士等国家已经在钻孔中测定出数量级在 1×10^{-13} m/s的渗透系数^[9]。

渗透系数的测试精度在很大程度上取决于钻孔水文地质试验的水平, 而水文地质试验中的关键技术又在于试验段的隔离效果以及有关数据的获取。如果止水效果不好, 那么试验的结果则不能反映试验段的真实情况, 这种试验便是失败的。目前, 发达国家在高放废物处置库选址研究中, 水文地质试验已经普遍采用Packer水文地质试验系统, 所谓Packer是一种金属管外包有橡胶套的用于止水的器具, 其原理是通过注水或注气使橡胶外套与井壁紧密接触, 使试验段与钻孔的其他部分隔离, 达到止水目的。Packer的粗细和长短各有不同, 就长度而言, 可在1 m到几十米内变化, 选用哪种长度Packer, 主要依据孔壁裂隙发育情况和研究精度而定, Packer的粗细则主要取决于钻孔孔径。在试验中如果只使用1个Packer, 则称其为单Packer试验, 如果使用了2个Packer, 则称其为双Packer试验。有时, 在较复杂的试验中, 也同时使用多个Packer, 称为多重Packer系统试验。多重Packer系统试验难度较大, 但可以同时获得几个含水带的资料。Packer水文地质试验系统设备的一次性投入较大, 但止水效果好, 且止水效果容易检验, 保证了试验数据的精度^[10]。

试验过程中温度、压力的变化是通过安装在Packer上的传感器来反映的, 由于岩石的低渗透性及在较大深度上水的高压性, 对测试设备的性能和精度提出了严格要求。由于信息量一般较大, 数据都实现计算机记录和处理。可以说Packer试验是获取低渗透介质水文地质参数最理想、最可靠的试验方法。

(3) 水流数值模拟研究

高放废物处置库预选场地的水流模拟研究是必不可少的研究内容, 因为它是野外各种水文地质调查数据、资料的最终“归宿”, 模拟结果又是场地评价的直接依据。

地下水流数值模拟分阶段和层次开展不同规模的研究。对应区域水文地质调查, 开展区域性地下水流数值模拟研究; 对应场地详细水文地质勘察, 则开展局部乃至块体规模(block scale)的地下水流数值模拟研究。

区域性地下水流数值模拟研究, 其研究区范围一般较大, 可在 1 000 km² 以上, 目的在于从宏观上增进对区域地下水流系统状态的了解, 并为较小规模的模拟提供确定地下水边界条件的基础。区域水流模拟一般以地下水流动系统理论为基础, 该理论是由加拿大水文地质学家 J. Toth(1963) 率先提出的^[6]。他指出, 在均质各向同性的潜水盆地中, 存在局部的、中间的和区域的 3 个级别的流动系统。实践应用使其不断完善和发展, 并在水文地质研究中得到了广泛的应用。模拟研究中, 为简化起见, 每一个水文地质单元都被假设为等效孔隙介质, 同时, 在模型中考虑区内最高级别的导水断裂。视资料情况, 模拟可以在剖面上进行, 也可以在平面或三维空间上进行。

局部性地下水流数值模拟研究, 研究区范围一般较小, 可在数十平方千米以内, 目的是增进对处置库建造区水文地质条件的认识, 为处置库及其环境的安全分析提供依据。与区域性地下水流数值模拟研究相同, 研究区每一个主要水文地质单元都被假设为等效孔隙介质, 可以在剖面上进行模拟, 也可以在平面或三维空间上进行模拟。所不同的是, 局部性地下水流数值模拟研究不仅考虑区内最高级别的导水断裂, 也要考虑次一级别的导水断裂。

块体规模(block scale)的地下水流数值模拟研究应在预选场地详细勘察后, 处置库的位置已初步确定的情况下进行。模拟的范围仅限于处置库及附近数平方千米以内(因此也称为处置库规模的模拟), 一般来说, 所确定的处置库应位于岩体完整的低渗透介质区域, 不能存在规模较大的导水断裂, 但小规模导水裂隙的存在是难以避免的。在这样的低渗透块体中, 地下水流速和流向的分布主要受小规模导水裂隙几何形态、位置及水力性质的控制。因此, 要模拟块体规模地下水的流动, 首先必须查清裂隙的发育特征及导水性质, 形成裂隙网络。在这种规模

的模拟中, 将介质视为连续介质(等效孔隙介质)的模型已经不再适用, 必须采用不连续(裂隙网络)介质模型进行模拟。

处置库选址评价中用于地下水数值模拟的软件种类很多, 区域规模或局部规模的模拟均可以采用通用的地下水数值模拟软件, 但发达国家在进行这种研究时, 一般都设计、开发专门的软件用于模拟研究。如美国在进行 Yucca 山场址评价研究中, 由劳伦斯伯克利实验室地学部开发了用于地下水模拟的大型多功能模拟软件包 TOUGH2, 在高放废物处置场地研究中取得了巨大的成功; 瑞士在进行结晶岩场址评价中也开发了地下水数值模拟软件 FEM301, 用于场地区域性和局部地下水流数值模拟研究; 而块体规模(block scale)的地下水流数值模拟则是采用瑞典为 Stripa 场地开发的模拟软件 NAPSAC^[11] 进行的。

(4) 水文地球化学模拟研究

水文地球化学模拟是当代水文地质热点研究领域。20 世纪 50 年代以来, 固体地球科学和环境地球科学都越来越重视水岩作用研究, 这一热点和前沿领域的研究, 吸引了来自水文地质学、地球化学、岩石学、工程地质学、地热学、矿床学、环境化学等众多学科的学者。所取得的众多研究成果主要集中在地下水成矿、地下水成因、地壳中水的地球化学循环、水岩作用与地质灾害等方面, 真正从高放废物处置库选址角度开展水文地球化学模拟研究的国家还不多。美国在这方面也是走在世界的前列, 由 LAWRENCE LIVERMORE 国家实验室用 20 余年开发的 EQ3/6 软件包, 兼顾化学热力学和化学动力学原理, 数据库庞大, 功能多样, 它的发展得到了许多与高放核废地质处置有关部门和项目的支持, 包括核废隔离委员会(Office of Nuclear Waste Isolation)、废物隔离试验性工厂(Waste Isolation Pilot Plant)项目和 Yucca 山高放废物处置库场地特征评价项目等。

(5) 地下水同位素、CFC、稀有气体、胶体等研究

在高放废物处置库选址中, 开展地下水同位素研究是很普遍的, 主要用于地下水年龄的测定, 以便了解场地地下水形成、演化及水交替循环特征; 此外, CFC 用于年轻地下水的研究、稀有气体用于老地下水的研究、胶体与核废物相互作用的研究也逐渐在场地水文地质研究中得到应用。

4 高放废物地质处置中的地球化学关键问题

围岩是限制处置库放射性核素释放并进入环境的天然屏障,围岩地球化学特性对核素的迁移具有较强的影响作用。一般来说,岩石能够阻止核素的迁移,但其能力的大小,在其他条件相同的情况下,则取决于岩石的地球化学特性。此外,通过岩石地球化学研究,也可以追踪围岩地质体的起源、形成时代及后期蚀变等。因此,岩石地球化学也是高放废物地质处置工作中不可缺少的研究内容之一。地球化学研究包括:岩石化学、地球化学、裂隙充填物质等。这些因素直接影响核素在岩石中的弥散、扩散、沉淀、吸附、迁移。目前展开的具体研究包括:

(1) 研究场地岩石的主量元素成分、微量元素成分,确定主岩的岩石类型、主量元素特点及微量元素成分特点。

(2) 研究岩体及岩体中的充填矿物,如对石英、方解石等脉石矿物进行包裹体研究,确定古水文地球化学特征及古流体的地球化学特征等。对岩体中的黏土矿物采用原位 X 衍射等方法进行研究,以确定黏土矿物的种类和含量等,为建立地球化学模型和模拟研究奠定基础。对岩体及其充填矿物和包裹体等进行同位素研究,包括 U-Pb, B, Rb-Sr, Sm-Nd 等,对充填矿物定年及确定古水热活动特点、流体来源、演化等^[11, 12]。

(3) 通过高放废物处置库天然类比,研究核素在天然介质中的迁移速率。高放废物处置库天然类比研究开始于 20 世纪 70 年代初期,法国地质学家在研究形成于 2×10^9 a 前的加蓬共和国 Oklo 铀矿床后发现,铀矿石中的 ^{235}U 大量缺失,研究表明,这种缺失是矿床中曾经发生天然核链式裂变反应的结果,因此该铀矿床被称为“天然反应堆”。从核废物处置角度来说,人们对 Oklo 铀矿床感兴趣的是该“反应堆”产生的放射性核素在漫长地质年代中的迁移行为。针对这种目的开展的进一步研究证明,该矿床中 Sr, Rb, Zr, Ru, Tc, Nd 等裂变产物和超铀系核素 ^{239}Pu , ^{237}Np 等自矿床形成以来,只向核反应带外侧迁移了几米至 10 m。通过这项初期的天然类比研究,科学家们建立了高放废物地质处置的信心。

(4) 地下水 - 废物 - 岩石相互作用研究。地下

水 - 废物 - 岩石的相互作用研究是预选场址地球化学研究的重要课题,如在 ASPO 实验室开展的试验的主要目的就是为了解膨润土在热梯度和在 NaCl, KCl 和石膏、方解石、水泥等不同充填物作用下的变形等, D. Arcos 等^[7]的模拟计算结果显示,花岗岩 - 膨润土 - 地下水相互作用 5 a 后会出现明显的变形,膨润土发生的阳离子交换作用是最重要的地球化学过程,此外方解石将起到 pH 值缓冲剂的作用,而系统中方解石的溶解与沉淀取决于溶液中钙的浓度及石膏等。

(5) 岩体地球化学体系封闭性研究。这方面的研究可以通过 2 种方法实现:一是采用同位素体系判别,基本原理是倘若同一岩体不同部位样品的 O, B, U-Pb, Rb-Sr, Sm-Nd 同位素体系相似或一致,且充填矿物的年龄较老, $\delta^{18}\text{O}$ 值与当时该地大气降水的值相差较大,表明该岩体对同位素的封闭性较好,自形成以来或长期以来未发生明显的水 - 岩作用和同位素分馏、迁移等;二是采用铀系不平衡判别^[13, 14]:可以通过测定岩石、矿物中的 ^{234}U , ^{238}U , ^{230}Th 及 ^{226}Ra 的放射性比活度,研究岩石、矿物中铀系放射性母、子体核素间的放射性平衡状态,进而间接、方便地确定该岩石、矿物曾经受到周围流体影响的程度、发生以及持续的时间等,从而确定地下水流体的状态。这种铀系不平衡研究对于研究裂隙环境中地下水所处的状态(封闭或开放)是非常有效的,并已经在国外的高放废物场址库场址安全评价中成功利用^[8, 15~18]。

5 结 论

高放废物地质处置是一项高科技的、涉及学科众多的系统工程,面临很多挑战。就其中的地质工作而言,也面临着许多难题,有许多关键性的问题需要解决,特别是一些地质学和水文地质学关键问题,要想得到根本的解决,必须在大量的钻孔施工的基础上才能实现,加上试验、测试设备的昂贵,就必须投入大量的资金。也正因为如此,发达国家较发展中国家在高放废物地质处置研究领域进展要快得多,特别是在水文地质研究方面有了许多突破,而我国在该领域的投入和产出还处在起步阶段,为了尽快缩短与发达国家的差距,必须加大投入,同时,也必须加强对国外研究进展的跟踪和调研,吸取国外的经验和教训,注重开发和创新,而不是一味的效仿,力争在一些方面能走出自己的路。

本文是在初步调研国外研究工作和总结笔者多年工作基础上完成的, 还很不深入, 特别是关于高放废物地质处置中的地球化学关键问题, 对国外的了解还缺乏深度, 有待于进一步的调研和完善。实际上, 就笔者目前研究现状而言, 深入调研发达国家在高放废物地质处置研究领域的进程、管理措施、具体的研究步骤和方法以及取得的成果是非常必要的, 在深入调研的基础上, 应该结合我国的国情, 尽快制定出有中国特色的、切实可行的高放废物地质处置路线。

参考文献(References):

- [1] WANG J, SU R, CHEN W M, et al. Deep geological disposal of high-level radioactive wastes in China[J]. *Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering*, 2006, 25(4): 649 - 658.
- [2] 杨春和, 王贵宾, 王 驹, 等. 甘肃北山预选区岩体力学与渗流特性研究[J]. *岩石力学与工程学报*, 2006, 25(4): 825 - 832.(YANG Chunhe, WANG Guibin, WANG Ju, et al. Study on rock mass mechanics and seepage characteristics of candidate site—Beishan, Gansu Province[J]. *Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering*, 2006, 25(4): 825 - 832.(in Chinese))
- [3] ZHANG C L, WANG J, SU K. Concepts and tests for disposal of radioactive waste in deep geological disposal[J]. *Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering*, 2006, 25(4): 750 - 768.
- [4] 王 驹, 陈伟明, 苏 锐, 等. 高放废物地质处置及其若干关键科学问题[J]. *岩石力学与工程学报*, 2006, 25(4): 801 - 812.(WANG Ju, CHEN Weiming, SU Rui, et al. Geological disposal of high-level radioactive waste and its key scientific issues[J]. *Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering*, 2006, 25(4): 801 - 812.(in Chinese))
- [5] WITHERSPOON P A. Geological problems in radioactive waste isolation—second worldwide review[R]. Berkeley, USA: Berkeley National Laboratory, 1996.
- [6] WITHERSPOON P A, BODVARSSON G S. Geological challenges in radioactive waste isolation—third worldwide review[R]. Berkeley, USA: Berkeley National Laboratory, 2001.
- [7] ARCOS D, BRUNO J, KARNLAND O. Geochemical model of the granite-bentonite-groundwater interaction at Aspo HRL(LOT experiment)[J]. *Applied Clay Science*, 2003, 23(1/4): 219 - 228.
- [8] XU T F, SONNENTHAL E, BODVARSSON G. A reaction-transport model for calcite precipitation and evaluation of infiltration fluxes in unsaturated fractured rock[J]. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2003, 64(1/2): 113 - 127.
- [9] DENNISTON R F, SHEARER C K, LAYNE G D, et al. SIMS analyses of minor and trace element distributions in fracture calcite from Yucca Mountain, Nevada, USA[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1997, 61(9): 1 803 - 1 818.
- [10] PACESA J B, LUDWIG K R, PETERMANA Z E, et al. $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ evidence for local recharge and patterns of ground-water flow in the vicinity of Yucca Mountain, Nevada, USA[J]. *Applied Geochemistry*, 2002, 17(6): 751 - 779.
- [11] MEIJER A. Conceptual model of the controls on natural water chemistry at Yucca Mountain, Nevada[J]. *Applied Geochemistry*, 2002, 17(6): 793 - 805.
- [12] 罗兴章. 中国高放废物处置库北山预选场的地球化学研究[博士学位论文][D]. 南京: 南京大学, 2002.(LUO Xingzhang. Geochemical research on Beishan candidate site of the repository of HLW of China[Ph. D. Thesis][D]. Nanjing: Nanjing University, 2002.(in Chinese))
- [13] 郑华铃. 关于高放废物深地质处置中放射化学问题的思考[C]// 王 驹, 范显华, 徐国庆, 等编. 中国高放废物地质处置十年进展. 北京: 原子能出版社, 2004: 131 - 133.(ZHENG Hualing. Consideration on the radiochemical problem of deep geological disposal of HLW[C]// WANG Ju, FAN Xianhua, XU Guoqing, et al ed. *Development of Ten-years in Deep Geological Disposal of HLW in China*. Beijing: Atomic Energy Press, 2004: 131 - 133.(in Chinese))
- [14] 刘德军, 范显华. 模拟地质条件下 ^{99}Tc 的水溶液化学及迁移行为[C]// 国防科工委高放废物地质处置研讨会论文集. 北京: [s.n.], 2005: 277 - 283.(LIU Dejun, FAN Xianhua. Aqueous solution chemical and migration behaviour of ^{99}Tc in simulate geological condition[C]// *Proceedings of the Geology Disposal of HLW of CAEA Conference*. Beijing: [s. n.], 2005: 277 - 283.(in Chinese))
- [15] WOLERY T J. EQ3/6, a software package for geochemical modeling of aqueous systems: package overview and installation guide(Version 7.0)[R]. [S. I.]: Lawrence Livermore National Laboratory, 1992.
- [16] 张展适, 周文斌, 钱天伟, 等. 镓、钷、铯在黄土地下水中地球化学行为的模拟研究[J]. *辐射防护*, 2003, 23(6): 355 - 361.(ZHANG Zhanshi, ZHOU Wenbin, QIAN Tianwei, et al. Modeling of geochemical behavior of neptunium, plutonium and strontium in a loess aquifer[J]. *Radiation Protection*, 2003, 23(6): 355 - 361.(in Chinese))
- [17] 张展适, 周文斌, 李满根. 水力压裂处置中镓、钷迁移行为的模拟研究[J]. *原子能科学技术*, 2003, 37(6): 533 - 537.(ZHANG Zhanshi, ZHOU Wenbin, LI Mangen. Migration of neptunium and plutonium in hydrofracturing disposal[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2003, 37(6): 533 - 537.(in Chinese))
- [18] XU T, PRUESS K. Modeling multiphase non-isothermal fluid flow and reactive geochemical transport in variably saturated fractured rocks: 1. methodology[J]. *American Journal of Science*, 2001, 301(1): 16 - 33.