

# 核废料储罐近域环境中温湿度长期演变预测

黄彦良<sup>1,2</sup>, 郑珉<sup>1,3</sup>, 张琦超<sup>1,2,3</sup>, 路东柱<sup>1,2</sup>, 王秀通<sup>1,2</sup>, KUNTE Hans-Jörg<sup>4</sup>,  
SAND Wolfgang<sup>5,6,7</sup>

(1.中国科学院海洋研究所, 山东 青岛 266071; 2.中国科学院海洋大科学研究中心, 山东 青岛 266071; 3.中国科学院大学, 北京 100049; 4.Federal Institute for Materials Research and Testing, Berlin D-12205; 5.东华大学 环境科学与工程学院, 上海 201620; 6.Technical University and Mining Academy Freiberg, Freiberg D-09596; 7.University Duisburg-Essen, Essen D-47057)

**摘要:** 为获得核废料储罐与周围环境界面的温湿度信息, 以便模拟不同地质处置时期储罐表面的腐蚀环境, 通过对一些典型核能利用国家在高放核废料安全处置研究中对储罐表面温度的长期演变计算进行调研, 结合不同埋藏模式推测出适于我国的核废料储罐表面温度演变规律。同时根据国内外对核废料储库中缓冲/回填材料饱和度的变化情况推测我国核废料储罐表面环境中膨润土含水量的时间演变趋势。研究表明, 储罐表面初始时温度快速升高, 至温度峰值后逐渐下降, 为安全起见, 最高温应设计低于 100 °C。膨润土的饱和度受到核废料衰变释热及地下水入渗的双重影响, 早期以核废料衰变主导, 后来受地下水入渗影响显著。一般认为储罐表面膨润土在 3 年左右含水量明显增加, 约 10 年左右达到饱和。温湿度长期演变预测将为我国核废料储罐表面腐蚀演变研究奠定基础。

**关键词:** 核废料; 处置库; 温湿度; 腐蚀演变

**DOI:** 10.7643/issn.1672-9242.2018.10.0018

**中图分类号:** TG172                      **文献标识码:** A

**文章编号:** 1672-9242(2018)10-0109-05

## Long Term Temperature and Humidity Evolution Forecast in Near Field of Nuclear Waste Container

HUANG Yan-liang<sup>1,2</sup>, ZHENG Min<sup>1,3</sup>, ZHANG Qi-chao<sup>1,2,3</sup>, LU Dong-zhu<sup>1,2</sup>,  
WANG Xiu-tong<sup>1,2</sup>, KUNTE Hans-Jörg<sup>4</sup>, SAND Wolfgang<sup>5,6,7</sup>

(1. Institute of Oceanology, Chinese Academy of Sciences, Qingdao 266071, China; 2. Center for Ocean Mega-Science, Chinese Academy of Sciences, Qingdao 266071, China; 3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 4. Federal Institute for Materials Research and Testing, Berlin D-12205, Germany; 5. College of Environmental Science and Engineering, Donghua University, Shanghai 201620, China; 6. Technical University and Mining Academy Freiberg, Freiberg D-09596, Germany; 7. University Duisburg-Essen, Essen D-47057, Germany)

**ABSTRACT:** The paper aims to simulate the corrosion environment of nuclear waste containers at different geological disposal periods to obtain temperature and humidity information at the interface between the container and the surrounding environment. The simulated data and calculation results of long term temperature evolution at the surface of nuclear waste (HLW) containers from some typical nuclear countries about the safety disposition were reviewed. Combining different burial patterns, this paper speculated the long term temperature evolution rule for China. According to the study about saturation variation of

收稿日期: 2018-07-13; 修订日期: 2018-08-13

基金项目: 国家自然科学基金 (51471160)

作者简介: 黄彦良 (1966—), 男, 辽宁沈阳人, 研究员, 主要研究方向为腐蚀与防护、海洋生物污损。

buffer/backfill material at home and abroad, the humidity evolution of bentonite at the surface of HLW containers was speculated. The study showed that the temperature of the container surface increased rapidly at the beginning, and gradually decreased after the climax. For safety reasons, the maximum temperature was designed below 100°C. The saturation of bentonite was affected by the mutual influences of the heat released by nuclear waste decay and the infiltration of groundwater. It was dominated by the released heat in the early stage, and later was influenced greatly by the infiltration of groundwater. It is generally believed that the water content at the surface of the container will increase obviously in about 3 years, and will be saturated in about 10 years. The prediction of long-term temperature and humidity evolution will lay a foundation for study of corrosion evolution of nuclear waste containers in China.

**KEY WORDS:** nuclear waste; disposal repository; temperature and humidity; corrosion evolution

核废料由于具有放射性强、寿命长、释热量高和毒性大等特点而引起了国际上的普遍关注。如何有效合理并安全地处置核废料,使其对人类的生存环境产生尽可能小的危害成为核废料处置中的重点问题。目前国际上公认的安全可靠且技术上可行的处置方法是深地质处置<sup>[1]</sup>,具体又可以有直接埋藏、缓冲/回填和加混凝土缓冲层等埋藏方式。

高放射性核废料中的放射性核素由于具有长衰变周期和发热量大的性质,使得储罐周围的环境在填埋后的中长期都会受到核废料固化体的热影响。Shaw-Yang Yang 等人发现,对温度分布产生影响的四个主要参数是核废料衰变热、缓冲材料和围岩的热学性质、处置间隔和围岩的厚度<sup>[2]</sup>。刚关闭的储罐是干燥的,围岩中的地下水会在高压水头的作用下向缓冲/回填材料内部发生渗透,使得储罐周围缓冲材料的饱和度逐渐上升,同时也改变着缓冲/回填材料的孔隙液成分及其 pH,在核废料储罐表面形成了一个随时间而变化的环境。

当核废料储罐长期浸泡在一种湿热的环境下,极大地提高了储罐发生腐蚀破损的可能性,因此得到储罐表面温湿度的演变规律对于储罐表面腐蚀环境的研究及核安全具有重要意义。

## 1 温度

### 1.1 直接埋藏

法国<sup>[3]</sup>利用不锈钢废物容器装载高放废料玻璃固化体,然后将废物容器放入直径为 0.59 m、高 1.6 m、厚 55 mm 的厚钢处置容器中,最后在粘土岩中层进行水平处置。处置巷道半径为 0.7~2.5 m,处置单元长 30 m,内含厚 25 mm 的碳钢金属套筒,各废物包间填充缓冲材料。对于高放废料而言无缓冲材料回填,而乏燃料处置容器周围则需要填充膨润土缓冲材料<sup>[4]</sup>。建立模型中假设玻璃固化体高放废物包的释热功率每 30 年减少 1/2,废物包冷却贮存 60 年后,辐射水平为 250 Sv/h。表面最高温为 90 °C。

澳大利亚<sup>[5]</sup>利用直径为 0.520 m、高 1.375 m、厚

50 mm 的低合金钢作为外包装材料,里面装有直径为 0.39 m、高 1.245 m 不锈钢废物罐。外包装(低合金钢)与储罐(不锈钢)之间用震实的陶瓷粉末填充。钻孔高 3.875 m,半径为 0.6 m,缓冲材料是压碎的氧化镁。释热功率计算模型与瑞典、芬兰等国家的指数叠加函数类似,设地面温度为 20 °C,初始岩石温度为 45 °C。废物固化体最高温度限值设置为 330 °C。

### 1.2 膨润土缓冲/回填

瑞典<sup>[6]</sup>高放废料燃料罐直径为 1.05 m、高 4.833 m,分为水平处置和垂直处置两种。相对于垂直处置(处置钻孔直径 1.75 m,深 7.833 m)而言,水平处置在回填的膨润土外多加了一层外径为 1.765 m 的钢罐,不同物质接触处存在毫米至厘米级空隙。建立模型中,燃料罐中核废料释热功率为呈指数叠加的时间函数:  $P(t) = \sum_{i=1}^7 a_i \exp(-t/t_i)$ ,燃料罐表面最高温为 100 °C,演示初始温度为 15 °C<sup>[3]</sup>。

芬兰<sup>[3]</sup>的处置库巷道中,钻有直径为 1.75 m,深 7.5 m 的孔。可放置外径为 1.05 m,高 4.75 m 的压水堆(PWR)燃料罐和外径为 1.05 m,高 3.55 m 的沸水堆(BWR)燃料罐。其间填充的膨润土缓冲材料与燃料罐和岩石之间留有 1~3 cm 的空隙。建立模型中,是将暂存 30~50 年后的乏燃料(约 1000 W/tU)作为初始热源进行释热功率的计算:  $P = \sum_{i=1}^N a_i \exp\left(\frac{t-t_i}{t_i}\right)$ 。燃料罐表面最高温度限值是 100 °C。

加拿大<sup>[3]</sup>将乏燃料装在直径为 1.247 m、长 3.909 m、间距为 8 m 的包装容器中,该包装容器内壳为 96 mm 厚的耐高压碳钢,外壳为 25 mm 厚的防腐铜壳。水平置于直径为 2.5 m,间距为 20 m 的处置巷道中。释热功率计算模型与其他国家类似,假设乏燃料在处置前已经冷却 30 年,燃料罐外表面最高温度不超过 120 °C,地表温度为 5 °C。

以国际合作项目 DECOVALEX III 中课题 Task3 BMT1 为模拟对象,利用有限元程序对日本构想的核废料处置概念库近场的温度及饱和度进行分析<sup>[7]</sup>。建

立如下模型：处置巷道的高度与宽度均为 5 m，且各巷道中心之间的距离为 10 m，其底板下的处置孔直径为 2.22 m、深度为 4.13 m，孔中心之间的距离为 4.44 m。玻璃固化体周围和孔之间的空隙填充近 0.6 m 厚的缓冲回填材料，并对坑道进行封堵。对玻璃固化体进行热输出函数表达，假设缓冲及回填材料的初始温度分别是 45 °C 和 20 °C，缓冲层及回填材料的初始含水量是 7%（饱和度为 0.28），则饱和时含水量是 25%。

### 1.3 混凝土缓冲层

比利时<sup>[8-9]</sup>首先将两个装有玻璃固化体的废物容器串联横放在一个直径约 0.5 m、长 2.8 m、厚 30 mm 的碳钢外包装容器内，然后将其水平横放入外径大约 1.9 m、长 4.2 m、厚 6 mm 的不锈钢超级容器中，两容器间空隙用约 0.7 m 厚的硅酸盐基（OPC）混凝土缓冲层包围。巷道与超级容器间先用胶结缓冲材料回填，再用混凝土等回填材料进行密封。

建立模型中源项的释热功率以  $P=A_e \exp(\lambda_e t)$  对外输出。得到其释热量在处置的前 100 年急剧下降，但 200 年以后趋于平缓。处置刚开始时的围岩初始温度为 16 °C。将各个国家核废料储库模拟得到的温度时间曲线进行汇总，如图 1 所示。

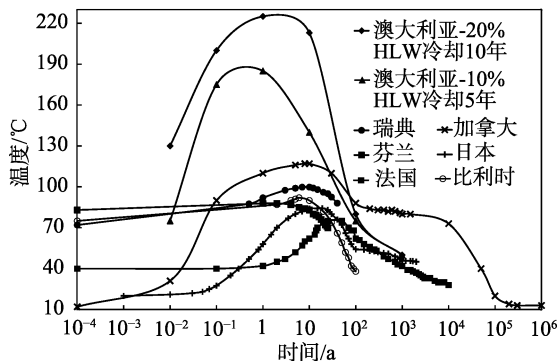


图 1 各国核废料储罐表面环境的温度演变

### 1.4 分析

对于直接埋藏的储存方式而言，法国储库密封部分的内表面在处置 15~20 年后达到最高温度 70~75 °C；澳大利亚处置中对于冷却 10 年的 20% 的高放废料，其最高温在 5 年左右到达，而对于冷却 5 年的 10% 的高放废料的处置，约在 1 年达到峰值温度。

对于具有膨润土缓冲/回填材料的处置方式而言，瑞典燃料罐表面温度会在较短时间内快速上升而达到峰值，随后逐渐下降，下降速度随时间增加而不断减小，趋于平缓，峰值温度大约在处置 7~10 年后出现。芬兰得到的燃料罐表面温度峰值为 84.7 °C，在 2~4 年后出现。加拿大燃料罐表面在处置 10 年后达到峰值温度，且最高温度为 117.4 °C。日本处置

库经过 2000 年的模拟分析，温度在开始阶段快速上升，约在 19 年时达到峰值 84.3 °C，之后下降，约在 100 年时降为 54.2 °C，再往后变化很缓慢，约在 1000 年时降低至 46.0 °C。

对于具有混凝土缓冲层的比利时核废料储罐，其表面温度在处置开始后 3~5 年内快速上升，并在约 5 年时达到峰值温度，之后温度随时间增加不断降低但温降速率减缓，100 年后最终趋于平缓约为 36 °C。

从以上各国核废料储罐表面温度的模拟研究，可认为核废料储罐表面温度在 20 年内就可以达到最高温，一般为 10 年左右。为保安全，核废料储罐表面最高温应设计不超过 100 °C，约在处置后 10 000 年时降低至 30 °C 左右。我国测试的围岩温度和深度的关系也表明了与加拿大同样的线性规律，温度梯度为 0.0024 °C/m，地表温度假定为 10 °C，则处置库埋深位置的温度则为 22 °C<sup>[3]</sup>。根据以上结论，可以推测我国核废料储罐表面温度的时间演变趋势如日本结果，且随后的时间逐渐缓慢降低至围岩温度。

中国对核废料储罐的研究起步较晚，研究尚浅，但也有相应成就。沈珍瑶等<sup>[10]</sup>将高放废物处置库固化体内外的辐射剂量场作为热源叠加到温度场计算方程中，得到储罐表面最高温度在处置后 10 年出现，约 90 °C，在处置后的 20~100 年温度有较大幅度下降，在处置后 10 000 年，温度降至比初始温度高 10 °C。我国台湾的杨绍洋等<sup>[12]</sup>也对核废料储库瞬时热量传递进行了建模研究，模拟结果表明，单孔处置边界以及多孔处置废料储罐间距的设定对温度影响较大，在适宜的处置间距下得到储罐表面温度峰值为 87.86 °C，约 16 年可以达到。

## 2 饱和度

### 2.1 国外储库研究情况

#### 2.1.1 短期模拟

利用瑞士的储库模型<sup>[11-12]</sup>，在直径为 2.4 m、长 18.8 m 的试验处置坑道的水平轴向上放置两个加热器。加热器与处置坑道间填充缓冲/回填材料，膨润土约 75 cm 厚。加热器最初以 1200 W 的热量恒定供热，直到加热器与膨润土接触面达到最高温度 100 °C，然后控制温度恒定不变；3 年后（1095 天）断掉热源。假设膨润土和岩石的初始温度均是 12 °C，膨润土的初始饱和度是 0.46。靠近加热器表面的膨润土温湿度模拟变化结果如图 2 所示。

由图 2 可以看出，温度在加热后第 21 天便可达到最高值，随后温度值变化很小而达到稳定。在冷却期（3 年后）温度开始急剧下降，最终降至一稳定值。

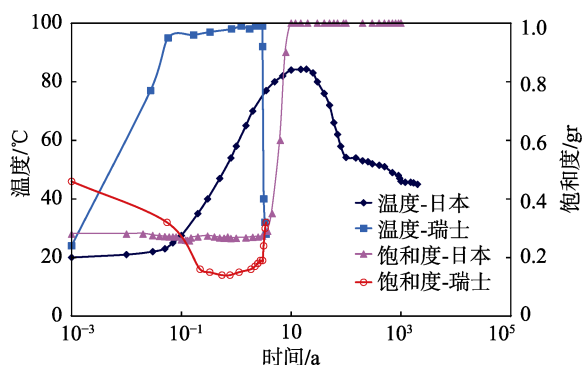


图2 长短期核废料储罐近域环境温度及饱和度模拟

与此同时,饱和度随时间急剧减小至某一值后基本维持不变,断掉热源后进入冷却期,饱和度逐渐回升。

### 2.1.2 短期测量

西班牙<sup>[13]</sup>也进行了核废料储罐处置环境在模拟加热5年以及冷却4个月过程中温湿度的原位模拟测量。储罐直径为0.9 m、长4.54 m,间距1 m,储罐与围岩环形区域缓冲回填约75 cm厚膨润土。在加热初始阶段,储罐表面温度快速升高并达到最大值,随着冷却阶段的到来,其表面温度自然冷却,约3个月便降低至室温。相对湿度一开始随温度的升高而降低,在加热阶段,相对湿度一直维持在较低水平,但到达冷却阶段时,相对湿度有所回升。从短期的原位模拟测量可以得到核废料储罐近域环境温湿度的变化受到核废料衰变释热及地下水入渗的双重影响。得到了与瑞士模拟结果相似的结论。

### 2.1.3 短期模拟与测量

英国的P.J. Cleall等人对瑞典SKB原型储库进行了600天的测量结果与模拟结果的分析<sup>[14]</sup>。模型中分为两个区域,各有4个和2个同等规格的处置钻孔,同区域相邻钻孔间距6 m,铜外包装直径为1.05 m,则缓冲回填材料厚度为35 cm。温度在加热初期快速升高且模拟和实验结果符合很好,在边缘钻孔中的储罐近域环境的模拟和实验结果均在约400天后完全饱和;而位于中间部分的储罐表面在测量最后(600天)仍未饱和,且初始出现了干燥过程。由此结论同样可以推测出70 cm厚膨润土缓冲回填材料达到饱和要2~5年或更久。

### 2.1.4 长期模拟

日本对高放废料处置进行了长期的温湿度模拟<sup>[7]</sup>,模拟结果如图2所示。将瑞士和日本概念模型进行数值模拟得到的储罐近域环境温湿度随时间变化的长短期模拟曲线进行比较分析,由短期模拟发现,核废料储罐周围温度变化主要受废料热释放影响,温度很快(21天)达到平衡,膨润土孔隙液含水量会做出即时响应,但因加热器仅加热3年,后续饱和情况不得而知。对于日本长周期储罐表面变化情

况,其早期情况与瑞士短期模拟相似,有理由依据日本模型进行长期预测。对于含水量而言,在开始后的一个时期内变化不大(有所降低),在约3.73年后才明显上升,约在10年时达到饱和。

## 2.2 国内研究情况

国内也进行了相关方面的研究,但主要是短期的实验和模拟研究。刘月妙等<sup>[15]</sup>利用高庙子钠基膨润土作为缓冲回填材料,组装并运行了中国模拟高放废物地质处置室1:2尺寸的大型试验台架(China-Mock-Up)。经过近2年测量的模拟,结果与其他国家的总体趋势基本相符,加热器表面的温度随着加热的进行先逐渐升高,然后在恒温阶段随着室温的变化而变化。模拟的近域环境中饱和过程相对复杂,但同样表现出先干燥后饱和的过程。

## 2.3 国内外对缓冲材料膨润土含水量的研究

对于膨润土含水量(饱和程度)的研究主要集中在小型实验的研究。英国的S.C. Seetharam等<sup>[16]</sup>通过小型基地膨润土实验即2.5 cm厚的高压实膨润土低温(35 °C)端注入花岗岩间隙水,另一端温度维持在60 °C,得到该膨润土单元在16天即达到饱和。若由此仅线性外推则对于70 cm厚的膨润土而言,达到饱和至少需要1.23年,但真实情况下饱和时间与膨润土厚度并非简单的线性关系,则可以推断处置概念模型中储罐近域环境达到地下水饱和要在1年以后。国内的叶为民<sup>[17]</sup>也利用类似的方法对15 cm厚的高庙子高压实膨润土进行了体积含水率的测量,得到距离渗透源3 cm处仅需要600 h就可以达到90%的相对湿度;在6 cm处则需要3600 h达到同样的相对湿度;对于更远的距离就需要更多的时间。若以6 cm厚度渗透时间线性计算,则80 cm需要约48 000 h(5.6年的时间),且厚度越深的地方达到饱和并非线性关系,时间会更长,得到了与日本模拟相同的结论,即核废料储罐表面达到地下水饱和需要10年左右的时间。

## 2.4 分析

通过各国对核废料储罐近域环境饱和度的测量或模拟分析,加上对缓冲回填材料膨润土饱和度的小型实验研究,可以得到储罐近域环境在刚埋埋后,其含水量未受到地下水渗入的影响,主要受到储罐中核废料衰变释放的热影响。温度明显升高,导致其含水量下降,但随后会因地下水的渗入得到补充,长时间后会达到饱和。一般研究在3年左右含水量明显增加,饱和度快速升高,约在10年左右达到饱和,含水量几乎恒定。需要注意模拟过程中控制方程的差异会导致含水量在各个处置阶段的不同,从而导致到达饱和含水量的时间也不尽相同。基于以上,在分析核

废料储罐表面环境中缓冲材料膨润土含水量的时间演变时可参考图 2 中日本的模拟结果。

### 3 结论

文中主要通过对国内外有关核废物处置库近域环境预测和模拟的相关文献和报告的调研,并简要叙述了我国在该领域上所做的工作。主要得到以下结论。

1) 从依据各国核废料处置库几何模型及边界条件得到的核废料储罐表面温度演变曲线中,可以得到几乎一致的温度变化趋势,即初始时温度快速升高,至温度峰值后逐渐下降,最后趋于平缓。虽然各国储罐模型得到的峰值温度到达时间存在差异,但可认为在 20 年内就可以达到最高温,一般为 10 年左右,约在处置后 10 000 年时降低至 30 °C 左右。为安全起见,最高温应设计低于 100 °C。

2) 根据瑞士、西班牙及瑞典短期储罐中储罐表面膨润土温湿度的测量结果不难发现,膨润土的饱和度受到核废料衰变释热及地下水入渗的双重影响,早期以核废料衰变主导,后来受地下水入渗影响显著。一般认为储罐表面膨润土在 3 年左右含水量明显增加,约 10 年左右达到饱和,但要注意模型选取中控制方程对模拟结果的影响。

#### 参考文献:

- [1] 王驹,徐国庆,郑华玲,等.中国高放废物地址处置研究进展:1985—2004[J].世界核地质科学,2005,22(1):5-16.
- [2] YANG S Y, YEH H D. Modeling Transient Heat Transfer in Nuclear Waste Repositories[J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, 169(1-3): 108.
- [3] 万蕾,孙庆红,李洪辉,等.国内外核废物处置库近场温度场模拟预测[J].辐射防护通讯,2014,34(1):12-19.
- [4] BENNETT D G, GENS R. Overview of European Concepts for High-level Waste and Spent Fuel Disposal with Special Reference Waste Container Corrosion[J]. Journal of Nuclear Materials, 2008, 379(1-3): 1-8.
- [5] SIZGEK G D. Three-dimensional Thermal Analysis of In-floor Type Nuclear Waste Repository for a Ceramic Waste Form[J]. Nuclear Engineering & Design, 2005, 235(1): 101-109.
- [6] ROSBORG B, WERME L. The Swedish Nuclear Waste Program and the Long-term Corrosion Behaviour of Copper[J]. Journal of Nuclear Materials, 2008, 379(1): 142-153.
- [7] 张玉军.核废料处置概念库工程屏障中热-水-应力耦合过程数值分析[J].工程力学,2007,24(5):186-192.
- [8] YANG C, SAMPER J, MONTENEGRO L. A Coupled Non-isothermal Reactive Transport Model for Long-term Geochemical Evolution of a HLW Repository in Clay[J]. Environmental Geology, 2008, 53(8): 1627-1638.
- [9] KURSTEN B, DRUYTS F. Methodology to Make a Robust Estimation of the Carbon Steel Overpack Lifetime with Respect to the Belgian Supercontainer Design[J]. Journal of Nuclear Materials, 2008, 379(1-3): 91-96.
- [10] 沈珍瑶,李国鼎,李书绅.高放废物处置库近场剂量场与温度场的耦合计算[J].辐射防护,2000,20(3):153-158.
- [11] 秦爱芳,王海堂,赵小龙.热源对核废料处置库近场性状的影响[J].上海大学学报,2013,19(5):521-526.
- [12] 张大斌,李子善.核废料处置库近场的热-水-力耦合分析[J].安徽工程大学学报,2012,27(4):75-79.
- [13] VILLAR M V, GARCÍA-SIÑERIZ J L, BÁRCENA I, et al. State of the Bentonite Barrier after Five Years Operation of an in Situ Test Simulating a High Level Radioactive Waste Repository[J]. Engineering Geology, 2005, 80(3-4): 175-198.
- [14] CLEALL P J, MELHUISE T A, THOMAS H R. Modelling the Three-dimensional Behaviour of a Prototype Nuclear Waste Repository[J]. Engineering Geology, 2004, 85(1): 212-220.
- [15] 刘月妙,王驹,曹胜飞,等.中国高放废物地质处置缓冲材料大型试验台架和热-水-力-化学耦合性能研究[J].岩土力学,2013,34(10):2756-2789.
- [16] SEETHARAM S C, CLEALL P J, THOMAS H R. Modelling Some Aspects of Ion Migration in a Compacted Bentonitic Clay[J]. Engineering Geology, 2006, 85(1): 221-228.
- [17] YE W M, CUI Y J, QIAN L X, et al. An Experimental Study of the Water Transfer through Confined Compacted GMZ Bentonite[J]. Engineering Geology, 2009, 108(3-4): 169-176.