

中国原子能科学研究院高放废物 处理处置技术研究进展

谭盛恒, 包良进, 张 华, 郟东生, 周 舵, 商澄铭, 鲜 亮*

(中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413)

摘要: 高放废物处理处置是制约我国核能可持续发展的重要因素。中国原子能科学研究院(简称原子能院)放射性废物处理处置研究团队长期致力于高放废物固化处理技术和高放废物处置技术研究, 本文主要介绍了研究团队近年来在高放废液玻璃固化、高放固体废物固化和高放废物深地质处置等领域取得的研究进展。在高放废液玻璃固化方面, 自主化发展了两步法冷坩埚玻璃固化技术, 完成了玻璃固化主工艺开发、关键设备研制和初步数字化模拟仿真, 并针对不同高放废液源项开发了与之相适应的玻璃固化配方。在高放固体废物固化方面, 自主化发展了针对干法后处理氯化物废盐的玻璃-陶瓷复合固化技术和针对干法后处理金属阳极泥的金属熔炼固化技术, 目前已完成固化配方体系、制备工艺研究以及原理实验装置研制。在高放废物深地质处置方面, 研发了多套核素迁移研究试验装置, 建立了针对地下水中低浓核素的 CE-ICP-MS 形态分析方法, 获得了各关键核素在不同模拟深地质处置环境下的吸附、扩散、弥散数据, 并开发了核素在处置环境中迁移行为的初步预测模型。

关键词: 高放废物; 玻璃固化; 玻璃-陶瓷固化; 处置化学; 核素迁移

中图分类号: TL941; TL942 文献标志码: A 文章编号: 1000-6931(2025)09-1870-14

doi: 10.7538/yzk.2025.youxian.0491

Research Progress in High-level Waste Treatment and Disposal at China Institute of Atomic Energy

TAN Shengheng, BAO Liangjin, ZHANG Hua, QIE Dongsheng,

ZHOU Duo, SHANG Chengming, XIAN Liang*

(Department of Radiochemistry, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: The treatment and disposal of high-level waste (HLW) are the main factors limiting the sustainable development of nuclear energy in China. The HLW research team at the China Institute of Atomic Energy is devoted to develop HLW treatment and disposal technologies. The main research progress of China Institute of Atomic Energy in recent years in liquid HLW vitrification, solid HLW immobilization, and HLW geological disposal presented was summarized in this paper. Regarding liquid HLW vitrification, a “two-step” cold crucible induction melter (CCIM) technology has been developed, with the establishment of processing techniques, main technological equipment, and preliminary numerical modeling, coupled with glass formulations suitable for various HLW sources.

For solid HLW immobilization, a glass-ceramic immobilization route and an alloy smelting immobilization route have been developed for high-level halide waste and high-level metallic waste, respectively. In both cases, the immobilizing matrices and production conditions have been intensively investigated. In terms of HLW disposal, a series of research apparatuses for nuclide migration experiments under simulated deep geological repository conditions have been established. Together with analytical methods for measuring extremely low concentrations of nuclides in groundwater, massive data and characteristics of nuclide adsorption, dispersion, and diffusion in various scenarios have been obtained. These provide powerful support for establishing migration models to predict nuclide migration behavior over hundreds of thousands of years in deep geological environments.

Key words: high-level waste; vitrification; glass-ceramic immobilization; disposal chemistry; nuclide migration

乏燃料后处理工艺过程中产生的高放废物具有高放射性、高毒性和高流动性,对人类和环境可产生重大的威胁^[1]。因此,针对这些高放废物的处理和处置是我国核燃料循环中的关键环节,也是制约我国核能可持续发展的重要因素。近年来,中国原子能科学研究院(简称原子能院)放射性废物处理处置研究团队围绕国家工程需求,在高放废物固化处理技术和高放废物处置技术领域开展了大量基础性和应用性的研究。本文将主要介绍研究团队在高放废液玻璃固化、高放固体废物固化和高放废物深地质处置等领域取得的研究进展。

1 高放废液玻璃固化技术研究进展

高放废液的固化处理一直是放射性废物管理

领域的重中之重。我国于20世纪70年代开始研究高放废液玻璃固化技术,先后发展了罐式法、焦耳加热陶瓷电熔炉和两步法冷坩埚等玻璃固化技术^[2-5]。原子能院研究团队自2006年以来致力于两步法冷坩埚玻璃固化技术自主化研究,先后完成了原理工艺及装置研究、试验装置及关键技术研究、工艺放大及工程规模设备研制等。同时,针对不同高放废液源项及不同玻璃固化技术,完成了各类玻璃固化配方的开发和验证研究。

1.1 两步法冷坩埚玻璃固化工艺研究

两步法冷坩埚高放废液玻璃固化工艺流程如图1所示。高放废液与添加剂(如蔗糖、甲酸等)混合,经回转煅烧炉内高温处理(即第一步,包括高放废液蒸发、干燥、脱硝和煅烧)后形成煅烧产物,煅烧产物再与玻璃基料在冷坩埚熔炉内通过

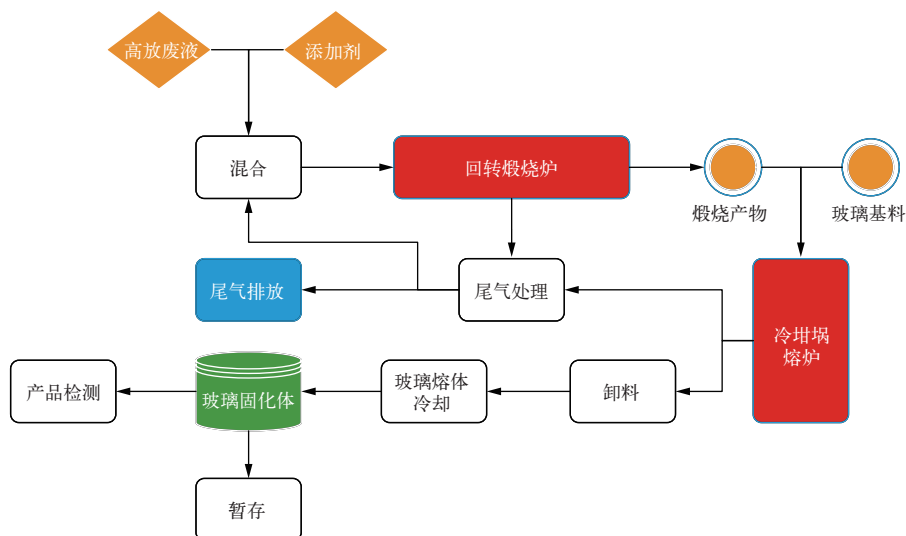


图1 两步法冷坩埚高放废液玻璃固化工艺流程图

Fig. 1 Flowsheet of two-step cold crucible induction melter vitrification for high-level liquid waste

高频感应加热进行玻璃熔制(即第二步,包括熔融、澄清、搅拌等),完成后玻璃熔体自底部卸出,冷却后形成玻璃固化体产品。因此,高放废液煅烧工艺和冷坩埚玻璃固化熔制工艺是两步法冷坩埚玻璃固化工艺的核心。

1) 高放废液煅烧工艺

高放废液经煅烧工艺处理后转形为煅烧产物,用于下一步冷坩埚玻璃固化熔制。煅烧产物的若干重要性能,如粒径分布、脱硝率和含水率等,与脱硝剂种类及添加量、脱硝温度、煅烧温度梯度、回转煅烧转速及停留时间等因素密切相关。

针对含盐量高的生产堆高放废液,研究团队以甲酸为脱硝剂,获得了甲酸脱硝反应平衡时间、最大脱硝率所对应加热温度和甲硝比(甲酸与硝酸根的摩尔比,1.4~1.6)、煅烧产物含水量与温度的关系等^[6-8],开发了高放废液甲酸脱硝煅烧工艺。针对含盐量低、易粘壁的动力堆高放废液,研究团队以蔗糖为脱硝剂开发了蔗糖脱硝煅烧工艺^[9],揭示了蔗糖脱硝煅烧的3个反应阶段:室温至250℃,高放废液中的游离水和结合水以蒸发形式逸出;250~570℃区间,硝酸盐与蔗糖发生反应并分解,产生大量氮氧化物;570~800℃区间,无机盐进一步分解和煅烧至颗粒状煅烧产物^[10-12],并在此基础上优化了回转煅烧炉的温度区间设置。

研究表明,适量蔗糖的加入可显著抑制煅烧产物的粘壁和粘结现象^[13]。如图2所示,未加入蔗糖时(改进前)高放废液在回转煅烧过程中形成的煅烧产物颗粒易粘结于炉壁和炉管表面;当蔗糖添加量为40 g/L时,煅烧产物颗粒直径分布以



a——改进前(未加蔗糖); b——改进后(加入40 g/L蔗糖溶液)

图2 适量添加蔗糖改进回转煅烧炉内煅烧产物的粘壁^[13]

Fig. 2 Effect of sucrose addition on agglomeration of calcined HLW particles on walls and tubes of rotary kiln

0.25~1 mm 为主,基本无2 mm 以上大颗粒,此时,煅烧产物不易粘结,回转煅烧炉炉壁和炉管表面明显变得光滑,回转煅烧炉内煅烧产物的滞留问题得到解决。此外,适量蔗糖的加入也可降低脱硝和煅烧工艺过程中易挥发元素(如Cs、Ru等)的损失^[14]。煅烧过程中蔗糖提供的还原气氛使得高放废液中的Ru由易挥发的RuO₄、CsRuO₄转变成不易挥发的RuO₂,从而提高煅烧过程中Ru的保留率。

2) 冷坩埚玻璃固化熔制工艺

煅烧产物进入冷坩埚熔炉后,与基础玻璃珠在高频感应作用下熔融,经搅拌、澄清后形成均匀的玻璃熔体,再经卸料、冷却后形成玻璃固化体产品。

(1) 冷坩埚熔炉启动与复启

玻璃在常温下为电的不良导体,无法被高频感应线圈加热。为使冷坩埚熔炉内玻璃物料达到1000℃以上的高温,熔炉启动时在熔炉内加入定制的导电材料,使之在高频感应作用下形成局部高温,逐渐熔化周围的玻璃物料,形成初始高温玻璃熔体。本研究团队^[15]以石墨环为启动材料,结合冷坩埚熔炉结构和高频电源匹配要求设计了不同直径(250~450 mm)、不同壁厚(3~10 mm)的石墨环,以满足φ500 mm和φ650 mm冷坩埚熔炉的启动工艺要求。

同时,为应对冷坩埚熔炉在运行期间的应急停机工况,开发了冷坩埚熔炉高液位复启工艺,在冷坩埚熔炉内玻璃熔体在高液位、已冷却至固体的条件下,向熔炉内加入适量的基础玻璃珠、煅烧产物、石墨环及启动添加剂等物料,通过调节高频电源功率使石墨环燃烧,熔化周围物料,并逐渐扩熔至熔炉内原有的冷却玻璃,从而实现了冷坩埚熔炉在未卸料状态下停机后的重新启动(启动过程如图3所示)。该工艺可大幅提高冷坩埚熔炉系统的安全性和可维修性,并缩短熔炉由启动段到生产段的置换过程。

(2) 玻璃固化熔融、搅拌与卸料

高放废液煅烧产物与基础玻璃珠在冷坩埚熔炉内熔融时可发生一系列化学反应^[16-17]:煅烧产物中的稀土钨酸盐、稀土氧化物和碱金属钨酸盐等与玻璃基体中的SiO₂和CaO等成分在熔融时先发生反应,生成稀土硅氧化物和钨酸钙等中

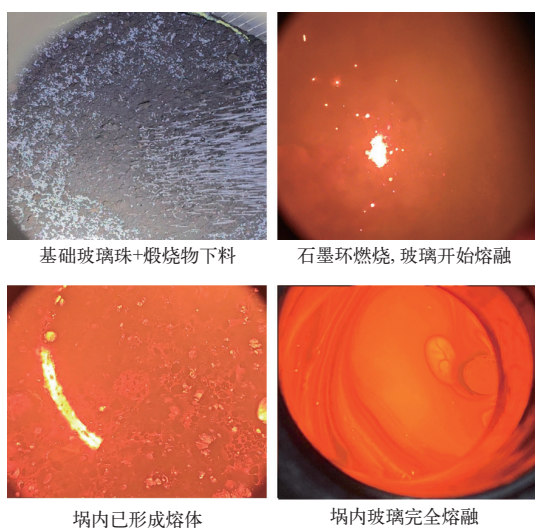


图3 冷坩埚熔炉高液位复启时熔池熔融情况变化过程
Fig. 3 Re-startup of CCIM with high level of cooled glass

间产物, 这些中间产物又在更高温度下溶解于周围的玻璃熔体中, 并在扩散作用下逐渐形成均匀的熔融玻璃固化体。当熔融温度达 1 100 °C 以上、熔融时间不低于 60 min 时可实现煅烧产物的完全熔融。

此外, 在熔融过程中, 当煅烧产物中的碱金属钼酸盐 (Na_2MoO_4 、 Cs_2MoO_4 等) 含量过高或其与玻璃基体的熔融反应过慢, 使得碱金属钼酸盐(包括熔融中间产物 LiCsMoO_4) 本身的熔化和扩散速率大于熔融反应速率时, 未熔融的钼酸盐会在玻璃熔体局部形成分相, 即钼酸盐“黄相” [18-19]。钼酸盐黄相包含 Cs、Sr 等元素, 具有较高的水溶性及导电性, 对玻璃固化体产品性能及熔炉运行不利 [20-21]。

冷坩埚熔炉依靠电磁感应对其内部物料进行加热, 因此, 在熔炉内存在一定的电磁搅拌作用。同时, 研究团队在冷坩埚熔炉内引入了斜插式锚形机械搅拌桨, 开发了搅拌桨的垂直往复移动工艺, 在玻璃熔融和澄清时搅拌桨位于高位置(距离熔池表面约 5 mm) 搅拌, 在熔炉卸料时搅拌桨在高位置与低位置(距离熔池底部约 5 mm) 之间往返变动, 既实现了熔池内煅烧产物的快速熔融和澄清, 又保障了熔炉卸料的稳定、可控。图 4 为典型冷坩埚玻璃固化熔炉进、卸料运行周期内的搅拌工艺曲线。

1.2 两步法冷坩埚玻璃固化工艺设备研制

原子能院研究团队致力于两步法冷坩埚玻璃

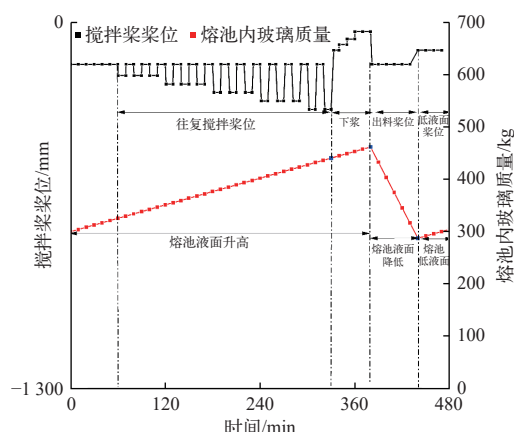


图4 冷坩埚玻璃固化熔炉进卸料运行周期搅拌桨垂直位置与熔炉内玻璃质量变化曲线
Fig. 4 Change curves in horizontal level of mechanical stirrer and mass of glass melts during typical CCIM feeding and pouring period

固化主工艺设备(高放废液回转煅烧炉和冷坩埚玻璃固化熔炉)的研发, 先后经历了原理工艺装置、中间规模实验装置和工程规模样机等研究阶段, 逐步完成了工程样机的研制。2018年, 建成了国内首套 $\phi 500$ mm 冷坩埚玻璃固化实验装置并通过了 72 h 连续运行试验, 实现了冷坩埚与高频电源匹配技术、熔炉启动技术、搅拌技术、卸料技术等多项技术的突破 [15, 22]。2020年, 建成了 30 L/h 高放废液处理能力的回转煅烧炉科研样机, 并完成了 72 h 连续运行试验, 实现了高放废液回转煅烧技术的突破 [4]。同年, 完成了高放废液回转煅烧炉原理实验装置与冷坩埚玻璃固化熔炉原理实验装置的 72 h 联动连续运行试验 [23], 实现了两大系统的对接和联动(图 5a), 在国内首次建立了完整的两步法冷坩埚玻璃固化系统。

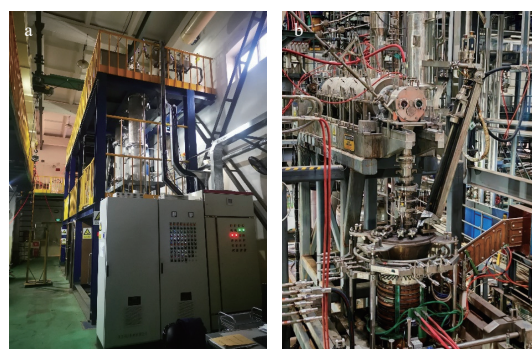


图5 两步法冷坩埚玻璃固化原理实验装置(a)和工程样机(b)
Fig. 5 CCIM experimental apparatus (a) and engineering prototype (b)

2020年,针对后处理大厂高放废液处理需求,研究团队开展了1:1工程规模回转煅烧炉(80 L/h高放废液处理能力)和 $\phi 650$ mm冷坩埚熔炉(25 kg/h玻璃固化体生产能力)工程样机研制。

回转煅烧炉方面,基于前期30 L/h高放废液处理能力回转煅烧炉研究,通过模拟仿真计算了处理能力放大和组分变化后回转煅烧炉不同转速、倾角和进料量对炉内温度场分布和气流走向的影响,并以此为依据完成了回转煅烧炉主体结构设计(包括炉头、炉管、保温层、炉尾及出料装置等),确定了回转煅烧炉规格尺寸和工艺参数。同时,通过模拟腐蚀和磨损性能研究完成了炉头、炉管等关键部件材料的比选(如选择Inconel690作为炉管刮板主体材料),给出了相关材料和部件的使用寿命和更换频次。

冷坩埚熔炉方面,通过模拟仿真完成了熔炉结构建模,结合熔融玻璃特性和处理需求完成了冷坩埚熔体分瓣结构设计和冷却水管路设计,确定了合适的冷坩埚熔炉主体和辅助结构(如坩埚底、顶罩和转接装置等)。同时,作为冷坩埚熔炉实现加热的核心设备,高频电源采用“一用一备”设计,并设计了设备综合连锁控制及故障诊断功能,以确保冷坩埚熔炉的加热功能。此外,为满足工艺运行需求,也研制了可在高温和高频感应作用下工作的冷坩埚熔炉内测距和测温装置。

在上述研究结果基础上,研究团队于2022年完成了回转煅烧炉和冷坩埚熔炉两大系统科研样机的设计、加工制造和安装,利用设备模块设计实现了远距离拆装功能,通过工艺试验进一步固化了主体设备结构和工艺参数,并最终完成了240 h连续运行试验。

随后,为满足工程需求,研究团队进一步深化了远距离拆装设计,根据热室功能优化了主工艺设备布局,并根据科研样机运行试验结果优化了回转煅烧炉炉头等结构,研制完成了等规模的回转煅烧炉和冷坩埚玻璃固化熔炉工程样机(图5b),并与中国核电工程有限公司于2024年共同完成了两步法冷坩埚玻璃固化工程样机全系统90 d连续运行试验。

1.3 玻璃固化配方与产品性能

近年来,原子能院研究团队针对不同类型高放废液(包括动力堆乏燃料后处理高放废液、快堆

高放废液及其他特殊高放废液等)和不同玻璃固化熔炉技术(陶瓷电熔炉和两步法冷坩埚等玻璃固化技术)均开发了相应的玻璃固化配方^[24-27],并系统研究了玻璃固化体的产品性能(包括高温黏度、高温电阻率、抗浸出性能、热学性能等)与其废物氧化物包容量及化学组成之间的关系。

1) 玻璃固化元素行为特征

高放废液中的若干关键元素(如Mo、Zr、La、Nd、Ce、Ba、Cs、Ru、Tc、Fe、Ni、Cr、Al、S等)对玻璃固化工艺和产品性能均有重要的影响^[28-31],研究它们在玻璃固化体中的结构与性能特征对玻璃固化配方的开发有十分重要的支撑作用。

Mo是动力堆高放废液玻璃固化中的重点元素。Mo在高放废液煅烧产物中的主要价态为+6,并伴有少量的+5和+4价Mo^[10];在玻璃固化体中,所有Mo均为+6价,以MoO₄²⁻形式存在于玻璃网络间隙中^[32]。当玻璃固化体中MoO₃含量过高时,易形成钼酸钙析晶相(图6^[27])或碱金属钼酸盐黄相(如前所述)。拉曼光谱研究表明,MoO₄²⁻在玻璃网络中的结合状态与玻璃固化体化学组成中

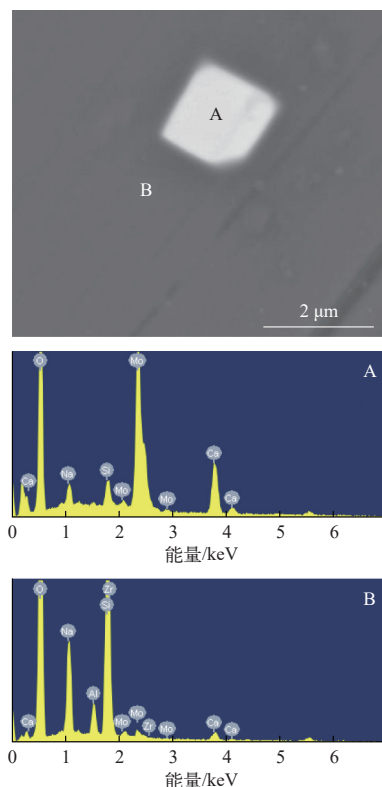


图6 高MoO₃含量玻璃固化体中的钼酸钙析晶^[27]
Fig. 6 Typical powellite crystal formed in glass with high MoO₃ content^[27]

金属阳离子的种类和含量密切相关,且碱土金属氧化物(如CaO)和稀土氧化物(如 La_2O_3 、 Nd_2O_3)的引入可显著提高玻璃固化体对 MoO_4^{2-} 的包容能力^[25]。

同时,研究团队也研究了玻璃固化体产品性能与各关键元素含量之间的关系。以Zr对玻璃固化体化学稳定性的影响为例,尽管当 ZrO_2 含量较高时玻璃固化体析晶倾向增强(在铁磷酸盐玻璃体系中易形成磷酸锆、焦磷酸锆和少量偏磷酸锆晶体^[25,31],在硼硅酸盐玻璃体系中易形成二氧化锆和锆铈氧化物等晶体^[32-33]),但 ZrO_2 的引入也会使玻璃固化体主要结构元素(Si、B等)的浸出率下降。由于不同元素对玻璃固化体结构与性能的作用也不同,因此,在玻璃固化配方开发中需考虑各元素对不同产品性能的影响,以达到最佳平衡范围。

2) 玻璃固化配方开发与验证

近年来,在玻璃固化元素行为与工艺研究基础上,研究团队开发了多种玻璃固化配方。2021年,针对高能耗(55 GW·d/tU)动力堆高放废液和快堆高放废液完成了基于冷坩埚玻璃固化技术的基础玻璃配方开发,并在 $\phi 300$ mm冷坩埚玻璃固化实验装置上完成了运行试验验证(图7),废物氧化物包容量达到20%~24%。之后,所选动力堆高放废液玻璃固化配方先后在两步法冷坩埚玻璃固化科研样机和工程样机上完成了240 h和90 d连



图7 $\phi 300$ mm冷坩埚玻璃固化实验装置 55 GW·d/tU 动力堆高放废液玻璃配方验证试验

Fig. 7 Validating operation of glass formulation for 55 GW·d/tU HLW on $\phi 300$ mm CCIM experimental apparatus

续运行试验,所得玻璃固化体产品性能均符合相关技术指标要求。

1.4 数字化研究

为提高研究效率、降低试验成本,研究团队针对冷坩埚熔炉开展了初步的数字化研究^[34-35]。在冷坩埚熔炉模拟仿真方面,综合考虑电磁热、洛伦兹力、非等温流动等多物理场因素,利用COMSOL等软件实现了冷坩埚熔炉内部磁场、流场和温度场的三维建模仿真,并针对冷坩埚熔炉不同工况(如启动、熔制)开展了温度场和磁场分布计算和试验验证^[36]。其中温度场验证结果如图8所示,可见,冷坩埚熔炉内不同位置点(自中心位置至135 mm处)的温度测量值与仿真结果有很好的吻合度,最高偏差不超过50℃(靠近坩埚壁处)。

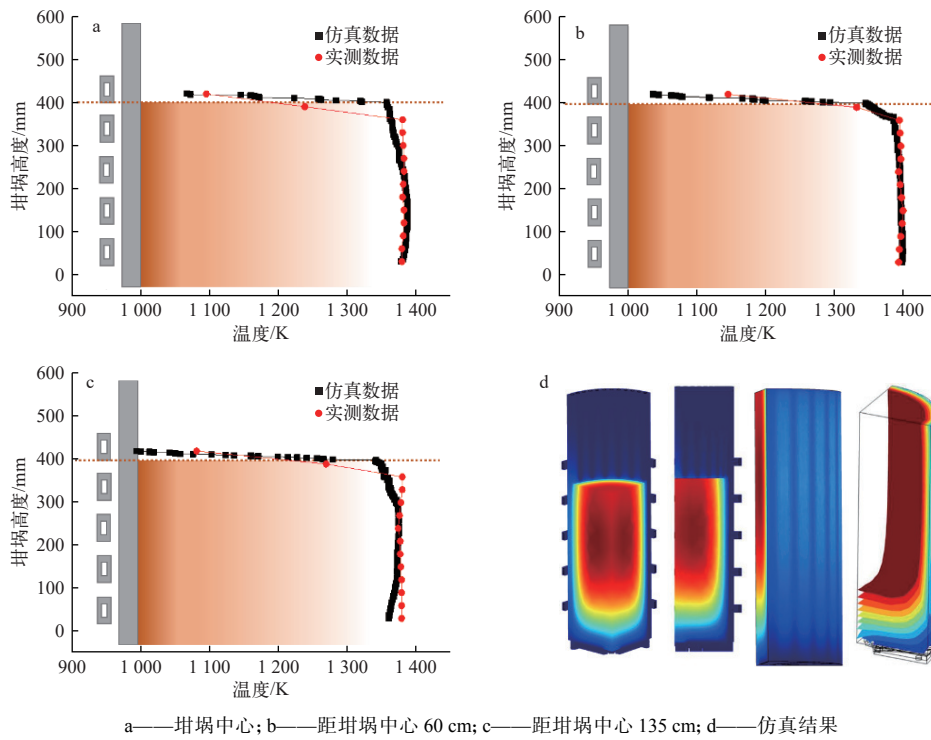
在玻璃固化配方方面,研究团队针对不同的源项和玻璃固化体化学组成,搭建了玻璃固化配方数据平台,建立了初步的玻璃固化配方性能数据库,实现了玻璃固化配方简单设计和玻璃固化体性能初步预测功能。

2 高放固体废物处理技术研究进展

原子能院自“十三五”起开始针对高放卤化物固体废物和高放泥浆开展固化处理技术研究^[37]。2022年以来,针对快堆乏燃料干法后处理工艺过程中产生的氯化物废盐和金属阳极泥等高放固体废物分别开展了相应的固化处理技术研究。其中,针对氯化物高放废盐,开发了以氟方钠石为陶瓷固化相、钠硼硅酸盐玻璃为玻璃黏结相的玻璃-陶瓷复合固化工艺,建立了单批次模拟高放废盐处理能力为1 kg的实验装置;针对高放金属阳极泥,开发了基于铁锆固化基材体系的高温金属熔炉固化工艺,建立了单批次处理能力为50 g的阳极泥固化实验装置。上述实验装置均已完成多轮次工艺试验,验证了固化工艺和固化体产品性能,为后续工程化科研奠定了基础。

2.1 高放废盐固化处理技术

与两步法冷坩埚玻璃固化工艺类似,高放废盐固化主工艺(图9)也分为两步:高放废盐与沸石粉在预处理器中混合、加热后形成载盐沸石,再与玻璃黏结剂在一定温度下混合,并在高温下经长时间烧结后形成氟方钠石陶瓷-钠硼硅酸盐玻璃复合固化体。其中,废盐中的Cl固化进入氟



a——坩埚中心; b——距坩埚中心 60 cm; c——距坩埚中心 135 cm; d——仿真结果

图 8 冷坩埚熔炉温度场实测结果与仿真结果的对比^[36]

Fig. 8 Comparison between temperatures in CCIM obtained by experimental measurement and numerical modelling^[36]

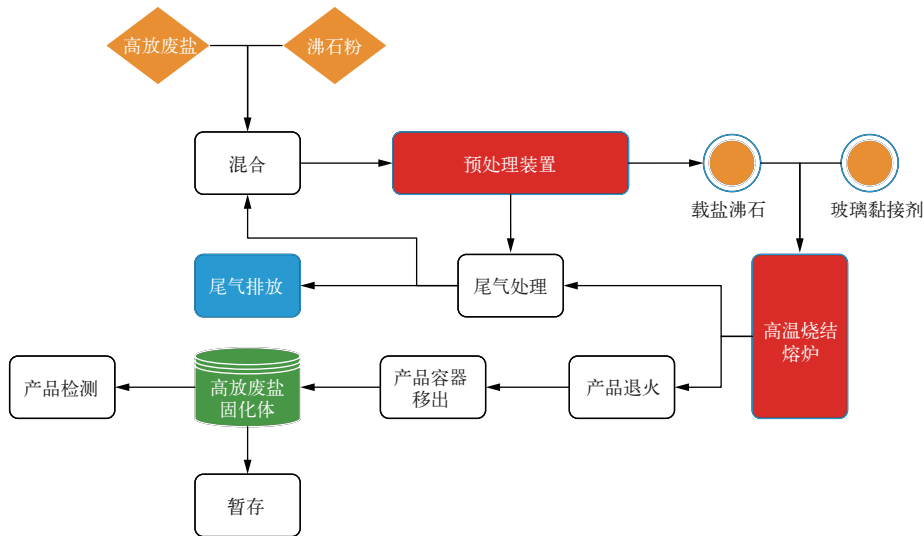


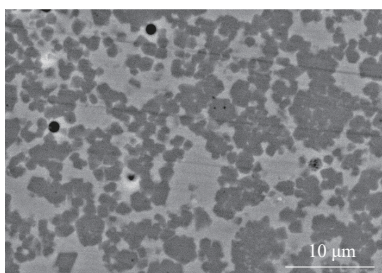
图 9 高放废盐玻璃-陶瓷固化工艺流程图

Fig. 9 Flow sheet of glass-ceramic immobilization for high-level salt wastes

方钠石结构; Sr、Cs 固化进入氯方钠石结构或玻璃相结构; 稀土元素融入玻璃相结构或反应生成氧化物晶体相。截至 2025 年, 原子能院已完成了实验室规模的氯方钠石制备条件与物相控制、玻璃黏结剂开发、固化体制备工艺、固化体产品性能表征与评价等研究。

研究发现, 在废盐固化体高温烧结后进行适

当的热处理可有效改善固化体的结构^[38]。当废盐固化体在 950 °C 高温烧结, 再在 850~900 °C 进行 2 h 保温热处理时, 固化体内部陶瓷相和玻璃相的分布更为均匀, 气孔显著减少, 形成的固化体更为致密。图 10 为废盐固化实验装置工艺试验中制备的固化体产品的微观形貌, 氯方钠石(深灰色颗粒物)较均匀地分布于玻璃相(浅灰色基体)中,

图 10 废盐固化工艺试验产品背散射电子图像^[38]Fig. 10 Backscattered electron image of glass-ceramic wasteform products made in test^[38]

产品内部的大部分气泡已顺利排出, 样品宏观密度与真密度间的比值达 0.95。

在废盐固化装备方面, 研究团队研制了公斤级废盐固化处理能力的实验装置(图 11)以及适用于废盐固化的反应容器^[39], 完成了 10 余轮模拟物料工艺试验, 并根据试验结果对装置结构设计(如压力结构、粉料传输结构)和运行工艺(温度梯度、烧结时间等)进行了优化, 实现了稳定运行。在此基础上, 研究团队于 2025 年研制了百公斤级废盐固化处理能力的原理样机, 并已完成安装调试。

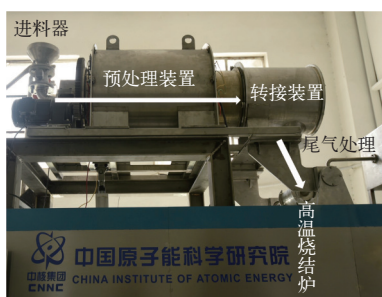


图 11 废盐固化实验装置

Fig. 11 Experimental apparatus of salt waste immobilization

2.2 高放金属阳极泥废物固化处理技术

快堆乏燃料干法后处理工艺过程中产生的金属阳极泥含有大量 Zr、Tc、Mo、Ru、Rh 和 Pd 等, 呈松散颗粒状, 且属于高放废物, 需将其转化为稳定的废物体, 以满足深地质处置要求。研究团队采用金属高温熔炼固化工艺, 通过将阳极泥废物与金属基材(如 Fe)等混合, 在高温(≥ 1600 °C)下进行熔炼, 形成合金, 将放射性核素固化进入合金基体结构中。阳极泥废物固化处理工艺采用批式处理方式, 目前已完成百克量级处理能力实验装置研制及相关工艺试验。

3 高放废物处置技术研究进展

在高放废物处置技术研究方面, 原子能院一直致力于高放废物深地质处置化学研究, 自主研发了多套模拟深地质处置环境核素迁移研究试验装置, 建立了一系列针对低浓核素的形态分析方法, 并开发了初步的核素在处置环境中迁移行为预测模型, 为我国高放废物处置库选址、设计、性能分析和安全评价提供科学依据和技术支撑。

3.1 核素迁移实验技术

放射性核素在地质处置环境中的迁移行为是高放废物深地质处置化学研究的核心。研究团队基于北山预选区多重屏障系统处置概念, 开发了玻璃固化体-地下水-工程屏障材料-围岩相互作用研究实验技术, 研究了流动地下水、花岗岩围岩、高庙子钠基膨润土缓冲材料、玻璃固化体裂隙、处置温度等对玻璃固化体腐蚀及核素释出行为的影响^[40-42], 获得了²³⁷Np、²³⁹Pu、²⁴¹Am、⁹⁹Tc 等核素在模拟处置环境下的释出速率、价态形态分布、溶解限度、吸附分配系数、扩散系数、弥散系数及胶体行为参数等^[43-49]。

图 12 为用于玻璃固化体多重屏障条件处置行为研究的实验装置。连续 900 天运行实验研究结果表明, 在膨润土缓冲材料对元素迁移的阻滞作用下, 地下水中各元素(Si、B、Na、Cs、Sr、Re(代替 Tc)等)的浓度在 250 天后均达到稳定状态; 较高的实验温度(90 °C)会促进玻璃固化体表面与水接触后的腐蚀作用, 加剧元素浸出速率, 同时也会增强膨润土对若干浸出元素(如 Si、B 等)的吸附和交换速率, 从而抑制元素迁移速率^[40-42]。

图 12 玻璃固化体多重屏障条件处置行为研究实验装置
Fig. 12 Experimental apparatus for research of disposal behavior of simulated glass wasteform under multi-barrier system conditions

同时, 为缩短核素迁移实验所需时间、提高实验操作和数据采集效率, 研究团队将电场加速技术引入了核素迁移行为研究^[50], 通过施加一定的

电场使核素在花岗岩中的迁移过程显著加快,从而在较短时间内获得核素的穿透曲线(图13,其中, c 和 c_0 分别为核素浓度和核素初始浓度)。该方法所获得的核素有效扩散系数与传统核素迁移实验所得结果基本一致(相对偏差仅为1%),但所用实验时间仅为传统实验的1/5。

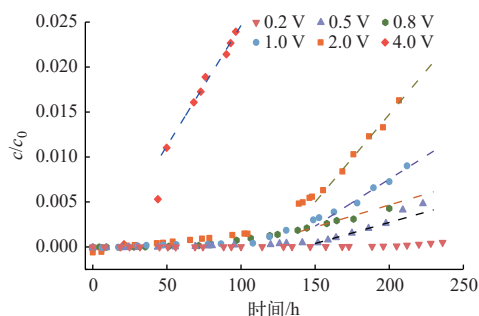


图13 不同电压下 Sr^{2+} 在花岗岩中的穿透曲线^[50]

Fig. 13 Breakthrough curves of Sr^{2+} in granite under different voltages^[50]

3.2 低浓度核素分析方法

变价核素的价态是影响其在处置条件下化学和迁移行为的重要因素。由于地下水中离子种类多、核素浓度低且价态复杂,因此采用常规的核素分析方法(如萃取法、紫外-可见光谱法等)难以获得准确、可靠的核素价态分布数据。为此,研究团队开发并建立了针对放射性核素的毛细管电泳(CE)与电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)联用^[51-52](CE-ICP-MS)分析方法(图14),首先利用毛细管电泳技术实现对各种不同价态核素的分离,再用高灵敏度的ICP-MS对分离后不同价态核素的浓度进行检测。



图14 CE-ICP-MS联用系统

Fig. 14 Integrated CE-ICP-MS system

利用CE-ICP-MS开展了水溶液及模拟处置条件下地下水中核素的价态分析研究,获得了缓冲溶液pH、离子种类和浓度等因素对毛细管电泳分

离效率的影响,并优化了电泳电压、进样压力、补充液流速、雾化器气体流速等参数,建立了CE-ICP-MS联用核素(以 $\text{Tc}(\text{VII})$ 与 $\text{Np}(\text{V})$ 为代表)分离和形态分析方法,并在此基础上完成了我国高放处置库某预选区场址地下水中 $\text{Tc}(\text{VII})$ 与 $\text{Np}(\text{V})$ 的检测。

同时,为实现对模拟处置条件地下水中低浓度胶体的分离和表征,研究团队利用不对称流的场流分离(AF4)装置实现复杂水化学体系中胶体的有效分离,从而降低胶体聚集作用对分析的干扰,并结合多角度静态激光散射(MALLS)和示差折光(RI)检测手段获得胶体的动态光散射与静态光散射信号,最终利用ICP-MS检测胶体中的放射性核素^[53]。建立的AF4-MALLS-RI-UV-ICP-MS联用系统可高效分离和定量分析不同尺寸和形态的胶体,并用于获取模拟处置条件地下水中低浓度胶体的物理化学特性及其与核素的相互作用信息,为深入理解胶体在核素迁移中的作用提供了重要支撑。

3.3 核素迁移模型研究

高放废物固化体需经相当长时间深地质处置后其放射性才能达到环境安全水平^[5],因此深地质处置安全评价的时间尺度通常在万年以上,而建立可靠的地质处置核素迁移模型是预测高放废物中关键核素在长时间尺度上迁移扩散行为的有效手段。研究团队在数学模型和地质处置特征基础上建立了若干核素迁移模型。以核素迁移软件MNS为例,该软件利用基于对流-弥散方程的处置库近场核素迁移数学模型,代入相关介质的水力学参数(包括核素扩散系数、介质密度、介质含水率和核素弥散系数、水流量、水头等)、核素源的类型(点、面和三维立体,恒定浓度连续释放和脉冲式单次释放)、核素在介质中的吸附行为和衰变等参数,并结合大量实验数据,实现了关键核素在二维和三维空间体系中的浓度分布^[47,54-55]。图15为针对弱吸附核素 ^{99}Tc 、 ^{129}I 和 ^{79}Se 等的近场迁移行为模拟结果。

在此基础上,研究团队进一步将近场缓冲材料吸附、放射性核素衰变作用等影响因素纳入原有的对流-弥散模型中,实现了 ^{237}Np 、 ^{239}Pu 和 ^{137}Cs 等核素在长期处置条件下的迁移行为预测。

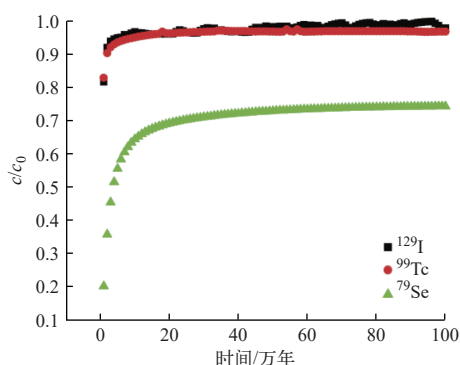


图 15 水平方向上膨润土-花岗岩边界核素相对流出浓度随时间的变化^[53]

Fig. 15 Changes of relative concentration of nuclides at bentonite-granite boundary over time in horizontal direction^[53]

4 总结与展望

近年来,原子能院研究团队聚焦高放废物处理和处置这一关键领域,开展了系统性的技术研究,并在多个重要方向取得了显著成果。在高放废液玻璃固化方面,形成了具有自主特色的技术体系;针对高放废盐及金属阳极泥固化,研发了有效的处理方法;同时,在高放废物处置化学领域也积累了丰富的研究数据。这些成果不仅填补了我国相关技术领域的部分空白,更为我国高放废物处理处置技术的可持续发展提供了理论与实践支撑,为后续工程应用奠定了重要基础。

未来,研究团队将始终以服务国家重大工程需求为核心目标,持续深化技术研究,重点推进以下几方面工作。

在高放废液玻璃固化领域,将紧密结合工程实际需求,进一步完善现有玻璃固化工艺及配套装备,推动两步法冷坩埚高放废液玻璃固化技术的工程化应用进程。在此基础上,建立冷坩埚玻璃固化数字化工艺试验平台,通过深入研究玻璃熔体物理化学性质与多物理场耦合条件,实现对冷坩埚熔炉工艺运行状态的精准预测和模拟试验,为工艺优化提供科学依据。同时,进一步优化现有玻璃固化配方-性能预测模型,使其能够针对不同高放废液源项快速设计和开发出适配的玻璃固化配方,提高配方研发效率。此外,开展铯系元素和钨等放射性核素在玻璃固化过程中的行为研究,明确其对玻璃固化体结构与性能的影响机制,最终绘制出完整的玻璃固化过程放射性核素物料平衡图,为保障固化体长期安全性提供关键

数据。

针对高放废盐固化领域,将重点研究镧系元素、铯、锶系元素氯化物等在固化过程中的分布规律,以此为基础开发适用于不同高放废盐源项的固化配方体系及对应的固化体制备工艺,提升废盐固化的适应性和有效性。考虑到高放废盐固化时面临的高温、高腐蚀性环境,开展关键部件高温腐蚀行为研究并进行材料优化,以提高关键部件的使用寿命,降低工程运行成本。同时,结合工程需求进行工艺及设备结构放大研究,优化预处理装置和烧结炉加热设计,着力提高大尺度物料加热均匀性,促进废盐固化物相的整体性,确保固化体质量。此外,建立针对高放废盐固化体的深地质处置性能评价方法和试验条件,从多维度综合评估其处置性能,为废盐固化体的安全处置提供科学评价标准。

对于金属阳极泥废物处理,将优化现有的熔炼固化处理工艺,充分利用废包壳等基材,进一步提升金属废物处理能力,实现废物的资源化利用。开展耐高温金属腐蚀坩埚材料研究,从材料层面提升金属熔炉固化工艺的安全性和稳定性。同时,攻关金属固化体卸料技术,使其能够满足工程规模金属废物处理和换料的实际需求,保障工艺连续稳定运行。此外,建立高放金属固化体的深地质处置性能评价方法和试验条件,全面评估其处置性能,为金属固化体的安全处置提供技术支撑。

在高放废物处置化学研究方面,将依托北山地下实验室,深入开展核素迁移现场大型示踪实验和长期原位观测,系统获取各关键核素在地质处置环境下的迁移扩散特征,同时不断优化现有的核素种态与形态分析方法,为深地质处置库选址的安全评价提供更精准、有力的数据支撑。在现有核素迁移模型和实验数据的基础上,逐步引入人工智能机器学习手段,开发能够预测在多因素耦合、多变量输入条件下核素迁移扩散行为的大数据模型,提高核素迁移预测的准确性和效率,为深地质处置库的安全设计和长期风险评估提供先进的技术工具。

通过上述研究工作的系统推进,有望进一步提升我国高放废物处理处置技术的整体水平,为保障国家核工业安全、推动核能可持续发展贡献重要力量。

参考文献:

- [1] 顾忠茂. 核废物处理技术[M]. 北京: 原子能出版社, 2009.
- [2] 张生栋, 刘丽君, 张振涛. 核设施退役与放射性废物治理关键技术[M]. 北京: 中国原子能出版社, 2021.
- [3] 李玉松, 张生栋, 鲜亮, 等. CIAE 高放废液固化技术研发进展[J]. 原子能科学技术, 2020, 54(增刊): 126-136.
LI Yusong, ZHANG Shengdong, XIAN Liang, et al. Research and development progress of solidification technology of CIAE high-level radioactive waste liquid[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2020, 54(Suppl.): 126-136(in Chinese).
- [4] 李玉松, 王泽学, 张生栋, 等. 冷坩埚技术处理动力堆乏燃料高放废液的应用前景分析[J]. 核化学与放射化学, 2023, 45(1): 1-7.
LI Yusong, WANG Zexue, ZHANG Shengdong, et al. Prospective application of vitrifying high-level liquid waste from power reactor spent fuel in cold crucible induction melter[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2023, 45(1): 1-7(in Chinese).
- [5] TAN Shengheng. Glass-based stabilization/solidification of radioactive waste[M]//Low Carbon Stabilization and Solidification of Hazardous Wastes. Amsterdam: Elsevier, 2022: 433-447.
- [6] 王长福, 朱冬冬, 李玉松, 等. 不同甲硝比对模拟高放废液脱硝的影响[J]. 核化学与放射化学, 2020, 42(5): 330-335.
WANG Changfu, ZHU Dongdong, LI Yusong, et al. Effect of different formic acid to nitrate ratio on denitration of simulated high level liquid waste[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2020, 42(5): 330-335(in Chinese).
- [7] 贺诚, 张华, 李争, 等. 煅烧条件对模拟高放废液煅烧产物物理化学性质的影响[J]. 核化学与放射化学, 2021, 43(6): 465-472.
HE Cheng, ZHANG Hua, LI Zheng, et al. Influence of calcination conditions on the physicochemical properties of calcined products derived from simulated high-level liquid waste[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2021, 43(6): 465-472(in Chinese).
- [8] WANG C, LIU X, SHAO B, et al. Precipitation behaviour of simulated high-level liquid waste during the denitration process based on two-step vitrification[J]. Nuclear Engineering and Design, 2023, 415: 112739.
- [9] 巴伟伟. 模拟动力堆高放废液回转煅烧过程中脱硝剂的选择及 Cs 的挥发性研究[D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2019.
- [10] 李争, 李泉鑫, 张华, 等. 蔗糖脱硝对模拟动力堆高放废液煅烧产物性能及结构的影响[J]. 原子能科学技术, 2022, 56(3): 434-442.
LI Zheng, LI Quanxin, ZHANG Hua, et al. Effect of denitration with sucrose on property and structure of calcinate of simulated PWR high-level liquid waste[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2022, 56(3): 434-442(in Chinese).
- [11] 贺诚, 张华, 张克乾, 等. 高放废液回转煅烧炉的启动方法[J]. 核化学与放射化学, 2025, 47(3): 142-149.
HE Cheng, ZHANG Hua, ZHANG Keqian, et al. Startup method for rotary calciner of high-level liquid waste[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2025, 47(3): 142-149(in Chinese).
- [12] 张华, 李宝军, 李扬, 等. 基于高斯克里金代理模型对模拟高放废液煅烧产物性能影响因素的研究[J]. 核化学与放射化学, 2023, 45(1): 76-86.
ZHANG Hua, LI Baojun, LI Yang, et al. Study on influence factors of calcined products from simulated HLLW based on Gaussian Kriging agent model[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2023, 45(1): 76-86(in Chinese).
- [13] 贺诚, 张华, 李争, 等. 煅烧温度和蔗糖添加量对模拟高放废液煅烧物性能的影响[J]. 核化学与放射化学, 2025, 47(1): 68-77.
HE Cheng, ZHANG Hua, LI Zheng, et al. Influence of calcination temperature and sucrose addition on the performance of calcined products from simulated high-level liquid waste[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2025, 47(1): 68-77(in Chinese).
- [14] 李骁锐. 高放废液转形过程中 Ru 的挥发行为研究[D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2024.
- [15] 朱冬冬, 刘丽君, 鄯东生, 等. 冷坩埚玻璃固化熔炉启动工艺研究[J]. 原子能科学技术, 2018, 52(12): 2222-2225.
ZHU Dongdong, LIU Lijun, QIE Dongsheng, et al. Research on start-up process of cold crucible induction melter for vitrification[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2018, 52(12): 2222-2225(in Chinese).
- [16] JIA R, CHANG J, FANG G, et al. Effects of rare earth variation on feed-to-glass conversion during nuclear waste vitrification[J]. Journal of Non-Crystalline Solids, 2022, 598: 121960.
- [17] 谭盛恒, 常斐, 王佳腾, 等. 动力堆高放废液煅烧产物与玻璃基体熔融反应过程研究[J]. 原子能科学技术, 2025, 59(1): 46-56.
TAN Shengheng, CHANG Jiong, WANG Jiateng, et al. Study on the melting reaction between calcined products

- of power-reactor high-level liquid waste and glass matrix[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2025, 59(1): 46-56(in Chinese).
- [18] TAN S, OJOVAN M I, HYATT N C, et al. MoO₃ incorporation in magnesium aluminosilicate glasses[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2015, 458: 335-342.
- [19] MORGAN S, ROSE P B, HAND R J, et al. The characterization and dissolution of high level waste calcine in alkali borosilicate glass[J]. *Environmental Issues and Waste Management Technologies in the Ceramic and Nuclear Industries*, 2005, 155: 101-110.
- [20] OJOVAN M I, BATYUKHNOVA O G. Glasses for nuclear waste immobilization[C]//WM Symposia. USA: Curran Associates, Inc., 2007.
- [21] CAURANT D. Glasses, glass-ceramics and ceramics for immobilization of highly radioactive nuclear wastes[M]. USA: Nova Science Publishers, 2009.
- [22] 刘丽君, 郗东生, 李扬, 等. 冷坩埚玻璃固化模拟高放废液的 24 h 连续运行实验研究[J]. *原子能科学技术*, 2018, 52(12): 2214-2221.
- LIU Lijun, QIE Dongsheng, LI Yang, et al. 24 h continuous process of vitrifying simulated HLLW at cold crucible induction melter prototype[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2018, 52(12): 2214-2221(in Chinese).
- [23] 张华, 李宝军, 李扬, 等. 两步法冷坩埚玻璃固化原理实验装置完成 72 h 连续运行试验[M]//中国原子能科学研究院年报. 北京: 中国原子能出版社, 2020.
- [24] 刘丽君, 郗东生, 周慧, 等. 高硫高钠高放废液玻璃固化的配方验证[J]. *核化学与放射化学*, 2014, 36(3): 163-168.
- LIU Lijun, QIE Dongsheng, ZHOU Hui, et al. Verification experiment research of glass formulation for high sodium and high sulfur bearing HLLW[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2014, 36(3): 163-168(in Chinese).
- [25] 张琳, 常斐, 杨明帅, 等. 含 Ca₃(PO₄)₂ 模拟废物铁磷酸盐玻璃固化体的析晶行为和抗浸出性能[J]. *核化学与放射化学*, 2025, 47(3): 133-141.
- ZHANG Lin, CHANG Jiong, YANG Mingshuai, et al. Crystallization behavior and leaching resistance of iron phosphate glass wastefoms containing Ca₃(PO₄)₂ for simulated waste immobilization[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2025, 47(3): 133-141(in Chinese).
- [26] 刘潇, 常斐, 王佳腾, 等. 模拟动力堆高放废液玻璃固化体产品性能与废物氧化物包容量的关系[C]//2023 年放射性废物处理与处置及核设施退役学术交流会议论文集. 北京: 中国核学会, 2023.
- [27] 王长福. 模拟动力堆高放废液硼硅酸盐玻璃固化过程中 Mo 的化学行为研究[D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2019.
- [28] 张华, 贺诚, 常斐, 等. 掺氧化钐对模拟动力堆高放废液硼硅酸盐玻璃结构和化学稳定性影响研究[J]. *原子能科学技术*, 2023, 57(7): 1303-1311.
- ZHANG Hua, HE Cheng, CHANG Jiong, et al. Effect of gadolinium oxide on the structure and chemical stability of borosilicate glass for simulated power-reactor high-level liquid waste[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2023, 57(7): 1303-1311(in Chinese).
- [29] 张华, 王长福, 贺诚, 等. 氧化镨对高钠硼硅酸盐废物玻璃结构的作用及化学性能的影响[J]. *原子能科学技术*, 2025, 59(8): 1621-1629.
- ZHANG Hua, WANG Changfu, HE Cheng, et al. Effect of praseodymium oxide on glass structure and chemical properties of high sodium borosilicate waste[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2025, 59(8): 1621-1629(in Chinese).
- [30] 张华, HYATT N C, HAND R J. ZnO 和 CaO 对模拟高放废液硅酸盐玻璃固化体性能的影响研究[J]. *原子能科学技术*, 2015, 49(7): 1159-1164.
- ZHANG Hua, HYATT N C, HAND R J. Influence of ZnO and CaO on the properties of simulated high-level waste silicate glass wastefoms[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2015, 49(7): 1159-1164(in Chinese).
- [31] 张华, 巴伟伟, 李扬, 等. 采用 XRD 和 Raman 方法研究镨在模拟高放废液铁磷酸盐玻璃固化体网络结构中的角色[C]//中国核学会 2019 年学术年会. 北京: 中国原子能出版社, 2019.
- [32] 常斐, 朱冬冬, 王佳腾, 等. 模拟动力堆高放废液玻璃固化体的析晶行为及其对浸出率的影响[J]. *核化学与放射化学*, 2023, 45(1): 22-31.
- CHANG Jiong, ZHU Dongdong, WANG Jiateng, et al. Crystallization behavior of vitrified forms of simulated power-reactor high-level liquid waste and its effect on leaching rate[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2023, 45(1): 22-31(in Chinese).
- [33] 常斐. 高 Zr、Mo 模拟动力堆高放废液硼硅酸盐玻璃固化行为研究[D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2025.
- [34] 陈楠, 刘丽君, 郗东生, 等. 基于 ANSYS 的冷坩埚感应线圈设计及电磁分析[J]. *核化学与放射化学*, 2014, 36(1): 21-26.
- CHEN Nan, LIU Lijun, QIE Dongsheng, et al. ANSYS-based design and electromagnetic analysis of cold-crucible

- cible induction coils[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2014, 36(1): 21-26(in Chinese).
- [35] 王泽学, 李宝军, 李玉松, 等. 高放废液冷坩埚玻璃固化自适应负压调节系统的设计[J]. *原子能科学技术*, 2022, 56(12): 2607-2615.
WANG Zexue, LI Baojun, LI Yusong, et al. Design of an adaptive negative-pressure regulation system for cold-crucible vitrification of high-level liquid waste[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2022, 56(12): 2607-2615(in Chinese).
- [36] 王泽学, 李玉松, 朱冬冬, 等. $\phi 100$ 冷坩埚玻璃固化高频电源多物理场耦合仿真研究[J]. *原子能科学技术*, 2023, 57(5): 1076-1088.
WANG Zexue, LI Yusong, ZHU Dongdong, et al. Multiphysics coupling simulation of a high-frequency power supply for $\phi 100$ cold-crucible glass vitrification[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2023, 57(5): 1076-1088(in Chinese).
- [37] TAN Shengheng, CHANG Jiong, LIU Xiao, et al. Influence of radioactive sludge content on vitrification of high-level liquid waste[J]. *Sustainability*, 2023, 15(6): 4937.
- [38] 常熨, 王佳腾, 刘潇, 等. 模拟高放氯化物废盐渣玻璃陶瓷固化体稳定性研究[J]. *原子能科学技术*, 2025, 59(2): 191-197.
CHANG Jiong, WANG Jiateng, LIU Xiao, et al. Stability of glass-ceramic wasteforms for simulated high-level chloride salt residues[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2025, 59(2): 191-197(in Chinese).
- [39] 葛宗尧, 谭盛恒, 李应举, 等. 耐蚀合金在废盐渣玻璃陶瓷固化过程中的热腐蚀行为[J]. *金属学报*, 2025. doi:10.11900/0412.1961.2024.00436.
GE Zongyao, TAN Shengheng, LI Yingju, et al. Hot corrosion behavior of corrosion-resistant alloys during the glass-ceramic solidification of simulated high-level salt slags[J]. *Acta Metallurgica Sinica*, 2025. doi:10.11900/0412.1961.2024.00436(in Chinese).
- [40] 李腾, 华小辉, 王雷, 等. 地下水穿透情形下玻璃固化体的蚀变研究[J]. *原子能科学技术*, 2019, 53(4): 594-602.
LI Teng, HUA Xiaohui, WANG Lei, et al. Alteration of vitrified wasteforms under groundwater intrusion scenarios[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2019, 53(4): 594-602(in Chinese).
- [41] 华小辉, 张振涛, 王雷, 等. 模拟高放玻璃体在高温湿气中的蚀变行为[J]. *核化学与放射化学*, 2019, 41(3): 264-271.
HUA Xiaohui, ZHANG Zhentao, WANG Lei, et al. Alteration behavior of simulated HLW glass in humid air at high temperature[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2019, 41(3): 264-271(in Chinese).
- [42] 华小辉, 游新锋, 李腾, 等. 模拟高放玻璃固化体在多重介质下的腐蚀行为[J]. *核化学与放射化学*, 2019, 41(5): 484-491.
HUA Xiaohui, YOU Xinfeng, LI Teng, et al. Corrosion behavior of simulated HLW glass in multimedia environment[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2019, 41(5): 484-491(in Chinese).
- [43] 姜涛, 龙浩骑, 王波, 等. Np 在 Np-水-膨润土平衡体系中的形态及价态分布[J]. *原子能科学技术*, 2016, 50(2): 242-246.
JIANG Tao, LONG Haoqi, WANG Bo, et al. Speciation and valence distribution of Np in the Np-water-bentonite equilibrium system[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2016, 50(2): 242-246(in Chinese).
- [44] 刘晨, 方升, 许强伟, 等. Am(III) 胶体稳定性及其在膨润土胶体上的吸附[J]. *核化学与放射化学*, 2022, 44(6): 610-618.
LIU Chen, FANG Sheng, XU Qiangwei, et al. Colloidal stability of Am(III) and its sorption on bentonite colloids[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2022, 44(6): 610-618(in Chinese).
- [45] 龙浩骑, 周舵, 姜涛, 等. Pu(IV) 在模拟处置条件下的溶解度[J]. *核化学与放射化学*, 2015, 37(2): 115-119.
LONG Haoqi, ZHOU Duo, JIANG Tao, et al. Solubility of Pu(IV) under simulated disposal conditions[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2015, 37(2): 115-119(in Chinese).
- [46] 龙浩骑, 周舵, 刘晨, 等. 模拟处置条件下钚在地下水-膨润土体系中的胶体行为研究[J]. *原子能科学技术*, 2025, 59(2): 310-317.
LONG Haoqi, ZHOU Duo, LIU Chen, et al. Colloidal behavior of plutonium in groundwater-bentonite systems under simulated disposal conditions[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2025, 59(2): 310-317(in Chinese).
- [47] 邵延江, 王波, 周舵, 等. 模拟高放废物地质处置条件下铈在去离子水体系中的胶体行为[J]. *原子能科学技术*, 2023, 57(1): 47-56.
SHAO Yanjiang, WANG Bo, ZHOU Duo, et al. Colloidal behavior of technetium in deionized water under simulated geological disposal conditions for high-level waste[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2023, 57(1): 47-56(in Chinese).
- [48] 周舵, 龙浩骑, 陈曦, 等. 低氧条件下温度对 Am(III) 在花岗岩上吸附的影响[J]. *核化学与放射化学*, 2014,

- 36(4): 216-221.
- ZHOU Duo, LONG Haoqi, CHEN Xi, et al. Effect of temperature on sorption of Am(III) onto granite under low-oxygen conditions[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2014, 36(4): 216-221(in Chinese).
- [49] 周舵, 龙浩骑, 陈曦, 等. Am(III) 在地下水中的溶解度[J]. *原子能科学技术*, 2015, 49(4): 775-779.
- ZHOU Duo, LONG Haoqi, CHEN Xi, et al. Solubility of Am(III) in groundwater[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2015, 49(4): 775-779(in Chinese).
- [50] 方升, 刘龙成, 周舵, 等. 电场加速法用于核素迁移参数的获取研究进展[J]. *原子能科学技术*, 2022, 56(4): 601-610.
- FANG Sheng, LIU Longcheng, ZHOU Duo, et al. Progress in using electric-field-accelerated methods to obtain radionuclide migration parameters[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2022, 56(4): 601-610(in Chinese).
- [51] ZHOU Dan, BAO Liangjin, LONG Haoqi, et al. Capillary electrophoresis as sample introduction system for highly sensitive and interference-free determination of ^{99}Tc by ICP-MS[J]. *Chinese Chemical Letters*, 2025, 36(4): 110093.
- [52] ZHOU Dan, LIN Yao, LONG Haoqi, et al. Simultaneous total and speciation analysis of rhenium by capillary electrophoresis-inductively coupled plasma mass spectrometry[J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2021, 180: 106211.
- [53] LI Yao, LI Ruihao, ZHOU Duo, et al. Influence of bentonite colloids generated at different temperatures on uranium(VI) sorption and migration[J]. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 2024, 697: 134417.
- [54] 李遥, 李睿豪, 周舵, 等. 核素迁移软件(MNS)在核素近场扩散模拟中的应用[J]. *核化学与放射化学*, 2025, 47(3): 175-180.
- LI Yao, LI Ruihao, ZHOU Duo, et al. Application of the nuclide-migration software (MNS) in near-field diffusion simulation of radionuclides[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2025, 47(3): 175-180(in Chinese).
- [55] 许强伟, 方升, 刘晨, 等. 模拟高放废物深地质处置条件下 Se 在铁基材料上的氧化还原行为[J]. *核化学与放射化学*, 2022, 44(6): 627-634.
- XU Qiangwei, FANG Sheng, LIU Chen, et al. Redox behavior of Se on Fe-based materials under simulated deep-geological disposal conditions for high-level radioactive waste[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2022, 44(6): 627-634(in Chinese).