ГОСТ Р 50089—92

ГОСУДАРСТВЕННЫЙ СТАНДАРТ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ

ОТХОДЫ РАДИОАКТИВНЫЕ

МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ ДОЛГОВРЕМЕННОЙ УСТОЙЧИВОСТИ ОТВЕРЖДЕННЫХ ВЫСОКОРАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ К АЛЬФА-ИЗЛУЧЕНИЮ

Издание официальное

БЗ 6—92/704

ГОССТАНДАРТ РОССИИ
Москва

gost.e-ecolog.ru

УДК 621.039.7.001.4:006.354 Группа Ф59

ГОСУДАРСТВЕННЫЙ СТАНДАРТ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ

ОТХОДЫ РАДИОАКТИВНЫЕ

Метод измерения долговременной устойчивости отвержденных высокорадиоактивных отходов к альфа-излучению

Radioactive waste. Method of measuring long-time alpha-radiation resistance of solidified radioactive waste

ГОСТ Р 50089—92

ОКСТУ 0017

Дата введения 01.07.93

Настоящий стандарт устанавливает метод измерения долговременной устойчивости отвержденных высокорадиоактивных отходов к альфа-излучению.

С целью обеспечения надежного хранения и захоронения высокорадиоактивных отходов в настоящее время разработаны и разрабатываются процессы отверждения отходов путем включения в материалы, пригодные для длительного хранения.

Материалами для включения отходов являются стеклоподобные материалы (фосфатные и боросиликатные), керамика или стеклокерамика, минералоподобные материалы (типа ферросиликаты, пироксены, амфиболы и др.), двухфазная смесь стеклянных гранул в металлической матрице.

При хранении отвержденные материалы подвергаются облучению, поэтому одним из обязательных требований является радиационная стойкость (неизменность свойств) в течение всего времени хранения и захоронения.

Несмотря на то, что количество β-распадов продуктов деления существенно превосходит количество α-распадов, последние являются основной причиной атомных замещений в твердом теле, способных вызвать нарушения целостности структуры отвержденных материалов. Поэтому следует определять устойчивость отвержденных материалов к альфа-излучению.

Требования настоящего стандарта являются обязательными.

Издание официальное

© Издательство стандартов, 1992

Настоящий стандарт не может быть полностью или частично воспроизведен, тиражирован и распространен без разрешения Госстандарта России

1. ОБЩИЕ ПОЛОЖЕНИЯ

1.1. Большинство атомных замещений вызывается ядрами отдачи актинидов, поэтому внешнее облучение альфа-частицами не может считаться удовлетворительной имитацией.

Образцы материалов должны приготовляться методами, максимально приближающимися к соответствующему технологическому процессу.

Отвержденные материалы должны содержать определенные концентрации нуклидов продуктов деления, которые для удобства могут быть неактивными.

В процессе получения образцы метят короткоживущими α-излучателями, что позволяет получить необходимое количество α-распадов на единицу массы. В этих условиях один год хранения будет соответствовать значительно более долгому времени реального хранения.

1.2. Расчет необходимой дозы

α-излучатели, содержащиеся в отходах, включают в отвержденные материалы. Количество их в отходах должно определяться типом реактора, степенью выгорания и технологией переработки топлива.

Примечания:

1. Наиболее важным нуклидом является Am^{241}.
2. Плутоний, остающийся в отходах, будет давать значительный вклад в интегральную дозу радиации отвержденных материалов только через тысячи лет.

Для каждого частного случая отвержденных отходов количество α-распадов на единицу массы твердого материала рассчитывают отдельно.

Зависимость количества α-распадов на единицу массы отвержденного материала от времени хранения для отходов, полученных в результате переработки топлива с разным временем охлаждения перед переработкой (6 мес., 2 года и 10 лет), принимается в соответствии с приложением 1, черт. 1.

Время хранения твердого материала, имитирующего реальные отходы, должно быть заранее определено. Рекомендуется, чтобы имитация определяла хранение не менее нескольких тысяч лет.

1.3. Выбор нуклида

Для метки применяют Pu^{238}, Am^{241}, Cm^{242}, и Cm^{244}. Выбор нуклида (радионуклида) зависит от возможностей исследователя с учетом следующих критериев:

— периода полураспада нуклида;

— период полураспада

Pu^{238} — 87,7 лет;

Am^{241} — 433 года;

Cm^{242} — 163 дня;
Cm^{244} — 18,1 года.

Следовательно, учитывая периоды полураспада нуклидов, для получения равной дозы количество Am и Pu должно быть большим, чем количество Cm. Применение Am^{241} нецелесообразно из-за большой продолжительности жизни.

Оксид плутония плохо растворим в сложных боросиликатных и фосфатных стеклах, поэтому его следует вводить в количестве, не превышающем предел растворимости, или обеспечить равномерное распределение его по объему материала в процессе отверждения. Для других отвержденных высокорадиоактивных отходов (витрометов, стеклокомпозитов и др.) целесообразность использования плутония должна быть дополнительно исследована.

Для уточнения отсутствия сегрегации проверяют внутренние слои стекла методом ауторадиографии.

Выбрав требуемую дозу, определяют концентрацию выбранного нуклида для получения этой дозы в необходимое время. Концентрацию определяют в каждом отдельном случае, так как изотопная чистота может меняться (приложение 2, черт. 2).

2. ПОРЯДОК ПОДГОТОВКИ К ПРОВЕДЕНИЮ ИЗМЕРЕНИЙ

2.1. Приготовление образцов

Составы образцов должны быть возможно близкими промышленным образцам. Для того, чтобы отклонение в химическом составе твердых материалов было минимальным к имитирующим отходам, вместо других актинидов и редкоземельных элементов (атом на атом) добавляют кюрий.

Плутоний-238 должен замещать церий или уран (в первую очередь), а затем, при необходимости, другие редкоземельные элементы.

Для сравнения должны быть приготовлены контрольные немеченые (нерадиоактивные) образцы.

С помощью аутографии и микроскопии следует проверить не однородность распределения α-повреждений в материале. Теми же методами следует определять распределение актинидов в кристаллических фазах и повреждениях, вызываемые ими в нестекловидных материалах, поскольку α-частицы, вызывающие ионизацию, могут проникать в фазы, смежные той, в которой происходит распад.

2.2. Измерения перед хранением

После приготовления меченых и контрольных образцов проводят следующие измерения:

определение плотности;

скорость выщелачивания одним из быстрых методов: или методом Сокслета или экспресс-методом определения химической устойчивости по изменению электропроводности воды, контактирующей с отвержденными материалами (метод Кольрауша).

микроскопические определения по распределению вводимых радионуклидов или их имитаторов в тонком слое (определение микротрещин методами оптической микроскопии; изменения химического состава поверхности с помощью электронной микроскопии, рентгенофазового анализа);

рентгенофазовое определение (для кристаллических и стеклокристаллических материалов);

механические свойства (прочность на сжатие, на изгиб, определение микротвердости на микротвердомере ПМТ-3 и др.).

Методы определения приведены в разд. 3.

2.3. Хранение

Образцы должны храниться в течение определенного периода времени, достаточного для получения необходимой дозы (год или более) при комнатной температуре, так как радиационные эффекты наиболее заметны при температуре до 100°С.

3. ПОРЯДОК ПРОВЕДЕНИЯ ИЗМЕРЕНИЙ

3.1. Наиболее важными свойствами твердых материалов при хранении являются:

химическая устойчивость (определяется скоростью выщелачивания отдельных нуклидов);

плотность;

запасенная энергия;

структурная целостность.

В отдельных случаях можно изучать удаление гелия.

Для оценки вклада влияния α-облучения в изменение свойств отходов необходимо определять эти свойства до и после некоторого периода хранения меченых и контрольных образцов.

3.2. Скорость выщелачивания

Скорость выщелачивания определяют одним из быстрых методов (методом Сокслета или методом Кольрауша) сразу же по приготовлении образцов. Повторные опыты должны быть проведены после необходимого периода хранения.

Особенно внимательно следует относиться к определению скорости выщелачивания в первые сутки после окончания хранения, ибо радиационное воздействие может приводить к образованию легкорастворимых соединений на поверхности, которые переходят в контактный раствор в первые сутки. Для этих целей наиболее чувствительным является экспресс-метод (метод Кольрауша),

фиксирующий изменения в минутных и часовых интервалах времени. При более продолжительном контакте с водой эффект перехода образовавшегося легкорастворимого слоя сглаживается и может быть не замечен.

3.3. Измерение плотности

Измерения проводят или методом Архимеда, или методом флотации.

Плотность образцов определяют до и после хранения и с некоторыми интервалами в течение хранения. Одновременно определяют плотность необлученных образцов. Для получения достоверных данных должно быть проведено не менее четырех измерений.

3.4. Запасенная энергия

Запасенную энергию измеряют методом дифференциального термического анализа или с помощью дифференциального сканирующего калориметра в интервале температур от температуры хранения до температуры, близкой к точке размягчения.

Нерадиоактивные образцы определяют для сравнения. Для получения достоверных данных требуется не менее четырех измерений.

3.5. Оптические и кристаллографические свойства

Микротрещины определяют методами оптической микроскопии. Микрофотографии должны быть получены на одной и той же поверхности до облучения, во время и после облучения.

Для кристаллических и стеклокристаллических материалов проводят рентгенофазовый анализ до и после облучения и для контрольных образцов.

Для кристаллических материалов возможно проведение рентгеноструктурного анализа с целью определения изменения параметров и появления нестабильных фаз.

3.6. Выделение гелия (факультативно)

При выделении (от α-частиц) гелия из твердого материала возможно увеличение давления в контейнере, если имеется небольшое свободное пространство над твердым веществом.

Для исследования образцы хранят в гелий-непроницаемой капсуле. Количество гелия, выделяющегося из образцов, измеряют масс-спектроскопическим методом в конце периода хранения.

4. ПРЕДСТАВЛЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ИЗМЕРЕНИЙ

4.1. Характеристика отвержденных материалов

Таблица составов реальных и имитирующих материалов. Период хранения и доза. Концентрация и активность меченых нуклидов.

4.2. Метод приготовления

Характеристика исходных материалов, применяемых в реальных условиях получения отвержденных отходов и при приготовлении имитирующих образцов. Технологический процесс получения.

Температура плавления. Продолжительность варки расплава.

Условия охлаждения после приготовления.

Ауторадиография образцов.

Факультативно: данные по оптической микрофотографии и результатам рентгенофазового анализа, механической прочности.

4.3. Период хранения

Время хранения и график зависимости дозы от времени хранения.

Температура хранения.

4.4. Результаты опытов

Результаты должны быть изображены графически как функция α-дозы.

4.4.1. *Скорость выщелачивания.*

Результаты опытов по выщелачиванию должны быть представлены в соответствии с методом Сокслета или методом Кольрауша.

4.4.2. *Измерение плотности*

Должен быть приведен метод измерения, температура измерения, значение плотности.

4.4.3. *Запасенная энергия*

Должна быть приведена применяемая методика, размеры образцов в опыте. График зависимости выделенной энергии от температуры. Общая запасенная энергия.

4.4.4. *Оптические исследования*

Должны быть приведены микрофотографии поверхности образцов до и после получения ими дозы.

4.4.5. Рентгенографические исследования (для стеклокристаллических и кристаллических материалов).

Должны быть представлены результаты рентгенофазового анализа до и после определенного периода хранения, которые должны сравниваться с контрольными образцами, фиксируя любые изменения.

4.4.6. *Выделение гелия (факультативно)*

Должно быть представлено описание методики определения, температура хранения, метод определения гелия, данные по количеству выделенного гелия.

В том случае, если гелий не обнаружен, приводят чувствительность применяемого метода измерения.

5. ТРЕБОВАНИЯ БЕЗОПАСНОСТИ

Все работы с радиоактивными образцами должны проводиться с соблюдением «Основных санитарных правил работы с радиоак-

тивными веществами и другими источниками ионизирующих излучений ОСП-72/87», утвержденных Главным государственным санитарным врачом СССР 26.07.89 №-4422—87; «Норм радиационной безопасности НРБ-76/87», утвержденных Главным государственным санитарным врачом СССР 26.05.87 № 4392 и «Санитарных правил обращения с радиоактивными отходами (СПОРО-85)», утвержденных Главным государственным санитарным врачом СССР 01.10.85.

ПРИЛОЖЕНИЕ 1

Рекомендуемое

РАСЧЕТ КОЛИЧЕСТВА α-РАСПАДОВ НА ГРАММ ПРИ РЕАЛЬНОМ ХРАНЕНИИ ОТХОДОВ В ВИДЕ СТЕКЛА

Приведенный пример для отходов реактора PWR (аналог ВВЭР) от окисного уранового топлива, обогащенного до 3,2% U^{235} с выгоранием 33000 МВт сутки/т. Количество образующихся в топливе актинидов рассчитано с помощью компьютера.

Предполагается, что топливо перед переработкой будет охлаждаться. Причиной этого является распад короткоживущих продуктов деления и, таким образом, может быть уменьшена защита и необходимость удаления тепла на перерабатывающем заводе. Основной эффект дают следующие актиниды:

1) Cm^{242},распадающийся до Pu^{238} с периодом полураспада 163 дня;

2) Pu^{241} (β-излучатель), распадающийся до Am^{241} с периодом полураспада 15 лет.

Первый уменьшает дозу в стекле, последний — увеличивает.

При расчете приняты следующие положения:

1) все актиниды, кроме плутония и урана, идут в высокоактивные отходы;

2) 1% Pu и U из облученного топлива также идут в отходы.

Предполагается, что и получаемое стекло содержит 12,5% массовой доли продуктов деления (15,6% массовой доли оксидов продуктов деления).

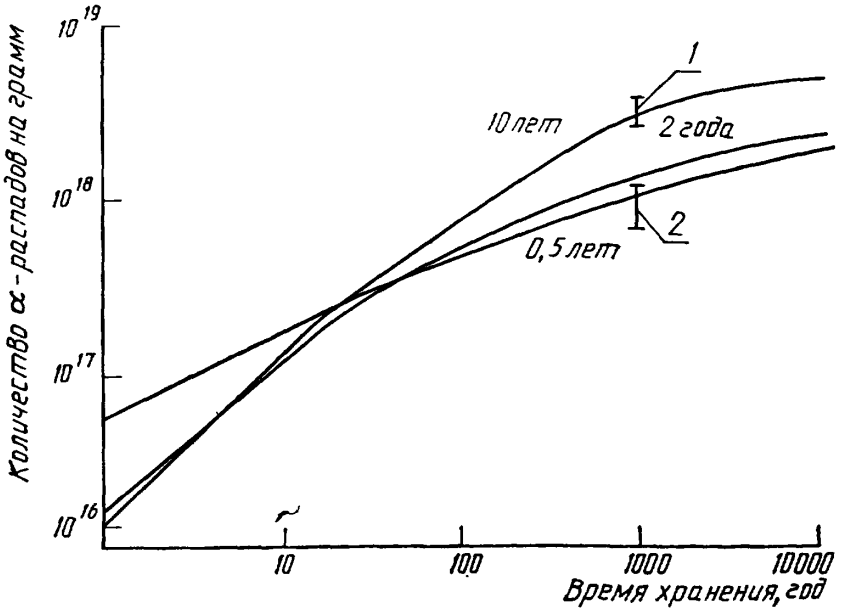
Стекло также будет содержать актиниды и другие компоненты отходов (продукты коррозии, нейтронные яды и компоненты, вводимые при переработке).

Количество α-распадов на грамм твердого материала отложено на графике черт. 1 от времени хранения для разного времени охлаждения перед переработкой — 6 мес, 2 года и 10 лет. Предполагается, что отверждение должно быть проведено немедленно после переработки. Можно видеть, что короткое время охлаждения дает более высокую дозу для первичных соединений благодаря распаду Cm^{242}, но при длительном времени хранения и охлаждения более высокая доза образуется из-за более высокого количества Am^{241} в отходах.

Вертикальные линии на графике при 1000 годах показывают развертывание значений, полученных в течение полугода и для 10 лет охлаждения топлива, при применении различных программ компьютера и ядерных данных, взятых из опубликованных сведений.

Зависимость количества α-распадов на грамм стекла в зависимости от времени хранения стекол, полученных из отходов переработки топлива с разным временем охлаждения.

Отходы от переработки окисного уранового топлива, обогащенного до 3,2% U^{235} с выгоранием 33000 МВт сутки/т.



1—интервал значений при 10-летнем охлаждении; *2*—интервал значений при 0,5-годовом охлаждении для различных программ компьютера

Черт. 1

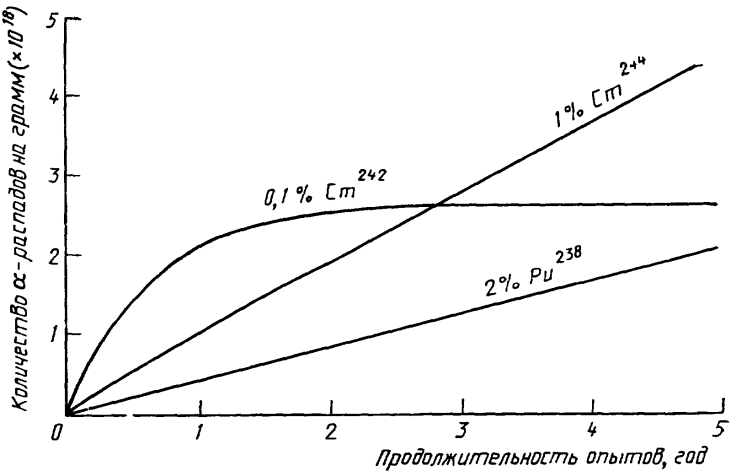
ПРИЛОЖЕНИЕ 2
Рекомендуемое

ДОЗЫ ДЛЯ ОБРАЗЦОВ ОТ МЕЧЕНЫХ НУКЛИДОВ

Дозы для стекла, полученные в результате введения в него некоторых возможных количеств Cm^{242}, Cm^{244} или Pu^{238}, представлены на черт. 2.

В качестве примера рассматриваются твердые материалы, содержащие 12,5% массовой доли продуктов деления от топлива, охлажденного в течение 2 лет перед переработкой. Остеклованные продукты будут давать $1,5 \times 10^{18}$ α-распадов на грамм в первые 1000 лет. Такая же доза может быть получена в течение приблизительно 6 мес. за счет метки образцов 0,1% массовой доли кюрием-242 и приблизительно за 1,5 года 1% массовой доли кюрия-244 или приблизительно 3,5 года с 2% массовых долей плутония-238 и кюрия-244.

Зависимость количества α-распадов на грамм в зависимости от времени проведения опытов для различных нуклидов (в процентах по массе)



Черт. 2

ИНФОРМАЦИОННЫЕ ДАННЫЕ

1. РАЗРАБОТЧИКИ

Л. А. Мамаев, канд. хим. наук, руководитель разработки; **В. В. Кушников**, канд. хим. наук; **Н. В. Крылова**, канд. хим. наук; **И. В. Желтова**

2. УТВЕРЖДЕН И ВВЕДЕН В ДЕЙСТВИЕ

Постановлением Госстандарта России от 03.08.92 № 851

3. Срок проверки — 2001 г., периодичность проверки — 10 лет

4. Стандарт соответствует ИСО 6962—82 в части представления результатов измерений

5. ВВЕДЕН ВПЕРВЫЕ

6. ССЫЛОЧНЫЕ НОРМАТИВНО-ТЕХНИЧЕСКИЕ ДОКУМЕНТЫ

Обозначение НТД, на который дана ссылка	Номер раздела
ОСП-72/87	5
НРБ-76/87	5
СПОРО-85	5

Редактор *В. М. Лысенкина*
Технический редактор *Г. А. Теребинкина*
Корректор *А. В. Прокофьева*

Сдано в наб. 24.08.92 Подп. в печ. 27.10.92 Усл. п. л. 0,75. Усл. кр.-отт. 0,75. Уч.-изд. л. 0,70. Тираж 195 экз.

эчета» Издательство стандартов, 123557, Москва, ГСП, Новопресненский пер., 3
Тип. «Московский печатник». Москва, Лялин пер., 6. Зак. 1451

gost.e-ecolog.ru