

## ОТХОДЫ РАДИОАКТИВНЫЕ

### МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ ДОЛГОВРЕМЕННОЙ УСТОЙЧИВОСТИ ОТВЕРЖДЕННЫХ ВЫСОКОРАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ К АЛЬФА-ИЗЛУЧЕНИЮ

Издание официальное

БЗ 6—92/704

**ГОСУДАРСТВЕННЫЙ СТАНДАРТ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ****ОТХОДЫ РАДИОАКТИВНЫЕ**

**Метод измерения долговременной устойчивости  
отвержденных высокорadioактивных 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 высокорadioактивных отходов к альфа-излучению.

С целью обеспечения надежного хранения и захоронения высокорadioактивных 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  $\beta$ -распадов продуктов деления существенно превосходит количество  $\alpha$ -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 готовиться 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  $\alpha$ -излучателями, что позволяет получить необходимое количество  $\alpha$ -распадов на единицу массы. В этих условиях один год хранения будет соответствовать значительно более долгому времени реального хранения.

### 1.2. Расчет необходимой дозы

$\alpha$ -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  $\text{Am}^{241}$ .

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  $\alpha$ -распадов на единицу массы твердого материала рассчитывают отдельно.

Зависимость количества  $\alpha$ -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. Рекомендуются, чтобы имитация определяла хранение не менее нескольких тысяч лет.

### 1.3. Выбор нуклида

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

- периода полураспада нуклида;
- период полураспада

$\text{Pu}^{238}$  — 87,7 лет;

$\text{Am}^{241}$  — 433 года;

$\text{Sm}^{242}$  — 163 дня;  
 $\text{Sm}^{244}$  — 18,1 года.

Следовательно, учитывая периоды полураспада нуклидов, для получения равной дозы количество Am и Pu должно быть большим, чем количество Sm. Применение  $\text{Am}^{241}$  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 высокорadioактивных 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 однородность распределения  $\alpha$ -повреждений в материале. Теми же методами следует определять распределение актинидов в кристаллических фазах и повреждениях, вызываемые ими в нестекловидных материалах, поскольку  $\alpha$ -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. Х р а н е н и е

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°C.

## 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  $\alpha$ -облучения в изменение свойств отходов необходимо определять эти свойства до и после некоторого периода хранения меченых и контрольных образцов.

### 3.2. С к о р о с т ь   в ы щ е л а ч и в а н и я

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  $\alpha$ -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  $\alpha$ -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  $\alpha$ -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)  $Sp^{242}$ , распадающийся до  $Pu^{238}$  с периодом полураспада 163 дня;
- 2)  $Pu^{241}$  ( $\beta$ -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  $\alpha$ -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  $Sp^{242}$ , но при длительном времени хранения и охлаждения более высокая доза образуется из-за более высокого количества  $Am^{241}$  в отходах.

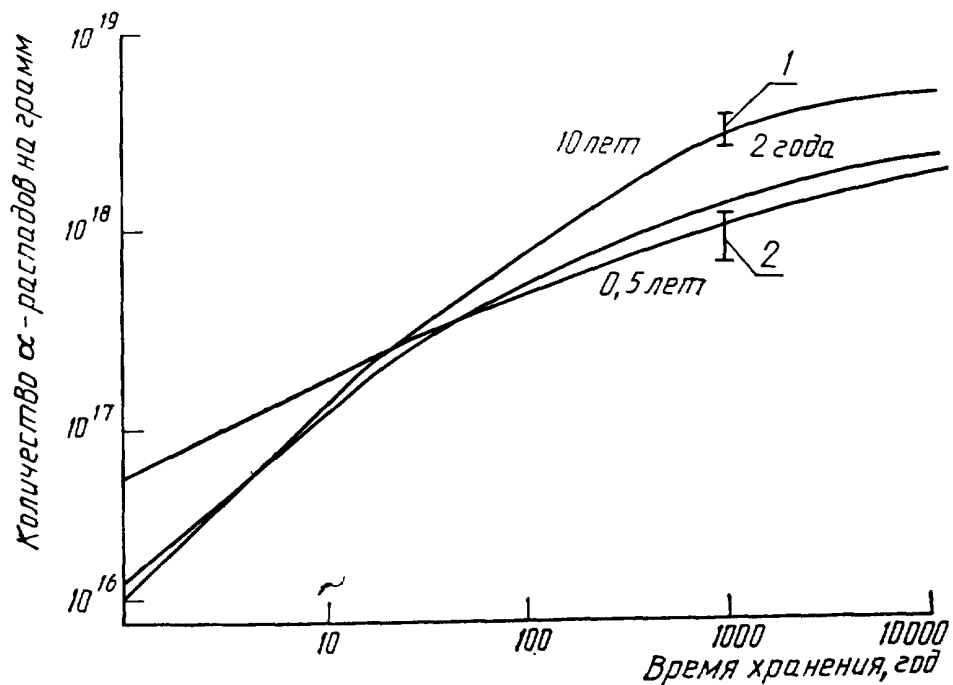
Вертикальные линии на графике при 1000 годах показывают развертывание значений, полученных в течение полугода и для 10 лет охлаждения топлива, при применении различных программ компьютера и ядерных данных, взятых из опубликованных сведений.



### С. 8 ГОСТ Р 50089—92

Зависимость количества  $\alpha$ -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

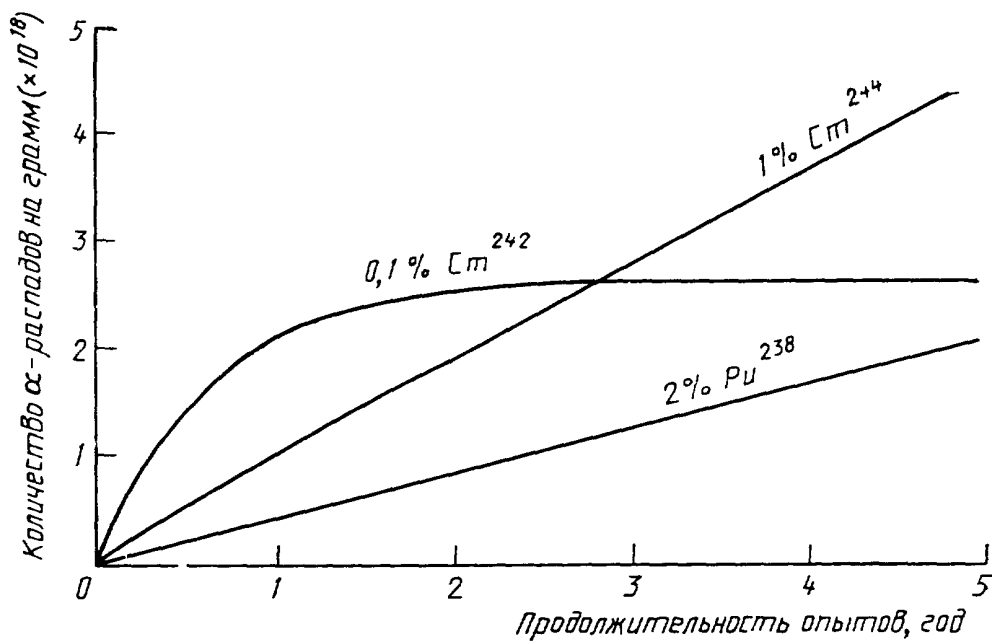
Черт. 1

## ДОЗЫ ДЛЯ ОБРАЗЦОВ ОТ МЕЧЕННЫХ НУКЛИДОВ

Дозы для стекла, полученные в результате введения в него некоторых возможных количеств  $\text{Сп}^{242}$ ,  $\text{Сп}^{244}$  или  $\text{Pu}^{238}$ , 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  $1,5 \times 10^{18}$   $\alpha$ -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  $\alpha$ -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 ДОКУМЕН-  
ТЫ

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.

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