

中华人民共和国国家标准

放射性废物固化体 长期浸出试验

UDC 614.73
: 543.06
GB 7023—86

Long-term leach testing of solidified radioactive waste forms

本标准用于比较和评价放射性废物固化体在实验室控制条件下的抗浸出性能。不宜于将试验结果定量外推，预测废物固化体在实际长期贮存条件下的安全性。

编制本标准时，参照了国际标准 ISO 6961—1982《凝结的放射性废物长期沥滤试验》。

1 适用范围和试验标准条件

1.1 适用范围

本标准适用于测定水泥、沥青、塑料、玻璃和陶瓷等各类废物固化体的抗浸出性能。具体用途如下：

- a. 用于不同种类或不同组成的废物固化体的浸出试验结果的比较；
- b. 用于不同实验室对同一种废物固化体的浸出试验结果的比对；
- c. 用于不同固化过程所制得的废物固化体的浸出试验结果的比较。

1.2 试验标准条件

不同实验室对同一种废物固化体样品的浸出试验结果进行比对时，不要求在每种条件下都做试验，但应该有一组标准条件。比对试验的标准条件如下：

- a. 中低放废物水泥、沥青和塑料固化体样品：25℃和40℃去离子水浸出。累计浸出时间25℃为42天，40℃为28天。必须报告两个重要核素的浸出试验结果。
- b. 高放废物固化体样品：40℃和70℃去离子水浸出。累计浸出时间为28天。必须报告三个废物组分和一个基体元素的浸出试验结果。

2 试验样品、材料和设备

2.1 试验样品

浸出试验样品可以在实验室制备，也可以取自实际废物固化体。

2.1.1 实验室制备的样品

实验室制备的废物固化体样品，在废物的平均组成和化学状态、固化基材的来源，添加剂的种类，固化工艺和配方，固化时间和温度程序，以及固化体的均匀性等方面，应能代表实际固化过程所产生的废物固化体。对于模拟废物，当放射性示踪剂含载体时，应控制和报告载体的浓度。高放废物的放射性核素的模拟见附录A（补充件）中表A1。

2.1.2 实际废物固化体样品

可采用钻芯法或在熔融物浇铸时从旁路取出熔融样的方法获得试验样品。

2.2 浸出剂

依照浸出试验的具体用途，可选择下列浸出剂：

- a. 去离子水，其导电率不应大于150 $\mu\text{S}/\text{m}$ 。
- b. 合成海水，其组成见附录A（补充件）中表A2。

c. 典型的处置场水。

2.3 浸出容器

根据化学惰性、辐照稳定性、热稳定性、抗吸附性能及经济性，推荐以聚乙烯或聚丙烯作为浸出容器材料。

浸出容器的大小和形状应满足 3.2 有关规定

3 浸出试验程序

3.1 样品制备

选择样品尺寸时，应考虑浸出试验前后样品在浸出剂中的几何表面积由于样品溶胀或变形而引起的变化不大于 5%。

3.1.1 水泥固化体样品

水泥样品应装入圆柱形塑料制样容器，用同固化实际废物一样的方法进行空气泡消除处理。混和物在 $25 \pm 5^\circ\text{C}$ 近饱和和湿气氛条件下至少养护 28 天。浸出试验开始前取出圆柱形固化块。要求样品长径比等于或稍大于 1。样品几何表面积应为 $10 \sim 5\,000\text{ cm}^2$ 。样品的上下端面用零号砂纸磨光，以适当方式除去粉尘。

3.1.2 沥青固化体样品

熔融样品应注满特制的聚四氟乙烯圆柱形制样容器。容器长径比为 1，上部敞开。样品凝固后不从容器中取出。样品上端面的几何表面积应为 $2 \sim 1\,000\text{ cm}^2$ 。

3.1.3 塑料固化体样品

试验样品为圆柱形，长径比等于或稍大于 1，样品表面积应为 $10 \sim 5\,000\text{ cm}^2$ 。热塑性塑料固化体采用切割法制样，其上下端面用零号砂纸磨光，以适当的方式除去粉尘。热固性塑料固化体样品采用浇铸成型。脲醛树脂与废物的混合物硬化后应在 $25 \pm 5^\circ\text{C}$ 密封养护 10 天。

3.1.4 玻璃或陶瓷固化体样品

样品应是整块的立方体或圆柱形（后者长径比等于或稍大于 1）。制样时采用金刚砂片切割，得到未经抛光的表面。样品几何表面积应为 $1 \sim 5\,000\text{ cm}^2$ 。

3.2 浸出容器的准备

试验样品用尼龙丝悬挂于浸出容器中，加入浸出剂的体积应按式 (1) 计算：

$$\frac{\text{浸出剂体积}}{\text{样品几何面积}} = 10 \sim 15\text{ cm} \quad (1)$$

如果加入浸出剂体积与本规定不符，则报告中应注明实际加入体积及变动的原因。

加入浸出剂后还应使样品在各个方向上至少被 1 cm 厚（对最小的样品）到 10 cm 厚（对最大的样品）的浸出剂所包围。容器使用前先用酸洗再用去离子水洗净。浸出时不允许搅动溶液。

在每个浸出周期内容器必须盖严，使浸出剂因蒸发和辐解而引起的损失小于初始体积的 10%。

沥青样品连同其制样容器直接放置于浸出容器中，只有样品的上端面与浸出剂接触。

在对样品做浸出试验的同时，应以相同的方式对容器做空白试验。

3.3 浸出温度

浸出试验应在下列温度下进行：

- a. $25 \pm 5^\circ\text{C}$;
- b. $40 \pm 2^\circ\text{C}$;
- c. $70 \pm 2^\circ\text{C}$;
- d. $90 \pm 2^\circ\text{C}$ 。

某些固化体样品不耐较高的温度，可不做较高温度的浸出试验。

3.4 更换浸出剂

按规定时间间隔(见 3.5)从浸出容器中取出试验样品,将其立即转移到放有新鲜浸出剂的另一容器中,在转移时样品不预干燥。原浸出容器应盖严以备分析用。

3.5 更换周期

浸出剂更换周期取决于试验样品的材料及样品的放射性活度。一般规定,从开始浸出试验第 1, 3, 7, 10, 14, 21, 28, 35 和 42 天后更换浸出剂,再往后每过一个月更换一次。如果浸出剂更换周期与本规定不符,报告中必须注明实际更换周期及变动的理由。

3.6 浸出试验截止时间

浸出试验应一直进行到试验误差范围内浸出率实际上恒定不变为止。一般 25 °C 时,浸出试验至少应进行一年,40 °C 时至少应进行 6 个月。

4 样品测定

4.1 分析样品应包括试验样品转移后留在浸出容器中溶解的、悬浮的、沉积的和吸附的物质。水泥固化体的浸出液在取样前应预酸化。除了必须分析浸出液外,必要时应对浸出容器进行解吸,并将解吸液分析的结果加到浸出试验结果中去。

4.2 对中、低放废物固化体必须测定所有重要的放射性核素在原始样品和浸出液中的含量。

4.3 对高放废物固化体必须测定所有重要的废物组分和基体元素在原始样品和浸出液中的含量。

4.4 测定浸出液的 pH 值和电导率,应在试样转移和浸出液冷却到室温后立即进行。

5 试验报告

5.1 试验样品

5.1.1 报告中应说明实验室制备样品的方法或从实际固化体中取样的步骤,说明固化体的预处理情况(如热处理或辐照)和附有样品的均匀性数据,并记录样品在试验期间或试验后是否溶胀、变形或产生裂纹。

5.1.2 固化体的类型和组成

a. 水泥:应报告基体材料的型号和化学组成(包括含水量),每种添加剂的作用、组成和比例,固化体中废物包容量。

b. 沥青:应报告沥青型号(尽可能注明原油产地),固化体的软化点,固化体中废物包容量和含水量以及固化过程曾达到的最高温度。

c. 塑料:应报告塑料种类和组成及有关的物理性质,固化过程的催化剂和促进剂,聚合反应类型和曾达到的最高温度,固化体中废物包容量和含水量。

d. 玻璃和陶瓷:应报告基体材料的化学组成,固化体中废物包容量。

5.1.3 尽可能具体地报告固化废物的类型和化学组成。要对模拟废物的制备方式做出说明。要注明高放废物 α 、 β 、 γ 的比活度。

5.1.4 应报告样品的重要物理性质,试验前样品的密度和重量,试验前后样品的外形尺寸、几何表面积和体积。

5.2 浸出剂

5.2.1 应报告浸出剂的种类和化学组成,浸出剂的加入体积和更换周期,浸出试验温度。

5.2.2 应报告浸出剂、浸出液和对容器的空白试验溶液的 pH 值和电导率。

5.3 分析方法

应详细说明所用的分析测量方法,包括方法的准确度和精密度。对于放射化学分析,应说明每种核素的测定方法,尤其是它们的刻度方法和所用的标准源或标准溶液。

5.4 浸出试验结果

5.4.1 各组分的浸出试验结果应以该组分的浸出率 R_i 及累积浸出分数 P_i 同浸出时间 t 的关系表示:

$$R_n^i = \frac{a_n^i/A_0^i}{F/V \cdot t_n} \quad (2)$$

$$P_t^i = \frac{\sum a_n^i/A_0^i}{F/V} \quad (3)$$

式中： R_n^i ——在第 n 浸出周期中第 i 组分的浸出率， $\text{cm} \cdot \text{d}^{-1}$ ；

a_n^i ——在第 n 浸出周期中浸出的第 i 组分的活度 (Bq) 或质量 (g)；

A_0^i ——在浸出试验样品中第 i 组分的初始活度 (Bq) 或质量 (g)；

F ——样品与浸出剂接触的几何表面积， cm^2 ；

V ——样品的体积， cm^3 ；

t_n ——第 n 浸出周期的持续天数，d；

P_t^i ——在时间 t 时第 i 组分的累积浸出分数，cm；

t ——累计的浸出天数，d。 $t = \sum t_n$ 。注意 A_0^i 和 a_n^i 应该照衰变时间进行校正。

浸出试验所取得的全部数据应以表格形式列出。表格中还应附有浸出液 pH 值和电导率测量结果。

5.4.2 报告浸出试验结果时至少应有两个重复试验数据。

附录 A

(补充件)

表 A1 高放废物中放射性核素的模拟

| 放射性核素 | 代 用 元 素 | | | |
|----------------|---------|------|------|------|
| | 法国玻璃 | 德国玻璃 | 英国玻璃 | 美国玻璃 |
| Tc | Mo | Mn | Mn | Mo |
| Ru | — | — | — | Fe |
| Rh | Pd | — | — | Co |
| Pm, Sm, Eu, Gd | Nd | Nd | Nd | RE |
| Np, Pu, Am, Cm | U | U | U | RE |
| U | — | — | — | RE |

注：RE 为国外市售稀土元素混合物，其标称组成（重量%）为： Y_2O_3 (0.2)， La_2O_3 (24.0)， CeO_2 (48.0)， Pr_4O_{11} (5.0)， Nd_2O_3 (17.0)， Sm_2O_3 (3.0)， Eu_2O_3 (0.8)， Gd_2O_3 (2.0)。

表 A2 合成海水配方

| 化 合 物 | 质量, g |
|---------------------------------|--------|
| NaCl | 23.497 |
| MgCl ₂ | 4.981 |
| Na ₂ SO ₄ | 3.917 |
| CaCl ₂ | 1.102 |
| KCl | 0.664 |
| NaHCO ₃ | 0.192 |
| KBr | 0.096 |
| 总 量 | 34.449 |

注：用水稀释到 1 000 g，离子强度应该为 0.71 mol/kg。

附加说明：

本标准由中华人民共和国核工业部提出。

本标准由核工业部辐射防护研究所负责起草。

本标准主要起草人陈式。

本标准委托核工业部环境保护部门负责解释。