

RAPORTY IChTJ. SERIA B nr 2/2024

**METODY CHARAKTERYZOWANIA
ODPADÓW PROMIENIOTWÓRCZYCH
DOSTĘPNYMI TECHNIKAMI
RADIOANALITYCZNYMI ORAZ NOWYMI
ZAAWANSOWANYMI METODAMI**

Oliwer Sado, Grażyna Zakrzewska-Koltuniewicz

Warszawa 2024

AUTORZY

Oliwer Sado

Stażysta – Instytut Chemii i Techniki Jądrowej, Centrum Radiochemii i Chemii Jądrowej

Grażyna Zakrzewska-Kołtuniewicz

Instytut Chemii i Techniki Jądrowej, Centrum Radiochemii i Chemii Jądrowej

WYDAWCA

Instytut Chemii i Techniki Jądrowej

ul. Dorodna 16, 03-195 Warszawa

tel. 22 811 06 56, fax: 22 811 15 32, e-mail: www.ichtj.waw.pl

Raport został wydany w postaci otrzymanej od Autorów

Metody charakteryzowania odpadów promieniotwórczych dostępnymi technikami radioanalitycznymi oraz nowymi zaawansowanymi metodami

W raporcie omówiono metody charakteryzowania odpadów promieniotwórczych stosowane na różnych etapach cyklu życia tych odpadów: w miejscu wytwarzania, w trakcie przetwarzania, przechowywania oraz przygotowania do składowania. Uwzględniono zarówno metody nieniszczące, jak i niszczące. Omówiono warunki ich stosowania dla poszczególnych typów odpadów, a także ograniczenia w ich użyciu.

Methods of characterizing radioactive waste using available radioanalytical techniques and new advanced methods

The report discusses methods for characterizing radioactive waste, which are performed at various stages of their lifecycle: at the point of production, processing, storage and preparation for storage. The study takes into account both non-destructive and destructive methods, discussing the conditions of their use for particular types of waste as well as the limitations in their use.

SPIS TREŚCI

1. CHARAKTERYSTYKA ODPADÓW	7
1.1. Rodzaje odpadów	7
1.1.1. <i>Nowe odpady</i>	7
1.1.2. <i>Odpady historyczne</i>	8
1.1.3. <i>Podtypy odpadów</i>	8
2. STOSOWANE METODY CHARAKTERYZOWANIA ODPADÓW PROMIENIOTWÓRCZYCH	11
2.1. Metodologia współczynników skalowania	11
2.2. Badanie nieniszczące	11
2.3. Test nieniszczący	12
2.3.1. <i>Metody gamma</i>	13
2.3.2. <i>Metody neutronowe</i>	13
2.4. Test niszczący	14
3. PODSUMOWANIE	14
4. BIBLIOGRAFIA	15

1. CHARAKTERYSTYKA ODPADÓW

Odpady charakteryzuje się na różnych etapach cyklu ich życia: w miejscu wytwarzania, na poszczególnych etapach przetwarzania (obróbka i kondycjonowanie), przechowywania oraz przygotowania do składowania. Racjonalne postępowanie z odpadami promieniotwórczymi wymaga planowych i systematycznych działań i strategii w celu zagwarantowania, że cały system, procesy i produkty końcowe spełnią założone wymagania jakościowe. Dla zapewnienia jakości produktu końcowego, bezwzględnie konieczna jest znajomość oraz kontrola parametrów chemicznych i radiochemicznych w całym cyklu życia odpadów, ze szczególnym uwzględnieniem kondycjonowania, przechowywania i składowania. Testy i analizy mające na celu zbadanie zawartości promieniotwórczej oraz jakości końcowych postaci odpadów i opakowań są kluczowymi elementami kontroli, niezbędnymi do sporządzania dokładnej charakterystyki odpadów.

Rodzaj i zakres prac związanych z charakteryzacją zależą od wielu czynników, np.:

- rodzaju lub postaci odpadu;
- koncepcji postępowania;
- obowiązującego systemu regulacyjnego;
- dostępnej wiedzy o procesach, którym odpady wcześniej podlegały;
- rodzaju mierzonych cech [1, 2].

Z uwagi na różnorodność i szeroki zakres prac niemożliwe jest zdefiniowanie lub zalecenie stosowania jednej procedury charakteryzacji, nawet dla podobnych postaci i opakowań odpadów. Aby opracować strategię działań zmierzających do scharakteryzowania odpadów w konkretnym przypadku, należy ocenić:

- kryteria akceptacji odpadów – WAC (i zasadność ich stosowania) [3];
- bezpieczeństwo koncepcji postępowania (np. przyjęte założenia, potrzebne informacje).

Istotne jest, aby charakterystyka odpadów była traktowana jako część szerszej strategii postępowania z odpadami, a różne zaangażowane podmioty zajmujące się charakteryzowaniem współdziałały ze sobą i wymieniały się informacjami. Przy opracowaniu schematu organizacyjnego charakteryzowania odpadów powinno uwzględniać się relacje między różnymi organami: organizacją odpowiedzialną za przetwarzanie odpadów, organizacją zajmującą się składowaniem, organem regulacyjnym, producentami i operatorami wytwarzającymi odpady oraz niezależnym laboratorium kontrolnym. Podstawowa zasada jakości odnosi się do niezależności poszczególnych organów i wykonywanych przez nie czynności charakteryzujących. Wytwórca odpadów promieniotwórczych oraz operatorzy (przetwarzanie i kondycjonowanie, przechowywanie i składowanie) realizują programy charakteryzacji z różnych powodów. Ich działania muszą być powiązane i raportowane organizacji zajmującej się odpadami, a niezależne laboratorium musi odpowiadać i zgłaszać wyniki organowi regulacyjnemu. Zastosowanie dodatkowej kontroli poprzez powołanie niezależnego laboratorium jest podstawą zapewnienia jakości i w znacznym stopniu przyczynia się do zwiększenia zaufania społecznego do bezpieczeństwa końcowej fazy jądrowego cyklu paliwowego. Dodatkowa kontrola jakości musi być starannie wyważona, aby uzyskać z niej maksymalne korzyści przy rozsądnych nakładach.

1.1. Rodzaje odpadów

1.1.1. Nowe odpady

Nowe odpady zdefiniowano jako odpady wytworzone z zastosowaniem programu umożliwiającego ich identyfikację. Mogły one jednak zostać wytworzone jakiś czas temu, są odpowiednio przetworzone (jeszcze niezestalone) i umieszczone w tymczasowym przechowalniku [4]. Podstawową cechą wyróżniającą ten rodzaj odpadów jest to, że znana jest ich historia i charakterystyka, a wiedza o procesach przetwarzania jest wystarczająco zachowana dzięki odpowiedniej kontroli i nadzorowi.

1.1.2. Odpady historyczne

Odpady historyczne są to odpady wytwarzane bez pełnego programu charakterystyki ich pochodzenia lub wdrożonego systemu zarządzania jakością. W rzeczywistości odpady „historyczne” mogą też powstawać dzisiaj. Na przykład ciągle zbieranie i umieszczanie w magazynie surowych odpadów bez dokładnej charakterystyki i segregacji, które oczekują tam na wydobycie, pełną charakterystykę i przetworzenie, jest w rzeczywistości ciągłym wytwarzaniem odpadów historycznych

Kluczowe cechy odpadów historycznych są następujące:

- mogą być kondycjonowane, częściowo przetworzone lub surowe;
- skład izotopowy jest nieznany lub słabo rozpoznany;
- nie można jednoznacznie zidentyfikować procesu, w jakim zostały wytworzone i ustalić miejsca ich pochodzenia;
- strumienie odpadów mogą być zmieszane.

Podstawowe identyfikatory odpadów historycznych to:

- niepełna historia;
- niepełna lub niewłaściwa charakterystyka;
- system jakości nie obejmuje całego cyklu życia odpadów w momencie ich wytworzenia lub nie spełnia współczesnych standardów dla całego cyklu życia.

1.1.3. Podtypy odpadów

Przygotowując strategię charakteryzowania różnych strumieni odpadów, zarówno nowych, jak i historycznych, korzystnie jest podzielić je na cztery podtypy będące złożeniem dwóch składowych: zależnej od składu i związanej ze stopniem złożoności właściwości odpadów (fizycznych, radiologicznych, chemicznych itp.) – tabela 1. Pierwszy składnik wynika ze złożoności oznaczenia wektora nuklidów lub zbioru właściwości, a drugi – ze zmienności wektorów.

Pierwsza składowa jest opisana jako typ prosty lub złożony. Odnosi się to do poziomu trudności (i związanych z tym kosztów) opracowania listy właściwości odpadu. Proste strumienie odpadów nie wymagają dużego wysiłku ani kosztów, aby wyznaczyć wektor radionuklidów. Bardziej złożone strumienie do wyznaczenia wektorów wymagają wielu kosztownych analiz.

Druga składowa odnosi się do tego, czy właściwości odpadów pozostają względnie stałe w czasie. Strumienie odpadów pochodzących z jednego procesu będą stabilne, a odpady pochodzące z różnych lub wielu procesów będą najprawdopodobniej zmienne. Stabilne strumienie będą charakteryzowały się mniejszą niepewnością w oznaczaniu wektora radionuklidów (niepewnością składu). Strumienie zmienne będą zazwyczaj trudne do przetwarzania, ponieważ niepewność wektora składu nuklidów będzie się zmieniać. Jeśli stopień zmienności jest nie do przyjęcia, może być konieczne (jeśli będzie to możliwe) ponowne sprawdzenie strumienia odpadów i podzielenie go na mniejsze, o bardziej stabilnym składzie.

Odpady proste i stałe

Ten podtyp odpadów jest przypadkiem idealnym z punktu widzenia charakteryzowania, które jest stosunkowo łatwe. Dlatego przy projektowaniu procesów wytwarzania nowych odpadów pożądane jest uzyskanie maksymalnej ilości strumieni odpadów prostych i stałych, w przeciwieństwie do strumieni bardziej złożonych i trudnych do scharakteryzowania.

Odpady tego podtypu charakteryzują się spójnymi i jednorodnymi właściwościami, które nie różnią się znacząco i są wysoce przewidywalne. Nie posiadają złożonych indywidualnych cech wymagających uwzględnienia (np. złożone mieszaniny chemiczne, skomplikowany wektor radionuklidów itp.). Ponieważ właściwości tych odpadów nie różnią się, pobieranie reprezentatywnych próbek jest stosunkowo łatwe, a proste metody pomiarowe, które mogą uchwycić tylko jedną kluczową właściwość, np. radioaktywność, w połączeniu z wiedzą o procesie potwierdzającą, że inne właściwości nie zmieniają się, mogą wystarczyć do scharakteryzowania takich strumieni. W przypadku odpadów zawierających pojedynczy nuklid emitujący promieniowanie gamma pomiary mocy dawki lub całkowitego promieniowania gamma wystarczają do scharakteryzowania właściwości radioaktywnych. Odpady tego podtypu obejmują m.in.:

- Zużyte zamknięte źródła promieniotwórcze
Składniki będą dobrze znane i będzie dostępna szczegółowa dokumentacja. Pobieranie próbek nie będzie konieczne, a bezpośrednie oznaczenie jakościowe i ilościowe będzie prawdopodobnie możliwe przy użyciu bardzo prostych środków.
- Odpady powstające w wyniku wzbogacania, konwersji i produkcji paliwa
Substancje promieniotwórcze będą tylko materiałem rozszczepialnym. Znany będzie wektor nuklidowy, ponieważ jest to ściśle kontrolowana część procesu produkcji paliwa, będąca cennym źródłem informacji o charakterystyce powstających odpadów. Ponieważ proces jest ściśle kontrolowany, strumienie będą stałe dla każdej partii.
- Odpady instytucjonalne i radiofarmaceutyczne
Podobnie jak w przypadku produkcji paliwa, procesy, w których powstają takie odpady, są zwykle ściśle kontrolowane, z bardzo małą liczbą substancji. Dane dotyczące kontroli procesu będą bardzo cenne przy charakteryzowaniu odpadów. Odpady będą stałe dla poszczególnych wsadów substratów.
- Wypalone paliwo jądrowe
Skład wypalonego paliwa nie ulega zmianie do czasu ponownego przetworzenia. Chociaż proporcje nuklidów zmieniają się z powodu rozpadu promieniotwórczego, jest to bardzo dobrze poznany proces i można przewidzieć jego przebieg. Obliczenia stopnia wypalenia mogą dostarczyć wielu danych wymaganych do określenia charakterystyki radiochemicznej paliwa.

Odpady złożone i stałe

Niektóre strumienie odpadów są uznawane za złożone, ponieważ powstają w wyniku skomplikowanych procesów chemicznych lub jądrowych. Wiele właściwości należy wziąć pod uwagę przy charakteryzowaniu, ale jeśli te strumienie są przewidywalne (choć są złożone), to rozkłady właściwości nie różnią się znacząco w różnych partiach. W związku z tym można te strumienie odpadów uznać za złożone i stałe. Podtyp ten jest drugim najbardziej pożądanym do charakteryzacji. Złożony charakter odpadów oznacza, że do charakteryzowania mogą być wymagane bardziej złożone metody pomiarowe. Na przykład odpady ze złożonym wektorem radionuklidowym mogą wymagać wykonania pomiarów z wykorzystaniem spektroskopii gamma w celu scharakteryzowania właściwości radioaktywnych.

Ponieważ odpady tego podtypu nie różnią się znacząco właściwościami, to pobieranie reprezentatywnych próbek jest stosunkowo łatwe.

Odpady należące do tego podtypu obejmują m.in.:

- Odpady eksploatacyjne z elektrowni jądrowej
Większość odpadów eksploatacyjnych z elektrowni jądrowej (ang. nuclear power plant – NPP) będzie silnie skorelowana z układem, z którego odpady pochodzą. Na przykład systemy związane z wymianą ciepła będą źródłem mieszanych produktów rozszczepienia i aktywacji, podczas gdy elementy reaktora będą zawierały głównie produkty aktywacji. Rozkłady właściwości będą silnie skorelowane chemicznie. Inaczej będzie w przypadku procesów chemicznych zachodzących w odpadach, kiedy strumienie będą stosunkowo stabilne. Chociaż strumienie te będą miały stosunkowo złożone wektory nuklidów, to powinny one być dość silnie skorelowane z systemem procesowym i łatwe do rozdzielania na stabilne strumienie. Na przykład odpady przestojowe powinny być oddzielone od ogólnych odpadów eksploatacyjnych, laboratoryjnych, z układów transportu ciepła / załadowania paliwa, konserwacji itp. Do takich odpadów należą: odzież ochronna, filtry, żywice, odpady z dekontaminacji itp.
- Odpady pochodzące z przerobu wypalonego paliwa jądrowego
Przerób wypalonego paliwa obejmuje złożone procesy chemiczne. Procesy chemicznego roztwarzania będą generować złożone produkty, a tym samym złożone odpady o skomplikowanym wektorze radionuklidów. Są to jednak procesy ściśle kontrolowane, tak więc produkt i związane z nim odpady będą stabilne i zależne od właściwości wyjściowych przetwarzanego paliwa. W trakcie przerobu wypalonego paliwa powstawać będzie wiele rodzajów strumieni, ponieważ podczas części procesów związanych z odzyskiem materiałów rozszczepialnych będą wytwarzane odpady wysokoaktywne, alfa-promieniotwórcze, a procesy

związane z wysokoaktywnymi odpadami ciekłymi będą źródłem odpadów zawierających wysokie stężenia produktów rozszczepienia i produktów aktywacji [5].

- Odpady kondycjonowane

Po kondycjonowaniu forma odpadu będzie złożona. Ponieważ celem kondycjonowania jest ustabilizowanie oraz przygotowanie odpadów do transportu i długoterminowego składowania, to ich właściwości z tego punktu widzenia będą stałe.

Odpady proste i zmienne

Niektóre odpady mogą nie mieć szerokiego zakresu złożonych właściwości, ale ich właściwości są bardzo zmienne w czasie. W przypadku tych odpadów pomiary wykonuje się stosunkowo łatwo ze względu na zwykle prosty rozkład właściwości. Jeśli jednak właściwości znacznie się różnią, to pobieranie reprezentatywnych próbek staje się dość trudne, a wynik pomiaru pojedynczej próbki nie reprezentuje uśrednionej właściwości dla całej populacji odpadów. Czasami trzeba zwiększyć liczbę pomiarów, nawet dla każdej partii odpadów.

Często do tego podtypu należą odpady operacyjne z laboratoriów. Laboratoria wykonują wiele różnych analiz, z różnymi odczynnikami i materiałami źródłowymi, dlatego właściwości odpadów będą dość zmienne. Ponieważ jednak każda analiza będzie w wysokim stopniu kontrolowana, to odpady powstające w wyniku każdej operacji będą stosunkowo proste.

Odpady z laboratoriów kontroli jakości czasami mogą być również klasyfikowane jako podtyp prosty i stały.

Odpady złożone i zmienne

Najmniej pożądana sytuacja to taka, w której odpady charakteryzują się złożoną mieszanką właściwości i niektóre lub wszystkie wykazują duży stopień zmienności. W tej sytuacji pobieranie reprezentatywnych próbek jest bardzo trudne, a stosowane metody pomiaru są skomplikowane. Nietrudno zauważyć, że taka sytuacja zwykle wymaga zastosowania zaawansowanych i kosztownych metod charakteryzowania odpadów. Ten podtyp odpadów obejmuje m.in. odpady z likwidacji obiektów jądrowych i odpady odziedziczone z przeszłości, w przypadku których utracono opis historii, a ich strumienie zostały zmieszane. W każdym z tych przypadków do charakteryzacji wymagane będzie zastosowanie kosztownych i złożonych metod pobierania próbek i analiz. Należy zauważyć, że odpady z likwidacji i odpady historyczne mogą w zależności od okoliczności należeć do jednego z czterech podtypów (tabela 1).

Tabela 1. Klasyfikacja odpadów według stopnia trudności wykonania analizy i próbkowania – podtypy [1].

Pochodzenie odpadów	Podtypy odpadów			
	proste i stałe	złożone i stałe	proste i zmienne	złożone i zmienne
Elektrownia jądrowa	+	+		
Instytucjonalne	+			
Laboratoryjne			+	
Przerób paliwa		+		
Wzbogacanie, konwersja, produkcja paliwa	+			
Likwidacja obiektów	*	*	*	*
Zużyte zamknięte źródła promieniotwórcze	+			
Wypalone paliwo	+			
Odpady kondycjonowane		+		
Historyczne	**	**	**	**

* W zależności od rodzaju obiektu.

** Może obejmować ten podtyp.

2. STOSOWANE METODY CHARAKTERYZOWANIA ODPADÓW PROMIENIOTWÓRCZYCH

2.1. Metodologia współczynników skalowania

Wykaz radionuklidów dla każdej postaci odpadów, który powinien przedstawić producent odpadów instytucji odpowiedzialnej za dalsze postępowanie z odpadami, może być bogaty i zróżnicowany (emitery alfa i/lub beta). Niektóre z zawartych w odpadach radionuklidów są łatwe do zmierzenia (tzw. łatwomierzalne, ang. easy-to-measure – ETM) przy użyciu testu NDA (test nieniszczący, ang. non-destructive assay) lub DA (test niszczący, ang. destructive assay), ale większość z nich jest trudna do zmierzenia (tzw. trudnomierzalne, ang. difficult-to-measure – DTM) i wymaga przeprowadzenia testu niszczącego w laboratorium lub obliczenia przy użyciu specjalnych kodów (np. czyste emitery beta). Niektóre z radionuklidów są niemożliwe do zmierzenia (ang. impossible-to-measure – ITM) nawet w laboratorium.

Metodologia współczynnika skalowania pozwala określić aktywność radionuklidów trudnych i niemożliwych do zmierzenia na podstawie korelacji między nimi a kluczowymi nuklidami (ang. key nuclide – KN) wybranymi spośród łatwych do zmierzenia. W szczególności zawartość radionuklidów DTM jest przewidywana poprzez pomnożenie stężenia wybranego nuklidu gamma – KN, który można łatwo zmierzyć, przez współczynniki skalowania obliczone na podstawie radioaktywności nuklidów uzyskanej w wyniku odpowiedniej analizy radiochemicznej lub poprzez wykonanie obliczeń modelowych z użyciem odpowiedniego kodu obliczeniowego, które dają średnią zależność nuklidu DTM od KN. Zawartość nuklidów ITM jest również przewidywana na podstawie zawartości nuklidu gamma poprzez wykonanie obliczeń z użyciem kodów, takich jak np. ORIGEN (Oak Ridge Isotope GENERation) lub MCNP (Monte Carlo N-Particle®).

Każde opakowanie odpadów można zmierzyć za pomocą testu NDA, który pozwala na wyznaczenie stężenia KN. Stosując współczynniki skalowania, obliczane i deklarowane są zawartości nuklidów: DTM, ITM i ETM dla każdego opakowania. Kiedy testy nieniszczące dostarczą stężenia kluczowych i łatwych do zmierzenia nuklidów, to uzyskane dane są następnie przechowywane w laboratorium w celu okresowej kontroli ważności współczynników skalowania użytych do charakteryzowania danej partii odpadów. Metodologia współczynników skalowania jest często stosowana w przypadku stabilnych strumieni odpadów. Ma również zastosowanie do prostych i zmiennych strumieni odpadów z wyższą niepewnością korelacji. Jej wykorzystanie w przypadku złożonych i zmiennych strumieni odpadów jest trudne. Metodologia współczynnika skalowania wymaga wielu etapów: próbkowania, analizy niszczącej, modelowania, analizy nieniszczącej oraz obliczeń. Pomimo swojej złożoności jest powszechnie stosowana i wykorzystywana w większości strategii charakteryzacji odpadów promieniotwórczych. We wszystkich przypadkach, z wyjątkiem najprostszyc, istnieją pewne nuklidy trudne do zmierzenia – DTM lub ITM, których zawartość należy oszacować w możliwie prosty sposób. Istnieją przypadki niewymagające użycia takich współczynników, na przykład przetwarzanie zużytych zamkniętych źródeł promieniotwórczych z możliwymi do prześledzenia świadectwami kalibracji.

2.2. Badanie nieniszczące

Badanie nieniszczące (ang. non destructive examination, NDE) polega na określeniu właściwości fizycznych i mechanicznych opakowania odpadów bez niszczenia obiektu. Badanie powinno przeprowadzać się okresowo, co ma na celu zapewnienie operatorów składowiska i organu regulacyjnego, że pojemniki i opakowania są nie tylko nienaruszone, ale również pozostaną nienaruszone do następnego etapu ich cyklu życia (np. wydobywania i przygotowania do składowania finalnego), który może potrwać nawet 100 lat.

Typowe techniki nieniszczące wykorzystują detektory ultradźwiękowe i detektory porowatości z wyładowaniami wysokiego napięcia w celu określenia grubości ścianek pojemnika i ewentualnych defektów w powłokach opakowania.

Techniki radiograficzne są często stosowane przez zakłady przetwarzania odpadów w celu potwierdzenia zgodności zawartości opakowania z kryteriami akceptacji odpadów, np. sprawdzenia, czy nie ma w nim substancji niedozwolonych (aerozole, wolne płyny itp.) lub nadmierne pustych przestrzeni.

2.3. Test nieniszczący

Test nieniszczący (NDA) obejmuje analizę opartą na obserwacji spontanicznego lub stymulowanego promieniowania jądrowego, która pomaga oszacować zawartość nuklidu w badanym pojemniku bez wpływu na właściwości fizyczne i chemiczne tego pojemnika. Istnieją trzy rodzaje metod wykonywania testów nieniszczących:

- metody detekcji promieniowania gamma – polegające na wychwytywaniu fotonów gamma emitowanych w wyniku rozpadu radioaktywnych radionuklidów znajdujących się w badanych odpadach;
- metody neutronowe – zazwyczaj polegające na wychwytywaniu neutronów emitowanych w wyniku spontanicznego rozszczepienia lub reakcji (α, n), stosowane głównie do identyfikacji i ilościowego określania rozszczepialnych lub paliworodnych izotopów znajdujących się w badanych odpadach;
- kalorymetria – polegająca na pomiarze ciepła właściwego wytworzonego w wyniku rozpadu radioaktywnego w celu ilościowego określenia aktywności.

Test nieniszczący nie zapewnia ostatecznej charakterystyki odpadu. W celu zinterpretowania wyników zawsze jest wymagana minimalna wiedza o procesie powstania odpadu. Im większa wiedza o procesie, tym dokładniejsze są wyniki NDA.

Ostatnio istnieje tendencja opracowywania dużych, złożonych i kosztownych, uniwersalnych systemów NDA do charakteryzowania odpadów na późniejszych etapach cyklu życia. Systemy te mogą być łatwe w użyciu dla podmiotów zarządzających odpadami, ponieważ wszystkie odpady można scharakteryzować stosując jeden proces i system charakteryzowania. Często jest to podejście błędne, chociaż może być konieczne przy charakteryzowaniu odpadów historycznych. Do charakteryzowania nowych odpadów najlepiej stosować proste metody, dopasowane do określonych strumieni odpadów, a pomiary wykonywać tuż po ich powstaniu. Pozostawienie działań charakteryzowania na późniejszy etap cyklu życia odpadów oznacza rezygnację z możliwości uzyskania istotnych informacji w efektywny i ekonomiczny sposób.

Gdy mamy dużą wiedzę na temat procesu powstania odpadu, a jego cechy są stałe i odzwierciedlane, to można zastosować najprostsze (i najtańsze) metody NDA, np. pomiar mocy dawki na powierzchni opakowania odpadu, i uzyskać dokładne wyniki. Natomiast jeśli mamy niewielką wiedzę o pochodzeniu odpadu lub charakterystyka opakowania wykazuje duży stopień zmienności, należy zastosować bardziej wyrafinowane i złożone (a zatem droższe) metody, ale ich dokładność może być bardzo ograniczona. Najdokładniejsze wyniki otrzymuje się, gdy proces powstania odpadów jest ściśle kontrolowany, a cechy odpadów są jednorodne.

Gdy charakterystyka odpadów jest stosunkowo jednorodna i mamy dużą wiedzę na temat procesu powstania odpadu, test NDA może być przydatny nawet w przypadku opakowań o większych rozmiarach. W przypadku dużego stopnia zmienności lub niewielkiej wiedzy o procesie dokładność może być ograniczona rozmiarem paczki. Może to mieć wpływ na przepustowość w procesie przetwarzania odpadów. Mniejszy problem stanowi to w przypadku procesu kontroli jakości, w którym objętości sprawdzanych odpadów i wymagania produkcyjne mogą nie mieć dużego znaczenia.

Im bardziej złożona metoda charakteryzowania, tym większa wiedza i doświadczenie wymagane są od operatora. Ponadto występują większe ograniczenia w zakresie konserwacji i eksploatacji, im większe jest ryzyko wystąpienia błędów, zarówno jeśli chodzi o dokładność pomiarów, jak i utrzymanie działania procesu. Wysoce złożone rozwiązania NDA są trudne

w zarządzaniu i generalnie są stosowane tylko wtedy, gdy brakuje wcześniejszej wiedzy o odpadach i gdy nie ma możliwości uzyskania odpowiednich informacji (np. odpady historyczne).

W rutynowych procesach przetwarzania odpadów stosuje się zazwyczaj proste metody. Bardziej złożone są zwykle stosowane w badaniach i pracach rozwojowych, w laboratoriach kontroli jakości lub w przypadku bardzo skomplikowanych i trudnych strumieni odpadów, takich jak odpady historyczne. Gdy dla każdego pojedynczego opakowania wymagany jest wysoki stopień dokładności oznaczenia parametru, konieczne jest zastosowanie bardziej złożonych metod pomiaru. Natomiast gdy dokładność charakterystyki dużej partii odpadów jest ważniejsza niż pojedynczego opakowania, wtedy można zastosować prostsze metody.

2.3.1. Metody gamma

Metody gamma są skuteczne tylko wtedy, gdy mierzalna ilość fotonów gamma jest w stanie przeniknąć przez charakteryzowane opakowanie. Fotonów gamma (lub promieni X) o bardzo niskiej energii oraz emiterów beta i alfa nie można wykryć bezpośrednio tą metodą. Trudne do zmierzenia radionuklidy są często skalowane według łatwego do zmierzenia emitera gamma, jak ^{60}Co lub ^{137}Cs . Radionuklidy rozpadające się z emisją pozytonów (np. ^{22}Na) są często wykrywane poprzez pomiar fotonów anihilacyjnych 511 keV za pomocą oprzyrządowania gamma NDA. Jeśli w odpadach nie ma mierzalnego emitera promieniowania gamma, NDA nie będzie odpowiednią metodą charakteryzacji.

Każda metoda gamma łączy trzy aspekty [1]:

- proces samego pomiaru gamma (pomiar dawki, spektroskopia, tomografia, obrazowanie gamma),
- typ skanowania,
- technikę korekcji matrycy.

Te trzy aspekty składają się na matrycę testu nieniszczącego i w zależności od zastosowania możliwa jest dowolna ich kombinacja. Zwiększanie złożoności w którymkolwiek z tych aspektów nie oznacza, że wymagana jest większa złożoność w przypadku dwóch pozostałych.

Skanowanie gamma to procedura z wykorzystaniem spektrometrii promieniowania gamma, która polega na pomiarze przedmiotu w jednej lub kilku pozycjach przy użyciu jednego lub większej liczby detektorów. Zbierane są widma segmentowe i/lub widma całkowite. Ze względów historycznych określenie „segmentowe skanowanie gamma” (ang. segmented gamma scanning – SGS) jest często używane jako standardowe określenie skanowania promieniami gamma, aby podkreślić znaczenie procesu segmentacji. Są dwa rodzaje typów skanowania:

- całkowite skanowanie gamma (ang. integral gamma scanning – IGS) – procedura pomiaru całkowitego widma gamma przedmiotu, które można przeprowadzić ze skolimowaną lub otwartą geometrią detekcji;
- segmentowe skanowanie gamma (SGS) – procedura pomiaru jednego lub większej liczby widm segmentów przedmiotu, które wymaga zastosowania skolimowanej geometrii detekcji.

Preferowany jest termin „skanowanie promieniami gamma”, ponieważ obejmuje zarówno skanowanie z otwartą, jak i skolimowaną geometrią detekcji. Skanowanie promieniami gamma może być stosowane w przypadkach, gdy test nieniszczący jest używany do scharakteryzowania radionuklidów pochodzących z objętościowego źródła promieniotwórczego.

Skanowanie gamma służy do:

- weryfikacji inwentarza odpadów przed przetwarzaniem lub transportem,
- kontroli odpadów przed tymczasowym przechowywaniem lub ostatecznym składowaniem,
- kontroli jakości procesów kondycjonowania odpadów,
- pomiarów uwalniania radionuklidów.

2.3.2. Metody neutronowe

Metody neutronowe są wykorzystywane do identyfikacji aktywności, głównie materiałów rozszczepialnych. Na zastosowanie metod neutronowych istotny wpływ mają właściwości materiału, a w przypadku odpadów zwykle wiąże się to ze stosunkowo dużą niepewnością

wyników pomiaru. Nie ma prostych metod neutronowych – dla zapewnienia dokładnej interpretacji wyników każda wymaga udziału doświadczonego fizyka.

Większość metod neutronowych opiera się na gazowych licznikach ^3He . Metody spektroskopowe nie są szeroko stosowane i zazwyczaj są zawodne, gdyż emisja neutronów nie zachodzi przy ustalonych energiach. Ponadto większość odpadów ma właściwości moderujące, więc wszystkie opakowania materiałów transparentnych dla neutronów z wyjątkiem najmniejszych fałszują energie neutronów na długo przed ich wychwyceniem do analizy. Dla pewności uzyskanych wyników i ich interpretacji wymagana jest minimalna znajomość charakterystyki strumienia odpadów.

Metody neutronowe łączą proces pomiarowy i techniki korekcji matrycy, a przy tym możliwa jest dowolna ich kombinacja. W przeciwieństwie do pomiarów gamma, wszystkie techniki korekcji matrycy są z natury złożone, a wybrana technika musi być ściśle dopasowana do strumienia odpadów.

2.4. Test niszczący

Test niszczący (DA) zapewnia najbardziej dokładne i obiektywne określenie parametrów odpadów. Obróbka chemiczna i radiochemiczna próbek pierwotnego odpadu umożliwia wykonanie wiarygodnych i dokładnych pomiarów aktywności. Tak nie jest w przypadku metod NDA, które zazwyczaj wykorzystują kalibrację za pomocą standardów lub modelowania. W konsekwencji istnieje większa niepewność określenia aktywności [1, 2].

Proces DA obejmuje:

- Próbkowanie – należy określić plan próbkowania oraz sprawdzić homogeniczność pobranej próbki.
- Przygotowanie próbki do analizy poprzez rozpuszczenie/mineralizację, które należy prowadzić zgodnie z charakterystyką fizykochemiczną matrycy form odpadowych lub odpadów pierwotnych oraz w zależności od zachowania określonego pierwiastka w rozpuszczalniku (ulatanianie, wytrącanie). W niektórych przypadkach możliwy jest bezpośredni pomiar radionuklidu po rozpuszczeniu/mineralizacji, jeśli metoda pomiaru zapewnia wymaganą do tego rozdzielczość.
- Separację chemiczną w celu wyeliminowania zakłóceń chemicznych i interferencji radiologicznej w pomiarze, poprzez zastosowanie procesu rozdzielczego, takiego jak strącanie, ekstrakcja rozpuszczalnikowa lub chromatografia.

Oznaczanie radiometryczne wykonuje się za pomocą analizy instrumentalnej. Stosuje się takie metody, jak spektrometrię beta z użyciem ciekłych liczników scyntylacyjnych, spektrometrię alfa z użyciem detektorów półprzewodnikowych, spektrometrię gamma o wysokiej rozdzielczości do nuklidów emitujących promieniowanie o wysokiej i niskiej energii oraz spektrometrię masową.

3. PODSUMOWANIE

Charakteryzowanie odpadów na każdym etapie ich życia jest jednym z istotnych elementów postępowania z odpadami promieniotwórczymi. Ma ono szczególne znaczenie przed przygotowaniem odpadów do składowania, gdyż znajomość ich charakterystyki jest bezpośrednio związana z długoterminowym bezpieczeństwem składowisk odpadów promieniotwórczych. Dobrze jest jednak podjąć się charakteryzowania odpadów promieniotwórczych już na wczesnym etapie ich cyklu życia, kiedy jest to najłatwiejsze, a koszty takiego przedsięwzięcia najniższe.

W raporcie przedstawiono nowy podział odpadów promieniotwórczych ze względu na skład fizykochemiczny i zależność ich właściwości od czasu. Uzyskano w ten sposób cztery

podtypy odpadów: proste/stabilne, złożone/stabilne, proste/zmienne i złożone/zmienne. Na szczególną uwagę zasługują odpady pochodzące z likwidacji obiektów jądrowych i historyczne, które mogą należeć do dowolnego podtypu.

Strategia i przyjęta metoda charakteryzowania będzie zależała od rodzaju odpadów promieniotwórczych, wielkości analizowanych strumieni i użytych opakowań. Dokładność i jakość charakteryzacji musi spełniać kryteria akceptacji odpadów w składowiskach. Program charakteryzowania musi uwzględniać kryteria akceptacji radionuklidów przyjęte dla całego składowiska lub dla poszczególnych opakowań odpadów.

Metodologia współczynnika skalowania jest najpowszechniej stosowaną techniką charakteryzowania odpadów promieniotwórczych. Polega na obliczeniu stężenia radionuklidu ze znanego (określonego doświadczalnie lub obliczeniowo) stosunku stężenia radionuklidu zwanego kluczowym nuklidem do stężenia mierzonego radionuklidu.

Choć nie istnieje uniwersalna procedura, którą można zalecić do scharakteryzowania konkretnego strumienia odpadów promieniotwórczych, generalnie zaleca się stosowanie niszczących metod pomiaru stężenia łatwych do zmierzenia radionuklidów w pojemnikach odpadów, jako uzupełnienie (jednocześnie weryfikacja i aktualizacja) współczynników skalujących. Stosowanie testu niszczącego związanego z pobieraniem próbek powinno być ograniczone, ponieważ jest kosztowne i trudne do wykonania.

Praca naukowa opublikowana w ramach projektu UE Horizon 2020 No 847593 „EURAD-European Joint Programme on Radioactive Waste Management” oraz projektu międzynarodowego współfinansowanego ze środków programu Ministra Nauki i Szkolnictwa Wyższego pn. „PMW” w latach 2019-2024 (umowa nr 5070/H2020-Euratom/19/2020/2).

4. BIBLIOGRAFIA

- [1]. IAEA. (2007). *Strategy and Methodology for Radioactive Waste Characterization*. Vienna: International Atomic Energy Agency. IAEA-TECDOC-1579.
- [2]. IAEA. (1997). *Characterization of Radioactive Waste Forms and Packages*. Vienna: International Atomic Energy Agency. Technical Reports Series No. 383.
- [3]. IAEA. (1996). *Requirements and Methods for Low and Intermediate Level Waste Package Acceptability*. Vienna: International Atomic Energy Agency. IAEA-TECDOC-864I.
- [4]. IAEA. (2003). *Predisposal Management of Low and Intermediate Level Radioactive Waste*. Vienna: International Atomic Energy Agency. IAEA Safety Standards Series No. WS-G- 2.5.
- [5]. IAEA. (2003). *Predisposal Management of High Level Radioactive Waste*. Vienna: International Atomic Energy Agency. IAEA Safety Standards Series No. WS-G-2.6, IAEA, Vienna (2003).