

中华人民共和国国家标准

GB/T 15146.6—94

反应堆外易裂变材料的核临界安全 硼硅酸盐玻璃拉希环及其应用准则

Nuclear criticality safety for fissile materials outside reactor
—Borosilicate glass Raschig rings and its application criteria

1994-07-07 发布

1995-01-01 实施

国家技术监督局 发布

中华人民共和国国家标准

反应堆外易裂变材料的核临界安全 硼硅酸盐玻璃拉希环及其应用准则

GB/T 15146.6—94

Nuclear criticality safety for fissile materials outside reactor
—Borosilicate glass Raschig rings and its application criteria

1 主题内容与适用范围

本标准规定了易裂变材料溶液中使用硼硅酸盐玻璃拉希环作为中子吸收剂的化学环境、物理环境、环和装环容器的技术要求、维护检查程序及次临界限值。

本标准适用于在含有铀-235和钚-239溶液的容器中使用硼硅酸盐玻璃拉希环中子吸收剂作为临界控制手段的场合。

2 引用标准

GB 5432 日用玻璃密度测定方法

GB 6582 玻璃在98℃耐水性的颗粒试验方法和分级

ZB Q30 001 硼硅酸盐玻璃化学分析方法

3 术语

3.1 拉希环(环)

长度和直径基本相等的硼硅酸盐玻璃空心小圆管。

3.2 检查用拉希环(检查环)

供非破坏性地检验其物理性能并长期(除短时间用于试验外)留在溶液中的拉希环。

3.3 主要临界控制手段

主要或唯一地依靠它保持含易裂变材料系统次临界状态的控制手段。

3.4 辅助临界控制手段

作为主要临界控制手段的补充和主要临界控制手段失效(发生几率不大)时的后备的一种控制手段。

4 一般技术规定

硼硅酸盐玻璃必须是低膨胀率($\alpha \leq 3.3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)、抗腐蚀的。这种玻璃必须与其将要处的化学和物理环境相容。

4.1 化学环境

4.1.1 酸性或中性环境。准备使用拉希环作为主要临界控制手段或辅助临界控制手段的酸性或中性溶液,必须满足下列各项限制条件:

- a. pH值不大于7.0;
- b. 温度不高于120℃;

国家技术监督局1994-07-07批准

1995-01-01实施

c. 氢氟酸的浓度不得大于 0.000 1 mol/L,除非相容性已按照 5.2.3 和 7.5.3 条得到确认;

注:对于由氢氟酸和其他酸组成的某些络合物来说,氢氟酸的浓度再大一些也是可以允许的。

d. 磷酸根的离子浓度不大于 1 mol/L。

在符合这些限制的条件下,可接受的化学环境可以包括有机酸或无机酸盐类的溶液、碳氢化合物、络合剂或螯合剂在碳氢化合物中的溶液。

4.1.2 碱性环境。拉希环在碱性溶液环境中不得作为主要临界控制手段使用。拉希环将要处的碱性溶液必须满足下列限制条件之一:

a. 当温度低于 38℃时,钠、钾或铵的氢氧化物的浓度不大于 0.5 mol/L,或

b. 当温度低于 120℃时,pH 值低于 9。

4.2 物理环境

4.2.1 机械环境。对于拉希环会受到搅动,或也许会意外地受到搅动(如地震也许会搅动这些环)的场合,必须使用经加热钢化处理的环。能够发生搅动的典型场合有蒸发器、可移动式容器、脉冲柱及装有空气或蒸汽喷射设备的容器等。

4.2.2 辐射环境。硼硅酸盐玻璃拉希环不得在强电离辐射场中使用。拉希环允许受到的最大辐射剂量率如下:

γ —— 10^6 Gy/a;

β ——能量不大于 0.05 MeV 的 β 射线, 10^7 Gy/a;

β ——能量大于 0.05 MeV 的 β 射线, 10^6 Gy/a;

中子—— 5×10^2 Gy/a;

α ——与溶液吸收 α 粒子的能量后的发热率为 2 W/L 相当的辐射剂量率。

5 对拉希环的技术要求

硼硅酸盐玻璃拉希环必须满足下述技术要求:

5.1 组成

5.1.1 玻璃密度

在 25℃时,玻璃密度不得小于 2.22 g/cm³。密度的测定必须按 GB 5432 的规定进行。

5.1.2 硼含量

玻璃中硼含量必须在 3.66 至 4.28 wt% B(11.8 至 13.8 wt% B₂O₃)之间。硼含量的测定必须按 ZB Q30 001 中的有关规定进行。

5.1.3 ¹⁰B 含量

玻璃中硼的¹⁰B与¹¹B的原子数比不得低于 0.240。

5.2 化学认可试验

5.2.1 耐水性试验

拉希环的耐水性必须按 GB 6582 的规定测定。耐水性能必须达到 1 级。

5.2.2 硝酸试验

如果要在非氢氟酸或非磷酸的酸性溶液中使用拉希环,必须进行以下的试验。首先将随机抽取的 10 个清洁而干燥的拉希环样品称重,称重准确度必须达到 0.001 g。然后将这些环放入容积为 2 L 并装有回流冷凝器的不锈钢容器中。将 1 L 7.0 mol/L 的硝酸加入装有拉希环的上述容器,并在 95℃下保持 48 h。之后用蒸馏水冲洗这些环,在 105℃下干燥 1 h,并再次称重,称重准确度仍为 0.001 g。10 个样品环的重量损失不得超过 0.010%。

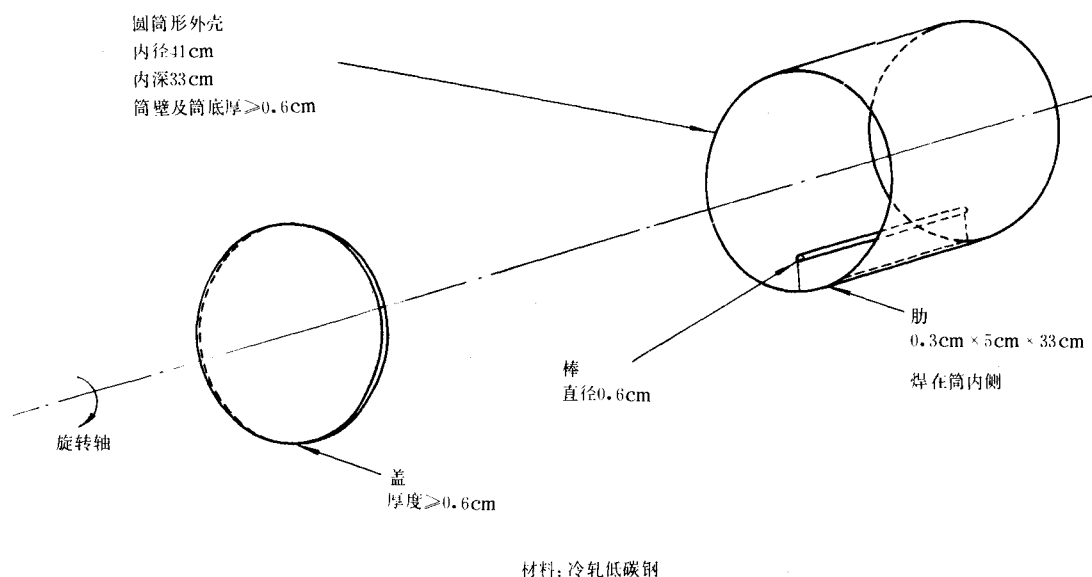
5.2.3 氢氧化钠试验

如果要在碱性溶液中使用拉希环作辅助临界控制手段,必须进行以下的试验。首先将随机抽取的 10 个清洁而干燥的拉希环样品称重,称重准确度必须达到 0.001 g。然后将这些环放入容积为 2 L 并装

有回流冷凝器的不锈钢容器中。将 1 L 1.0 mol/L 的氢氧化钠加入装有拉希环的上述容器,并在 95℃ 下保持 6 h。之后用蒸馏水冲洗这些环,在 105℃ 下干燥 1 h,并再次称重,称重准确度仍为 0.001 g。10 个样品环的重量损失不得超过 0.20%。

5.2.4 氢氟酸试验

如果要在所含氢氟酸浓度大于 0.000 1 mol/L 的酸性或中性环境中使用拉希环,必须进行与预期工艺条件相对应的化学认可试验。此外,还必须经常进行检查和试验,以确证拉希环在这种腐蚀性较强的环境下仍能保持其完好性。



转鼓

5.3 环的尺寸

拉希环的外径不得大于 3.8 cm。对于尺寸超过此值但其他方面符合本标准的环,须经专门的临界性评价证明其可接受性。但环的两端由火焰抛光可能引起的直径稍微变粗是可接受的。

5.4 环的外观

加工好的拉希环,其所有外表面必须光滑无锐边。

5.5 机械抗振试验

对于使用过程中会受到搅动,或也许会意外地受到搅动的拉希环(如地震也许会搅动这些环),除必须经钢化处理后,还必须通过机械抗振试验。这种试验必须在如图所描述的、水平放置的带肋圆形转鼓中进行。首先将随机抽取的 10 个清洁而干燥的拉希环放入这种干转鼓中,然后让转鼓以大约 10 r/min 的匀速绕其轴旋转。转 5 圈后(约 30 s)停下来检查转鼓内的拉希环。捡走所有的碎玻璃,并清点仍然完好的环。之后让该转鼓按同样的转速再转 5 圈。

经过这一试验之后,仍然完好的拉希环的数量必须高于 70% 才可以认为这种环是令人满意的。能保持其原重量 90% 以上的环可认为仍然是完好的。

必要时须用另外的样品重复上述试验,以确定试验样品具有统计代表性。

6 对装环容器的技术要求

准备装拉希环的容器,必须备有合适的开口,并配以相应的附件,以利于溶液和环的添加与取出、溶液和环的代表性样品的提取、溶液体积和环装填高度的测量,以及容器和环的清洗。溶液排出管必须设计和安装得能阻止完好的环随溶液一起流出(如在溶液出口处装一个能阻止环流出的网)。

6.1 容器中不装环的管道

装拉希环的容器内可以设有外直径小于 6.4 cm 的充满溶液但不装环的管道(或有效外直径小于 6.4 cm 的管束),条件是相邻管道之间边缘对边缘的距离不小于 30.5 cm。这些管道可供探测液位、抽取溶液、提取溶液和环样品之用。如可将一组检查用拉希环放置在穿过容器顶部垂直布置的多孔(便于管内外溶液连通)管道内。必须就需要在环的预定使用期内进行检查的所有拉希环样品的装入和取出办法作出具体规定,以确保取出供检查用的环不是由先前的某次检查替换进去的。

6.2 拉希环装填高度的测定

如果准备用目测法检查环的装填高度,那就必须设置足够数量的检查孔或窥视玻璃窗,以能通过观察拉希环的上表面了解总体密实情况及该表面的规整情况。可以利用射线照相术或测量容器自由空间与液面高度的函数关系来远距离检查装填高度。探测到拉希环下沉后恢复装填体积的办法见 7.1 条。

6.3 在装有拉希环的容器中允许装入的溶液体积

必须采取措施防止在环下沉后形成的无环区内出现溶液。预计环的下沉量也许会达到原始装填体积的 5%。可以利用溢流管进行保护,溢流管的尺寸和安装高度,应足以将容器内液位限制在与该容器初次装填拉希环后容量的 95% 相对应的位置上¹⁾。如果这种方法不适用于所涉及的容器,则可以在容器上装设液位指示设备,并辅以适用的报警系统和严格的操作规程,以确保容器内的溶液量不超过该容器装填拉希环后容量的 80%。

注: 1) 拉希环的堆装密度会因下沉而增加,预计可使带溢流管容器的容量减小 5% 以上。

6.4 容器泄漏

对于将拉希环作为主要临界控制手段的装置,必须采取措施使得从该装置中漏出的易裂变溶液不至达到临界。

6.5 玻璃体积份额的确定

必须测量或计算出容器未装环时的容量,并测量灌满已装环容器所需的液体体积,然后根据这两个值求出拉希环所占据的容器容积份额(玻璃体积份额)。第 8 章“易裂变溶液的次临界浓度限值”中规定的溶液最大浓度,必须以这样求得的玻璃体积份额为基础。

6.6 拉希环的装填

拉希环的装填方式必须确保取向随机的环能自由流动。必须确保容器的各个角落及其它难以接近之处附近也填满环,而且是可流动的。

一种比较令人满意的装填办法是在容器中先灌入部分水或相关的其他液体,再一批一批地(如 250 至 1 000 个环为一批)倒入拉希环。当使用的容器先前曾装过易裂变材料时,进行此操作时应特别小心,必须查明该容器中无易裂变材料。该方法的好处是能大大减少环的破损,并有助于环的下沉和均匀分布。这些环必须用已证明是令人满意的方法弄密实,如耙、搅拌或鼓泡搅动。

7 维护与检查

容器中的拉希环必须定期进行检查,确定环是否已下沉,有无固体物积累,环的物理和化学性质是否已发生变化。必须给每个已装环容器各填写一份《装环容器检查表》。表格式样见附录 A(参考件)。

7.1 下沉检查

必须依靠目测或远距离检查方法测定容器中拉希环上表面的位置。一旦发现下沉及下沉速率表明该容器顶部 5% 的空间在下次检查以前可能没有环,则必须添加一些环使之恢复到规定的装填高度。当所需的添加量累计将要达到原始装载量的 10% 时,必须把已装在容器里的环全部换掉。添加环的体积或数量及有关的其它情况都必须记入《装环容器检查表》。

7.2 固体物积累

必须通过下述试验测定环表面有无明显的固体物积累。要特别注意有无易裂变固体物积累。

7.2.1 易裂变材料的衡算

这是对将拉希环作为铀-235 同位素富集度大于 5.0 wt% 的铀溶液以及钚溶液的主要临界控制手

段使用的要求。对于拉希环与铀-235 同位素富集度等于或低于 5.0 wt% 的铀溶液的混合物,没有这一要求,因为此种情况不可能因固体物的积累而达到临界。

在进行检查时,必须测定已装环容器的溶液体积;必须分析有代表性溶液样品的易裂变材料含量。必须定期算出每一已装环容器的易裂变材料进出情况,其频度取决于作业的类型。一般地说,每月一次比较合适,除非根据经验认为更长一些是合理的。但是,在某些情况下,必须更频繁地做易裂变材料的衡算。选定频度时应该留有一定的安全裕量,以保证核临界安全。如果易裂变材料的亏损额超过 1 000 g (或根据相应的临界安全分析确定的更大一些的数值),则容器和拉希环必须清洗,清洗的程度以能清除这一亏损为准。

7.2.2 测定环上的易裂变固体物

必须从容器中有代表性的区域内取出一些拉希环,然后测定沉积在这些环表面上的固体物中的易裂变材料量。如果每升玻璃的表面固体沉积物中铀或钚的总量超过 50 g,则该容器中的环必须清洗。如果铀中铀-235 含量等于或低于 5.0 wt%,则浓度达到 50 g ²³⁵U/(L 玻璃)时该容器中的环必须清洗。

7.2.3 容器中的非易裂变固体物

必须判断容器中是否存在数量明显的包括玻璃腐蚀产物在内的非裂变固体物。判别方法包括能确定溶液中无悬浮性固体的分析方法、用肉眼观察环表面及重新标定容器的自由体积等。非裂变固体物的允许量随所用工艺而异。一旦有迹象表明这些固体物影响溶液的混合,影响对溶液体积的测定,或影响从容器中排出溶液时,就必须将它们清除掉。

7.3 物理性质

必须利用目测或对代表性样品进行机械试验的方法检查环的物理性质。必须借助操作规程保证被检查的环不是先前的某次检查替换进去的。

7.3.1 对受搅动环的要求

对于在受搅动场合使用的、经钢化处理的环,必须对其样品进行机械抗振试验(参看 5.5 条)。如果样品环满足不了 5.5 条的要求,则必须全部更换容器中的环。

7.3.2 对不受搅动环的要求

在下述场合使用的环必须进行定性的试验,即搅动不大于溶液与速率约为每平方米横截面上 $5 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s}$ 的空气鼓泡混合时出现的那种搅动的场合。此种试验包括首先进行目测检查,观察环上有无能影响环机械强度的缺口、龟裂、裂纹或划痕等缺陷,然后利用用过的环进行简单的跌落试验,将观察到的破损率与未用过的环在相同条件下的试验结果进行比较。一旦得出环的强度已经变坏的确切结论,就必须更换容器中的环。

7.3.3 测定拉希环的体积

除了要判别拉希环表观总体积是否因下沉和破损(参看 7.1 条)而明显缩小外,还必须测定容器中拉希环体积的实际损失,做法是按规定的时间间隔检查从容器中代表性区域取出的检查环。必须根据每个环的质量和密度求出它们的体积,然后利用下述方程判别环的状况是否可接受:

$$\frac{V_0 V'}{V_i V} > \text{铀或钚的浓度达到次临界限值的溶液所要求的玻璃体积份额}$$

式中: V_0/V_i ——玻璃所占据的容器容积份额的初始值;

V' ——检查环在检验时的体积;

V ——检查环的初始体积。

若任何一个检查环不满足上述判据,则必须更换容器中的环,或独立地另行断定容器内其它各处的拉希环的体积份额均未低于最小允许值。除了每次不超过两周或每年总计不超过四周的检验期外,其余时间中检查环必须都留在容器内。

7.4 环的硼含量

7.4.1 主要的检验方法

必须分析从容器中代表性区域取出的检查环的硼含量,若分析结果表明硼含量低于 3.66 wt% B (11.8 wt% B₂O₃),则必须更换容器中的环。必须借助操作规程确保被检查的环不是先前的某次检查替换进去的。

7.4.2 可替代的检验方法

必须将检查环的玻璃密度减少归因于析出了 B₂O₃(除非用化学分析方法表明并非如此)。当硼含量低于 5.1.2 条列出的最小值(不管是根据密度推出的还是化学分析测定的)时,必须更换容器中的环。

7.5 检查间隔

7.5.1 作为主要临界控制手段的情况

在利用拉希环作为主要临界控制手段的那些装置中,对于环不受搅动和溶液因蒸发而浓缩的速率不超过 10% 每年的那些场合,环的下沉(7.1 条)、固体物积累(7.2 条)、物理性质(7.3 条)和硼含量(7.4 条)的检查间隔不得超过 13 个月。对于环受到搅动的那些场合,环的下沉(7.1 条)的检查间隔不得超过 7 个月。对于易裂变溶液因蒸发而浓缩的速率超过 10% 每年的那些场合,固体物积累(7.2 条)的检查间隔不得超过 7 个月。

7.5.2 作为辅助临界控制手段的情况

在利用拉希环作为辅助临界控制手段的那些装置中,环的两次检查之间的时间间隔可以是 7.5.1 条所列数值的两倍。如能证明该已装环容器自上次检查以来确实从未存放过溶液,则只需检查下沉情况。

7.5.3 特种检查

当拉希环接触氢氟酸浓度大于 0.000 1 mol/L 的溶液时,必须单独规定检查频度,以便确证这些环的化学和物理性质保持在第 5 章“对拉希环的技术要求”列出的范围内。

8 易裂变溶液的次临界浓度限值

表 1 中列出了适用于存放在尺寸不限但装了符合本标准要求的拉希环的容器中的溶液的次临界浓度限值。溶液中氢的浓度不得低于 75 g/L,也不得大于 115 g/L¹⁾。第一栏的限值适用于²³⁵U>5 wt% 和²³³U≤1.0 wt% 的铀同位素组成。第二栏的限值适用于²³⁵U≤5 wt% 和²³³U≤0.01 wt% 的铀。钚溶液的限值适用于其同位素组成如下的钚:²³⁹Pu≥50 wt%、²⁴¹Pu≤15 wt% 和²⁴⁰Pu>²⁴¹Pu。

注: 1) 溶液中氢浓度需要有个上限,以排除将这一标准的有关规定用于氢含量也许会超出这一范围的某些有机溶剂。

表 1 尺寸不限但装了硼硅酸盐玻璃拉希环的容器中的易裂变材料均匀溶液¹⁾的次临界浓度限值

装环容器中玻璃 最小体积份额 (vol%)	同位素组成, wt%			
	5.0 < ²³⁵ U ≤ 100 ²³³ U ≤ 1.0	0.7 < ²³⁵ U ≤ 5.0 ²³³ U ≤ 0.01	²³⁹ Pu ≥ 50 ²⁴¹ Pu ≤ 15, ²⁴⁰ Pu > ²⁴¹ Pu	
			²⁴⁰ Pu ≤ 5	²⁴⁰ Pu > 5
	最大容许浓度 ²⁾			
g U/L	g U/L	g Pu/L	g Pu/L	
24	270	不限	115	140
28	330	不限	140	170
32	400	不限	180	220

注: 1) 溶液中氢的浓度不得低于 75 g/L,也不得大于 115 g/L。

2) 必须把以固体物形式沉积的任何易裂变材料包括在溶液浓度中。

附录 A
装环容器检查表(示例)
(参考件)

地 点	容 器 标 牌	历 史
工 号 _____	容 器 号 _____	最近一次装环时间 _____
房 间 号 _____	容 量 _____	拉希环的参数
	用 途 _____	尺 寸 _____
	内装溶液 _____	初始 B ₂ O ₃ 含量 _____ wt%
	次临界浓度限值 _____	拉希环供应商或制造者 _____
	溶液中氢的浓度 _____	采购单编号 _____
	玻璃体积份额 _____	

日期	下 沉		固体物的检查 类型和结果	环物理性质		B ₂ O ₃ 含量 wt%	备 注	检 查 人
	环位置	环添加量		目 测	机械试验			

附加说明:

本标准由中国核工业总公司提出。
 本标准由核科学技术情报研究所负责起草。
 本标准主要起草人李嘉梁。
 本标准等效采用美国国家标准 ANSI/ANS 8.5—1986。

(京)新登字 023 号

GB/T 15146.6—94

中 华 人 民 共 和 国
国 家 标 准
反应堆外易裂变材料的核临界安全
硼硅酸盐玻璃拉希环及其应用准则

GB/T 15146.6—94

*

中国标准出版社出版
北京复兴门外三里河北街16号

邮政编码:100045

电 话:8522112

中国标准出版社秦皇岛印刷厂印刷
新华书店北京发行所发行 各地新华书店经售

版权专有 不得翻印

*

开本 880×1230 1/16 印张 3/4 字数 14 千字

1995 年 4 月第一版 1995 年 4 月第一次印刷

印数 1—1 000

*

书号: 155066·1-11343 定价 10.00 元

*

标 目 260—19



GB/T 15146.6—1994