

ОЦЕНКА РАДИАЦИОННЫХ И ТЕМПЕРАТУРНЫХ НАГРУЗОК НА ЦЕМЕНТНЫЙ КОМПАУНД, СОДЕРЖАЩИЙ ИМИТАТОРЫ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

А. П. Варлаков¹, А. А. Жеребцов², В. Г. Петров³, В. В. Капустин¹,
Г. А. Варлакова¹, И. Э. Власова³, И. Д. Харитонов³, С. Н. Калмыков³

¹АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А. А. Бочвара», Москва

²Частное учреждение Государственной корпорации по атомной энергии «Росатом» «Инновационно-технологический центр проекта «ПРОРЫВ», Москва

³Химический факультет МГУ имени М. В. Ломоносова, Москва

Статья поступила в редакцию 12 декабря 2019 г.

Для оценки радиационного эффекта от источников ионизирующих излучений и влияния повышенных температур на цементные компаунды, полученные с использованием имитатора ЖРО высокой активности и ЖРО средней активности, определялись показатели их физико-химических свойств и проводился анализ изменения физико-химических свойств цементных компаундов при воздействии повышенных температур и ионизирующего излучения до величины поглощенной дозы порядка 10^8 Гр. Показано, что цементные компаунды, содержащие имитатор и реальные радиоактивные отходы, сохраняют высокие прочностные свойства и стойкость к воздействию высоких доз ионизирующего излучения.

Ключевые слова: радиоактивные отходы, имитатор радиоактивных отходов, радиационная стойкость, величина дозы, температурные нагрузки, прочность, скорость выщелачивания радионуклидов.

Радиоактивные отходы (РАО) представляют собой серьезную угрозу для окружающей среды и человека и должны быть переведены в безопасную форму, пригодную для захоронения. Выбор подходящей конечной формы для РАО является непростой задачей, так как приходится учитывать много факторов и комбинаций различных условий. Например, необходимо, чтобы процесс кондиционирования был простым, надежным, радиационно безопасным, экономически выгодным, а конечная форма отвечала бы критериям приемлемости для захоронения.

В мировой практике для перевода радиоактивных отходов в отвержденное состояние и получения конечной формы применяют

преимущественно технологии остекловывания и цементирования. Как правило, высокоактивные отходы остекловывают, а средне- и низкоактивные отходы цементируют [1].

Тем не менее широкое применение цементных материалов для создания различных конструкций на объектах использования атомной энергии [2, 3], подвергающихся значительному воздействию ионизирующего излучения, наводит на размышления о способности цементного компаунда выдерживать высокие дозовые нагрузки и о потенциальной возможности выступать в качестве матрицы для высокоактивных отходов (ВАО).

Настоящая работа является продолжением исследований [4–6] по комплексной оценке

изменений регламентированных свойств, фазового состава и микроструктуры цементных компаундов под воздействием высоких доз ионизирующего излучения, эквивалентных величинам доз ионизирующих излучений от ВАО за период их хранения.

Задачи данного этапа заключаются в получении информации о влиянии тепловыделения на процесс твердения цементного компаунда и воздействии различного вида ионизирующих излучений на цементные компаунды с имитатором нитратсодержащих ЖРО высокой активности (имитатор ВАО) и реальными нитратсодержащими ЖРО средней активности. С этой целью исследовались механические и физико-химические показатели цементных компаундов, твердевших в условиях повышенных температур, и цементных компаундов после воздействия гамма-излучения, альфа-излучения и электронов.

Объекты и методика исследований

Исследования проводились на образцах цементных компаундов, приготовленных из портландцемента (ПЦ), с добавкой в виде бентонитового глинопорошка (ДБ) или без добавки и с затворителем. В качестве затворителя использовались водопроводная вода, имитатор ВАО и реальные ЖРО при водоцементном отношении (В/Ц) 0,5. Бентонитовый глинопорошок вводился за счет портландцемента и учитывался в соотношении В/Ц как Ц = 95 % ПЦ + 5 % ДБ.

Имитатор ВАО имел солесодержание 530 г/л и состав, отвечающий усредненному составу отходов ПО «Маяк» [7], г/л: NaOH — 196,8; NaNO₃ — 209,1; NaNO₂ — 108,1; NaHCO₃ — 17,64; K₂Cr₂O₇ — 10,82; KCl — 1,47; Zn(NO₃)₂ — 0,02; Pb(NO₃)₂ — 0,07; CsCl — 0,05; SrCl₂ — 0,5. Реальные ЖРО имели следующий состав, г/л: Cl⁻ — 9,2; NO₃⁻ — 71,1; ClO₄⁻ — 4,3; Na⁺ — 187,2. Активность ЖРО обусловлена радионуклидами, Бк/л: ¹³⁷Cs — 2·10⁶, ⁹⁰Sr — 3·10⁶, ²³⁹Pu — 1·10⁵, ¹⁵²Eu — 3·10⁵. В соответствии с нормативными требованиями ЖРО относятся к отходам средней активности.

Таким образом, исследования проводились на образцах цементных компаундов, указанных в табл. 1.

Механические и физико-химические свойства цементных компаундов оценивали посредством измерения прочности на сжатие с использованием стандартных методов и оборудования, описанных ранее в работах [4, 5]. Твердение и набор прочности цементных компаундов происходили в воздушно-влажных условиях при комнатной и при повышенных температурах 50 и 90 °С, в условиях длительного пребывания в

Таблица 1. Составы цементных компаундов

| Состав | Вяжущее | Добавка | Затворитель | В/Ц |
|--------|---------|---------|-----------------------|-----|
| № 1 | ПЦ | – | вода | 0,5 |
| № 2 | ПЦ | ДБ | вода | 0,5 |
| № 3 | ПЦ | – | имитатор, с/с 530 г/л | 0,5 |
| № 4 | ПЦ | ДБ | имитатор, с/с 530 г/л | 0,5 |
| № 5 | ПЦ | – | ЖРО | 0,5 |
| № 6 | ПЦ | ДБ | ЖРО | 0,5 |

Обозначения: ПЦ — портландцемент; ДБ — бентонитовый глинопорошок; В/Ц — водоцементное отношение, с/с — солесодержание

воде, попеременного замораживания/оттаивания и радиационных нагрузок.

Радиационной нагрузке цементные образцы подвергались в гамма-камере с источником излучения ¹³⁷Cs с энергией 661 кэВ в течение времени, за которое поглощенная доза достигнет значений порядка 10⁶, 10⁷ и 10⁸ Гр. Облучение электронами осуществлялось на линейном электронном ускорителе УЭЛВ-10-10-С-70 со следующими параметрами: энергия — 8 МэВ, длительность импульса — 6 мкс, частота повторения импульсов — 300 Гц, средний ток пучка — ≤ 800 мкА, ширина развертки — 245 мм, частота развертки — 1 Гц. Мощность дозы, в зависимости от скорости прохождения образца сквозь пучок электронов, в среднем составляла 1,2 кГр/с. Облучение альфа-частицами проводили путем введения радионуклида ²³⁹Pu (в виде азотнокислого раствора) непосредственно в затворитель. Для достижения величин доз порядка 10⁶, 10⁷, 10⁸ Гр в образцах время выдержки цементных компаундов составило 90 дней при активности ²³⁹Pu на один образец 3,5·10⁸, 3,9·10⁹ и 2,4·10¹⁰ Бк соответственно.

Скорость выщелачивания радионуклидов оценивали по стандартному методу [8] в статических условиях в термостате при температуре 25 °С. В качестве выщелачивающей среды использовали деионизированную воду (проводимость 18 МОм/см). Для анализа содержания радионуклидов Cs, Sr, Pu в водах выщелачивания использовали гамма-спектрометр с детектором из высокочистого германия Canberra GC 3020 (Canberra, США) и жидкостно-сцинтилляционный спектрометр Tri-Carb 2810T (Perkin Elmer, США).

Показатели механических и физико-химических свойств компаундов определяли по схеме: прочность на сжатие — в возрасте твердения 7, 14, 28 суток; морозостойкость — в возрасте твердения 28 суток; водостойкость образцов (устойчивость к длительному пребыванию в воде в течение 90 суток) — с возраста твердения 28 суток; радиационную стойкость образцов и скорость выщелачивания радионуклидов — с возраста

твердения 28 суток. Измерения и испытания проводились с использованием образцов в виде кубиков (2×2×2 см) и балочек (1×1×3 см).

Результаты и обсуждение

Данные по физико-механическим свойствам и результаты оценки скорости выщелачивания радионуклидов необлученных цементных компаундов представлены в табл. 2 и 3. Приведены значения прочности на сжатие образцов, набравших прочность в условиях повышенной температуры, после 30 циклов замораживания/оттаивания и после выдержки в водной среде. Все определенные величины являются средними значениями из двух параллельных измерений.

Результаты измерений прочности на сжатие образцов цементных компаундов, твердение которых происходило при температурах 50 и 90 °С, не показали отрицательного влияния повышенной температуры как на традиционный процесс твердения, так и на величины, характерные для периодов набора прочности. С течением времени прочность компаундов варьируется в зависимости от состава и растет в результате процессов гидратации, происходящих в цементном камне. Данные результаты в целом коррелируют с опубликованными ранее работами по изучению влияния температуры окружающей среды на процессы твердения цементного камня [9, 10].

Анализируя полученные результаты, можно отметить следующие моменты. При увеличении температуры выдержки происходит ускорение набора прочности цементного камня при условии

поддержания влажности в термостате. Ярко выраженного влияния добавки бентонитового глинопорошка на прочностные характеристики в данных условиях не установлено. Прочность образцов цементных компаундов с имитатором ВАО имеет показатель на 20–25 % ниже по сравнению с прочностью цементных компаундов, полученных затворением дистиллированной водой.

В рассматриваемых условиях цементные компаунды отвечают требованиям [11] по предельной величине прочности цементированных отходов (5 МПа) начиная с возраста твердения 7 суток, а в результате процессов замораживания/оттаивания и длительного пребывания в водной среде потеря прочности не превышает 25 % по сравнению с контрольным образцом в эквивалентном возрасте твердения. По прочности объекты испытаний удовлетворяют требованию [12] критериев приемлемости для РАО 2 класса — не менее 10 МПа, и ее потери в результате испытаний — не более 20 % от установленной величины. Таким образом, рассматриваемые цементные компаунды удовлетворяют критерию по прочностным показателям, установленным нормативными документами, регламентирующими деятельность на объектах использования атомной энергии.

В целом цементные компаунды с добавкой бентонитовой глины (№ 2 и № 4) отличаются от образцов без ее добавки (№ 1 и № 3) меньшей скоростью выщелачивания ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr и ²³⁹Pu (с разницей до 30 %) (см. табл. 3), что также справедливо для образцов, набравших прочность при температурах 50 и 90 °С. При этом можно

Таблица 2. Показатели механической прочности на сжатие цементных компаундов, набравших прочность при разных температурах, после испытаний на морозостойчивость и водостойчивость

| Состав | Температура выдержки, °С | Механическая прочность компаунда, МПа (среднее значение по выполненным измерениям) | | | | | | |
|--------|--------------------------|--|----------|----------|---|--|---|--|
| | | твердевшего в воздушно-влажностных условиях | | | в ходе испытаний на морозостойчивость | | в ходе испытаний на водостойчивость | |
| | | 7 суток | 14 суток | 28 суток | контрольный компаунд в эквивалентном возрасте твердения | после 30 циклов замораживания/оттаивания | контрольный компаунд в эквивалентном возрасте твердения | после пребывания в воде в течение 90 суток |
| 1 | 25 | 17,9±4,5 | 26,4±6,6 | 33,8±8,5 | 35,7±8,9 | 33,8±8,5 | 41,4±10,4 | 35,8±9,0 |
| | | 16,8±4,2 | 25,0±6,3 | 32,7±8,2 | 35,2±8,8 | 33,1±8,3 | 41,1±10,3 | 35,1±8,8 |
| | | 13,3±3,3 | 21,2±5,3 | 27,7±6,9 | 29,1±7,3 | 26,8±6,7 | 32,5±8,1 | 27,6±6,9 |
| | | 12,2±3,1 | 20,0±5,0 | 27,2±6,8 | 28,4±7,1 | 26,5±6,6 | 32,0±8,0 | 27,1±6,8 |
| 1 | 50 | 18,3±4,6 | 26,9±6,7 | 34,7±8,7 | 35,9±9,0 | 34,0±8,5 | 41,6±10,4 | 35,7±8,9 |
| | | 17,1±4,3 | 26,2±6,6 | 33,8±8,5 | 35,6±8,9 | 33,8±8,5 | 41,5±10,4 | 35,5±8,9 |
| | | 14,9±3,7 | 22,8±5,7 | 29,1±7,3 | 30,0±7,5 | 27,3±6,8 | 33,0±8,3 | 27,2±6,8 |
| | | 13,5±3,4 | 21,3±5,3 | 28,2±7,1 | 29,7±7,4 | 26,9±6,7 | 32,9±8,2 | 27,1±6,8 |
| 1 | 90 | 19,2±4,8 | 29,9±7,5 | 35,5±8,9 | 36,2±9,1 | 34,4±8,6 | 40,9±10,2 | 35,3±8,8 |
| | | 19,6±4,9 | 28,3±7,1 | 34,8±8,7 | 35,8±9,0 | 34,1±8,5 | 40,7±10,2 | 34,9±8,7 |
| | | 15,5±3,9 | 23,5±5,9 | 30,6±7,7 | 31,3±7,8 | 28,5±7,1 | 33,2±8,3 | 28,1±7,0 |
| | | 14,4±3,6 | 23,1±5,8 | 29,5±7,4 | 31,0±7,8 | 28,0±7,0 | 33,1±8,3 | 28,4±7,1 |

Таблица 3. Скорость выщелачивания ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{239}Pu на 28 сутки эксперимента из образцов, набравших прочность в разных температурных условиях

| Состав | Температура выдержки, °С | Скорость выщелачивания, г/(см ² ·сут) | | |
|--------|--------------------------|--|---------------------|---------------------|
| | | ^{137}Cs | ^{90}Sr | ^{239}Pu |
| 1 | 25 | $7,1 \cdot 10^{-5}$ | $9,7 \cdot 10^{-6}$ | $3,1 \cdot 10^{-6}$ |
| 2 | | $5,6 \cdot 10^{-5}$ | $8,4 \cdot 10^{-6}$ | $9,6 \cdot 10^{-7}$ |
| 3 | | $2,2 \cdot 10^{-4}$ | $4,5 \cdot 10^{-5}$ | $5,8 \cdot 10^{-6}$ |
| 4 | | $8,3 \cdot 10^{-5}$ | $2,7 \cdot 10^{-5}$ | $5,1 \cdot 10^{-6}$ |
| 1 | 50 | $2,5 \cdot 10^{-5}$ | $5,1 \cdot 10^{-6}$ | $1,2 \cdot 10^{-6}$ |
| 2 | | $1,8 \cdot 10^{-5}$ | $3,7 \cdot 10^{-6}$ | $8,9 \cdot 10^{-7}$ |
| 3 | | $9,1 \cdot 10^{-5}$ | $1,3 \cdot 10^{-5}$ | $4,0 \cdot 10^{-6}$ |
| 4 | | $6,3 \cdot 10^{-5}$ | $9,3 \cdot 10^{-6}$ | $4,8 \cdot 10^{-6}$ |
| 1 | 90 | $3,4 \cdot 10^{-5}$ | $3,1 \cdot 10^{-6}$ | $9,1 \cdot 10^{-7}$ |
| 2 | | $2,1 \cdot 10^{-5}$ | $1,8 \cdot 10^{-6}$ | $7,5 \cdot 10^{-7}$ |
| 3 | | $7,0 \cdot 10^{-5}$ | $1,0 \cdot 10^{-5}$ | $2,2 \cdot 10^{-6}$ |
| 4 | | $3,9 \cdot 10^{-5}$ | $7,2 \cdot 10^{-6}$ | $2,6 \cdot 10^{-6}$ |

отметить, что повышение температуры окружающей среды до 90 °С в период твердения цементного компаунда не оказывает отрицательного воздействия на химическую стойкость — не приводит к повышению скорости выщелачивания радионуклидов.

Для оценки радиационной стойкости цементные компаунды подвергались воздействию различных видов ионизирующих излучений. После этого образцы цементных компаундов испытывались на морозоустойчивость и водоустойчивость, оценивалась скорость выщелачивания радионуклидов.

Результаты экспериментов по определению прочности образцов после воздействия гамма-излучения и электронов приведены в табл. 4.

Из табл. 4 видно, что радиационные нагрузки, обусловленные воздействием гамма-квантов и электронов, не привели к потере прочности на сжатие ниже установленных величин и более установленной разницы в 20 %.

Представленные данные показывают, что исследованные цементные компаунды не теряют свои прочностные характеристики при облучении, соответствующем дозе 10^8 Гр, как гамма-квантами, так и электронами.

Влияние альфа-излучения было исследовано для составов № 1 и № 3. При получении образцов в затворитель вводился радионуклид ^{239}Pu , длительность экспозиции всех образцов составила 90 суток. Результаты эксперимента показали, что при максимальной накопленной дозе альфа-излучения, соответствующей величине 10^8 Гр, прочность образцов не изменилась (в пределах погрешности измерений) и имеет величину для состава № 1 $35,7 \pm 8,9$ МПа, состава № 3 — $26,9 \pm 6,7$ МПа.

Таблица 4. Показатели механической прочности на сжатие цементных компаундов, подвергнутых радиационной нагрузке

| Состав | Механическая прочность компаунда, МПа | | | | | |
|---|---------------------------------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| | Гамма-кванты | | | Электроны | | |
| | 10^6 Гр | 10^7 Гр | 10^8 Гр | 10^6 Гр | 10^7 Гр | 10^8 Гр |
| Цементные компаунды, подвергнутые радиационной нагрузке | | | | | | |
| 1 | $34,9 \pm 8,7$ | $35,2 \pm 8,8$ | $34,5 \pm 8,6$ | $36,6 \pm 9,2$ | $37,1 \pm 9,3$ | $35,4 \pm 8,9$ |
| 2 | $34,6 \pm 8,7$ | $36,3 \pm 9,1$ | $35,1 \pm 8,8$ | $35,9 \pm 9,0$ | $37,4 \pm 9,4$ | $36,6 \pm 9,2$ |
| 3 | $29,5 \pm 7,4$ | $28,0 \pm 7,0$ | $29,0 \pm 7,3$ | $30,6 \pm 7,7$ | $31,2 \pm 7,8$ | $31,9 \pm 8,0$ |
| 4 | $29,3 \pm 7,3$ | $29,7 \pm 7,4$ | $28,7 \pm 7,2$ | $29,8 \pm 7,5$ | $31,8 \pm 8,0$ | $31,7 \pm 7,9$ |
| В ходе испытаний на морозоустойчивость после облучения | | | | | | |
| 1 | $32,5 \pm 8,1$ | $33,2 \pm 8,3$ | $33,4 \pm 8,4$ | $34,5 \pm 8,6$ | $35,0 \pm 8,8$ | $34,4 \pm 8,6$ |
| 2 | $31,8 \pm 8,0$ | $33,5 \pm 8,4$ | $33,0 \pm 8,3$ | $33,8 \pm 8,5$ | $34,4 \pm 8,6$ | $33,3 \pm 8,3$ |
| 3 | $27,4 \pm 6,9$ | $28,8 \pm 7,2$ | $28,7 \pm 7,2$ | $29,1 \pm 7,3$ | $29,3 \pm 7,3$ | $29,9 \pm 7,5$ |
| 4 | $26,7 \pm 6,7$ | $28,5 \pm 7,1$ | $28,4 \pm 7,1$ | $29,4 \pm 7,4$ | $29,7 \pm 7,4$ | $29,3 \pm 7,3$ |
| В ходе испытаний на водоустойчивость после облучения | | | | | | |
| 1 | $35,1 \pm 8,8$ | $34,1 \pm 8,5$ | $35,4 \pm 8,9$ | $33,2 \pm 8,3$ | $33,5 \pm 8,4$ | $34,4 \pm 8,6$ |
| 2 | $35,2 \pm 8,8$ | $34,5 \pm 8,6$ | $35,3 \pm 8,8$ | $32,6 \pm 8,2$ | $33,3 \pm 8,3$ | $34,1 \pm 8,5$ |
| 3 | $30,3 \pm 7,6$ | $29,6 \pm 7,4$ | $31,1 \pm 7,8$ | $28,5 \pm 7,1$ | $29,0 \pm 7,3$ | $30,5 \pm 7,6$ |
| 4 | $29,7 \pm 7,4$ | $28,5 \pm 7,1$ | $30,9 \pm 7,7$ | $28,6 \pm 7,2$ | $28,3 \pm 7,1$ | $30,4 \pm 7,6$ |

Как видно, принципиальных различий в радиационном эффекте от разных источников ионизирующих излучений не наблюдается, по крайней мере до облучения дозой, соответствующей величине 10^8 Гр.

Образцы цементных компаундов (составы № 5 и № 6), полученные с использованием ЖРО, исследовались на механическую прочность, химическую стойкость и стойкость к радиационным нагрузкам. Для накопления дозы, соответствующей величине 10^8 Гр, образцы подвергались внешнему гамма- и электронному облучению. Результаты испытаний цементных компаундов представлены в табл. 5.

Таблица 5. Показатели механической прочности на сжатие цементных компаундов с ЖРО в ходе испытаний на морозоустойчивость и водоустойчивость до и после облучения

| Состав | Доза, Гр | Механическая прочность компаунда, МПа | | |
|--------|--------------------|--|---|----------------------------------|
| | | компаунд, твердевший в воздушно-влажных условиях | компаунд после 30 циклов замораживания/оттаивания | компаунд после пребывания в воде |
| 5 | 0 | $35,8 \pm 9,0$ | $33,4 \pm 8,4$ | $31,0 \pm 7,8$ |
| | 10^8 (электроны) | $36,7 \pm 9,2$ | $32,2 \pm 8,1$ | $29,7 \pm 7,4$ |
| | 10^8 (гамма) | $34,9 \pm 8,7$ | $33,1 \pm 8,3$ | $28,7 \pm 7,2$ |
| 6 | 0 | $34,3 \pm 8,6$ | $32,5 \pm 8,1$ | $29,2 \pm 7,3$ |
| | 10^8 (электроны) | $33,9 \pm 8,5$ | $31,6 \pm 7,9$ | $30,1 \pm 7,5$ |
| | 10^8 (гамма) | $32,6 \pm 8,2$ | $31,1 \pm 7,8$ | $28,8 \pm 7,2$ |

Таблица 6. Скорость выщелачивания ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{239}Pu на 28 сутки из облученных образцов

| Состав | Доза облучения, Гр | Скорость выщелачивания, г/(см ² ·сут) | | |
|--------|--------------------|--|---------------------|---------------------|
| | | ^{137}Cs | ^{90}Sr | ^{239}Pu |
| 1 | 0 | $2,2 \cdot 10^{-4}$ | $9,7 \cdot 10^{-6}$ | $3,1 \cdot 10^{-6}$ |
| | 10^8 (электроны) | $7,0 \cdot 10^{-5}$ | $8,2 \cdot 10^{-6}$ | $1,2 \cdot 10^{-6}$ |
| | 10^8 (гамма) | $9,1 \cdot 10^{-5}$ | $4,3 \cdot 10^{-6}$ | $8,5 \cdot 10^{-7}$ |
| 2 | 0 | $7,1 \cdot 10^{-5}$ | $4,5 \cdot 10^{-6}$ | $5,8 \cdot 10^{-6}$ |
| | 10^8 (электроны) | $4,4 \cdot 10^{-5}$ | $2,5 \cdot 10^{-6}$ | $8,6 \cdot 10^{-6}$ |
| | 10^8 (гамма) | $2,9 \cdot 10^{-5}$ | $1,3 \cdot 10^{-6}$ | $1,2 \cdot 10^{-7}$ |
| 3 | 0 | $9,0 \cdot 10^{-5}$ | $1,2 \cdot 10^{-5}$ | $1,4 \cdot 10^{-6}$ |
| | 10^8 (электроны) | $7,9 \cdot 10^{-5}$ | $8,8 \cdot 10^{-6}$ | $1,5 \cdot 10^{-6}$ |
| | 10^8 (гамма) | $9,1 \cdot 10^{-5}$ | $9,5 \cdot 10^{-6}$ | $9,8 \cdot 10^{-7}$ |
| 4 | 0 | $8,1 \cdot 10^{-5}$ | $9,4 \cdot 10^{-6}$ | $1,1 \cdot 10^{-6}$ |
| | 10^8 (электроны) | $7,2 \cdot 10^{-5}$ | $6,8 \cdot 10^{-6}$ | $8,9 \cdot 10^{-7}$ |
| | 10^8 (гамма) | $6,8 \cdot 10^{-5}$ | $7,9 \cdot 10^{-6}$ | $7,5 \cdot 10^{-7}$ |
| 5 | 0 | $9,0 \cdot 10^{-5}$ | $1,2 \cdot 10^{-5}$ | $1,4 \cdot 10^{-6}$ |
| | 10^8 (электроны) | $7,9 \cdot 10^{-5}$ | $8,8 \cdot 10^{-6}$ | $1,5 \cdot 10^{-6}$ |
| | 10^8 (гамма) | $9,1 \cdot 10^{-5}$ | $9,5 \cdot 10^{-6}$ | $9,8 \cdot 10^{-7}$ |
| 6 | 0 | $8,1 \cdot 10^{-5}$ | $9,4 \cdot 10^{-6}$ | $1,1 \cdot 10^{-6}$ |
| | 10^8 (электроны) | $7,2 \cdot 10^{-5}$ | $6,8 \cdot 10^{-6}$ | $8,9 \cdot 10^{-7}$ |
| | 10^8 (гамма) | $6,8 \cdot 10^{-5}$ | $7,9 \cdot 10^{-6}$ | $7,5 \cdot 10^{-7}$ |

Результаты выщелачивания ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{239}Pu из облученных образцов представлены в табл. 6.

Можно отметить, что скорость выщелачивания радионуклидов ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{239}Pu немного снижается с увеличением дозы облучения, введение бентонитового глинопорошка дополнительно снижает данный показатель. Не обнаружена какая-либо зависимость влияния вида облучения на выщелачиваемость из исследуемых цементных компаундов. Значения скорости выщелачивания образцов всех составов не превышают нормативных предельных значений для цементированных РАО.

Выводы

Проведенные исследования показывают, что цементные компаунды с имитатором ВАО и реальными ЖРО средней активности сохраняют свои физико-механические характеристики как при термических нагрузках (вплоть до температуры 90 °С) в период твердения образцов, так и дозовых нагрузках до 10^8 Гр в условиях длительного пребывания в водной среде и в условиях попеременного замораживания/оттаивания. Повышение температуры окружающей среды (до 90 °С) ускоряет процесс твердения цементов на

ранней стадии при условии поддержания влажности в термостате. Добавка бентонитовой глины (5 масс. %) способствует уменьшению скорости выщелачивания радионуклидов до 30%. При этом максимальные значения скорости выщелачивания практически для всех образцов, в том числе после воздействия ионизирующих излучений, не превышали для цезия 10^{-4} г/(см²·сут), стронция — 10^{-5} г/(см²·сут), плутония — 10^{-5} г/(см²·сут). Повышение температуры твердения цементов не оказало значительного влияния на скорость выщелачивания радионуклидов.

Таким образом, результаты испытаний цементных компаундов, полученных на основе портландцемента, затворенного как с использованием воды, так и имитатора ВАО и ЖРО средней активности, не дают основания считать их непригодными в качестве матрицы ВАО.

Литература

1. Ojovan M. I., Lee W. E., Kalmykov S. N. An introduction to nuclear waste immobilisation. Elsevier, 2019.
2. Mobasher N., Bernal S. A., Kinoshita H., Sharrad C. A., Provisa J. L. Gamma irradiation resistance of an early age slag-blended cement matrix for nuclear waste encapsulation // J. Mater. Res. 2015. V. 30, no. 9. Pp. 1563—1571.
3. Glasser F. P. Characterisation of the barrier performance of cements // MRS Symp. Proc., 2002, vol. 713, pp. 721—732.
4. Варлаков А. П., Капустин В. В., Варлакова Г. А., Жеребцов А. А., Петров В. Г., Ширишин Е. А., Калмыков С. Н. Влияние радиационных нагрузок, характерных для высокоактивных отходов, на свойства цементной матрицы // Радиоактивные отходы. 2018. № 1 (2). С. 89—96.
5. Варлаков А. П., Жеребцов А. А., Петров В. Г., Капустин В. В., Варлакова Г. А., Власова И. Э., Калмыков С. Н. Поведение цементной матрицы под воздействием радиационных нагрузок // Вопросы радиационной безопасности. 2018. № 3. С. 13—20.
6. Varlakov A., Zherebtsov A., Kapustin V., Varlakova G., Petrov V., Vlasova I., Shirshin E., Kalmykov S. Characteristics of cement compounds after irradiation up to doses typical for high level radioactive waste. [Эл. ресурс] // 3rd International Symposium on cement-based materials for Nuclear Waste. NUWCEM 2018. 24—26 October 2018, Avignon, France. Book of Abstracts. P. 103.
7. Vinokurov S. E., Kulyako Yu. M., Slyuntchev O. M., Rovny S. I., Myasoedov B. F. Low-temperature immobilization of actinides and other components of high-level waste in magnesium potassium phosphate matrices // J. of Nuclear Materials. 2009. Vol. 385. Pp. 189—192.

8. ГОСТ Р 52126-2003. Отходы радиоактивные. Определение химической устойчивости отвержденных высокоактивных отходов методом длительного выщелачивания. М.: Госстандарт России, 2003.
9. Волженский А. В. Минеральные вяжущие вещества. М.: Стройиздат, 1986, 464 с.
10. Рыбьев И. А. Строительное материаловедение. М.: Высш. шк., 2004. 701 с.
11. ГОСТ Р 51883-2002. Отходы радиоактивные цементированные. Общие технические требования. М.: Госстандарт России: Изд-во стандартов, 2002.
12. НП-093-14. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии. Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения. Утверждены приказом Ростехнадзора № 572 от 15.12.2014, зарегистрированы Минюстом РФ 27.03.2015 № 36592.

Информация об авторах

Варлаков Андрей Петрович, доктор технических наук, директор отделения, АО «ВНИИНМ» (123098, Москва, ул. Рогова, 5а), e-mail: APVarlakov@bochvar.ru.

Жеребцов Александр Анатольевич, кандидат химических наук, начальник отдела, АО «Прорыв» (107140, Москва, ул. Малая Красносельская, 2/8), e-mail: zhala@proryv2020.ru.

Петров Владимир Геннадьевич, кандидат химических наук, доцент, МГУ им. М. В. Ломоносова (119991, Москва, ул. Ленинские горы, 1 стр. 3), e-mail: Vladimir.g.petrov@gmail.com.

Капустин Виталий Викторович, ведущий инженер-технолог, АО «ВНИИНМ» (123098, Москва, ул. Рогова, 5а), e-mail: vitkap1990@gmail.com.

Варлакова Галина Андреевна, кандидат технических наук, главный специалист, АО «ВНИИНМ» (123098, Москва, ул. Рогова, 5а), e-mail: Varlakova@inbox.ru.

Власова Ирина Энгельсовна, кандидат химических наук, старший научный сотрудник, МГУ им. М. В. Ломоносова (119991, Москва, ул. Ленинские горы, 1, стр. 3), e-mail: irinaeng@gmail.com.

Харитонов Иван Дмитриевич, аспирант, МГУ им. М. В. Ломоносова (119991, Москва, ул. Ленинские горы, 1, стр. 3), e-mail: ob-ivan@ya.ru.

Калмыков Степан Николаевич, доктор химических наук, и. о. декана химического факультета, МГУ им. М. В. Ломоносова (119991, Москва, ул. Ленинские горы, 1, стр. 3), e-mail: stepan@radio.chem.msu.ru.

Библиографическое описание статьи

Варлаков А. П., Жеребцов А. А., Петров В. Г., Капустин В. В., Варлакова Г. А., Власова И. Э., Харитонов И. Д., Калмыков С. Н. Оценка радиационных и температурных нагрузок на цементный компаунд, содержащий имитаторы радиоактивных отходов // Радиоактивные отходы. 2020. № 1 (10). С. 66–72. DOI: 10.25283/2587-9707-2020-1-66-72.

ASSESSMENT OF RADIATION AND TEMPERATURE LOADS ON CEMENT COMPOUND CONTAINING SIMULATED RADIOACTIVE WASTE

Varlakov A. P.¹, Zherebtsov A. A.², Petrov V. G.³, Kapustin V. V.¹,
Varlakova G. A.¹, Vlasova I. E.³, Haritonov I. D.³, Kalmykov S. N.³

¹JSC «A. A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials», Moscow

²JSC «Innovation and Technology Center by “PRORYV” Project”, State Atomic Energy Corporation “Rosatom”, Moscow

³Chemistry Department of Moscow State University, Moscow

Article received on December 12, 2019

The paper focuses on radiation effects of ionizing sources and elevated temperatures produced on cement compounds containing simulated high-level and intermediate-level LRW. The paper presents the identified physical and chemical properties of the cement compounds and their alterations under the influence of elevated temperatures and ionizing radiation with the absorbed dose of up to 10⁸ Gy.

Keywords: radioactive waste, simulated radioactive waste, radiation stability, dose rate, temperature loads, strength, radionuclide leaching rate.

References

1. Ojovan M. I., Lee W. E., Kalmykov S. N. *An introduction to nuclear waste immobilisation*. Elsevier, 2019.
2. Mobasher N., Bernal S. A., Kinoshita H., Sharad C. A., Provisa J. L. Gamma irradiation resistance of an early age slag-blended cement matrix for nuclear waste encapsulation. *J. Mater. Res.*, 2015, vol. 30, no. 9, pp. 1563–1571.
3. Glasser F. P. Characterisation of the barrier performance of cements. *MRS Symp. Proc.*, 2002, vol. 713, pp. 721–732.
4. Varlakov A. P., Kapustin V. V., Varlakova G. A., Zherebtsov A. A., Petrov V. G., Shirshin E. A., Kalmykov S. N. Vliyanie radiacionnyh nagruzok, harakternyh dlya vysokoaktivnyh othodov, na svoystva cementnoj matricy [The effect of radiation doses typical for high-level waste on the properties of the cement matrix]. *Radioaktivnye othody — Radioactive Waste*, 2018, no. 1(2), pp. 89–96.
5. Varlakov A. P., Zherebtsov A. A., Petrov V. G., Kapustin V. V., Varlakova G. A., Vlasova I. E., Kalmykov S. N. Povedenie cementnoj matricy pod vozdejstviem radiacionnyh nagruzok [Behavior of Cement-Based Matrices Exposed to Radiation]. *Voprosy radiacionnoj bezopasnosti — Radiation Safety Issues*, 2018, no. 3, pp. 13–20.
6. Varlakov A., Zherebtsov A., Kapustin V., Varlakova G., Petrov V., Vlasova I., Shirshin E., Kalmykov S. Characteristics of cement compounds after irradiation up to doses typical for high level radioactive waste. *3rd International Symposium on cement-based materials for Nuclear Waste*. NUWCEM 2018. 24–26 October 2018, Avignon, France. Book of Abstracts. P. 103.
7. Vinokurov S. E., Kulyako Yu. M., Slyuntchev O. M., Rovny S. I., Myasoedov B. F. Low-temperature immobilization of actinides and other components of high-level waste in magnesium potassium phosphate matrices. *J. of Nuclear Materials*. 2009, vol. 385, pp. 189–192.
8. GOST R 52126-2003. *Othody radioaktivnye. Opreделение himicheskoy ustojchivosti otverzhdennyh vysokoaktivnyh othodov metodom dlitel'nogo vyshchela-chivaniya* [State Standard R 52126-2003. Radioactive waste. Long time leach testing of solidified radioactive waste forms]. Moscow, Gosstandart Rossii Publ., 2003.
9. Volzhenskiy A. V. *Mineral'nye vyazhushchie veshchestva* [Mineral binders]. Moscow, Stroyizdat Publ., 1986. 464 p.
10. Rybiev I. A. *Stroitel'noe materialovedenie* [Building materials]. Moscow, Vysshaya shkola Publ., 2004. 701 p.
11. GOST R 51883-2002. *Othody radioaktivnye cementirovannye. Obshchie tekhnicheskie trebovaniya* [State Standard R 51883-2002. Cemented radioactive waste. General technical requirements]. Moscow, Gosstandart Rossii Publ., 2002.
12. Federalnye normy i pravila v oblasti ispolzovaniya atomnoj energii “Kriterii priemlemosti radioaktivnyh othodov dlya zahoroneniya” (NP-093-14) / Utv. Prikazom Federalnoj sluzhby po ekologicheskomu, tehnologicheskomu i atomnomu nadsoru ot 15.12.2014, N 572 [NP-093-14 Criteria for acceptance of radioactive waste for disposal]. Moscow, 2014. 43 p.

Information about the authors

Varlakov Andrey Petrovich, Doctor of Sciences, Director of Department, JSC “VNIINM” (5a, Rogova St., Moscow, 123098, Russia), e-mail: APVarlakov@bochvar.ru.

Zherebtsov Alexander Anatolevich, PhD, Head of Department, JSC “PRORYV” (2/8, Malaya Krasnoselskaya St., Moscow, 107140, Russia), e-mail: zhala@proryv2020.ru.

Petrov Vladimir Gennadevich, PhD, Associate Professor, Lomonosov Moscow State University (1, Leninskie gory St., Moscow, 119991, Russia), e-mail: Vladimir.g.petrov@gmail.com.

Kapustin Vitaliy Victorovich, Lead Engineer, JSC “VNIINM” (5a, Rogova St., Moscow, 123098, Russia), e-mail: vitkap1990@gmail.com.

Varlakova Galina Andreevna, PhD, Main Specialist, JSC “VNIINM” (5a, Rogova St., Moscow, 123098, Russia), e-mail: Varlakova@inbox.ru.

Vlasova Irina Engelsovna, PhD, Senior Researcher, Lomonosov Moscow State University (1, Leninskie gory St., Moscow, 119991, Russia), e-mail: irinaeng@gmail.com.

Haritonov Ivan Dmitrievich, Postgraduate Student, Lomonosov Moscow State University (1, Leninskie gory St., Moscow, 119991, Russia), e-mail: ob-ivan@ya.ru.

Kalmykov Stepan Nikolaevich, Doctor of Sciences, Acting Dean of Chemical Faculty of MSU, Lomonosov Moscow State University (1, Leninskie gory St., Moscow, 119991, Russia), e-mail: stepan@radio.chem.msu.ru.

Bibliographic description

Varlakov A. P., Zherebtsov A. A., Petrov V. G., Kapustin V. V., Varlakova G. A., Vlasova I. E., Haritonov I. D., Kalmykov S. N. Assessment of Radiation and Temperature Loads on Cement Compound Containing Simulated Radioactive Waste. *Radioactive Waste*, 2020, no. 1 (10), pp. 66–72. (In Russian). DOI: 10.25283/2587-9707-2020-1-66-72.