DOI: 10.25283/2587-9707-2023-4-62-71 УДК 621.039.(58:7)

ОБЗОР ЗАРУБЕЖНОГО ОПЫТА И РЕЗУЛЬТАТЫ ИСПЫТАНИЙ МАТЕРИАЛОВ НА ОСНОВЕ ЦЕМЕНТА ДЛЯ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ДОЛГОВРЕМЕННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ ХРАНИЛИЩ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

М. Ю. Бамборин[1], Е. В. Кузьмин[1], С. Л. Спешилов[1], М. М. Хахунова[1], А. Н. Каманин[1], А. В. Минин[1], А. В. Барышев[1], А. А. Собко[2], В. В. Доильницына[2]

[1]ФГУП «Национальный оператор по обращению с радиоактивными отходами», Москва

[2]АО «РАОПРОЕКТ», Санкт-Петербург

Статья поступила в редакцию 18 июля 2023 г.

Реализация строительства объектов специального назначения невозможна без проведения глубокого анализа свойств используемых материалов. Задачей этих исследований в первую очередь является подтверждение возможности их применения, оценка работоспособности ресурса в агрессивных средах с главной целью — обоснования срока безопасной эксплуатации сооружаемых объектов. В настоящей статье приведен анализ результатов исследований, проведенных в Канадском ядерном исследовательском центре (Chalk River Laboratories), на хранилищах радиоактивных отходов Чешской АЭС «Дукованы» и Эль Кабриль (El Carbil facility) в Испании, а также полученных в рамках международного проекта CRP.

Ключевые слова: *обращение с РАО, радиоактивные отходы, приповерхностные пункты захоронения радиоактивных отходов, захоронение РАО, бетон, цементосодержащие материалы, деградация материалов.*

Бетоны, применяемые в атомной отрасли, характеризуются разными свойствами и эксплуатируются в специфических условиях, различающихся, в частности, уровнем радиационного воздействия [1]. В приповерхностных пунктах захоронения радиоактивных отходов (ППЗРО) материалы на основе цемента (цементные матрицы, контейнеры с радиоактивными отходами (РАО), строительные конструкции) подвергаются радиационному воздействию в разной степени.

Больше всего оно оказывает влияние на цементосодержащие матрицы с отвержденными жидкими РАО (ЖРО), меньше — на строительные конструкции ППЗРО. По этой причине долговечность бетонов (способность сохранять свои первоначальные свойства) для цементных матриц необходимо изучать при реальном радиационном воздействии, а исследование долговечности строительных конструкций и контейнеров для РАО можно проводить в обычных условиях строительных работ и полного или неполного заглубления (размещение площадок должно быть максимально приближено к расположению будущих ППЗРО).

Последнее обстоятельство позволило в начале 90-х годов развернуть широкое международное сотрудничество в рамках проекта CRP (coordinated research project) по изучению деградации материалов на основе цемента и глин на прототипах конструкций ППЗРО и имитаторах отходов [2]. Также в него включались результаты мониторинга действующих хранилищ (например, на площадке Дригг в Великобритании).

Исследования по изменению свойств материалов на основе цемента проводились в странах — участницах CRP с целью оценки возможности их использования в качестве инженерных барьеров для ППЗРО низкого и среднего уровней активности. Далее приведен обзор некоторых результатов исследований (по материалам МАГАТЭ [2]—[7]).

Изучение долговечности бетона по глубине коррозионного повреждения в Канадском ядерном исследовательском центре на базе IRUS facility [2]

Для подготовки образцов и испытаний использовалось три типа бетонов с разными объемами микрокремнезема и временем отверждения (табл. 1). Деградационное воздействие агрессивных сред проводилось на образцах в виде призм размером 75×75×280 мм.

Таблица 1. Номенклатура бетонов

	Тип цемента	Объем цемента в образце, %	Доменный шлак, %	Микрокремнезём, %	Время отверждения, сутки
Состав 1 (S1)	Портланд, тип 10 (GU*)	100	0	0	14
Состав 2 (S2)	Портланд, тип 50 (HS**)	90	0	10	14
Состав 5 (S5)	Портланд, тип 50 (HS**)	22	75	3	28

*GU — цемент общего назначения, не предназначенный для применения в условиях влияния грунтовых вод или почв с содержанием сульфатов.

**HS — высокосульфатный цемент, устойчивый к коррозии грунтовыми водами или почвами с высоким содержанием сульфатов.

На основании результатов экспериментов был сделан прогноз глубины проникновения хлоридов (рис. 1).

На основании результатов испытаний и выполненных экстраполяций можно ожидать, что при правильном выборе состава бетона его долговечность будет обеспечена на срок до 500 лет.

Комплексные исследования в хранилище радиоактивных отходов Чешской АЭС «Дукованы» [2]

На основании результатов исследований коррозии арматуры была оценена долговечность железобетонных плит перекрытия ППЗРО. Показано, что она составляет 630 лет. При этом величина коррозии арматуры достигнет 50%. В целом надежность железобетонных конструкций (ЖБК) хранилища оценивается в 400 лет.

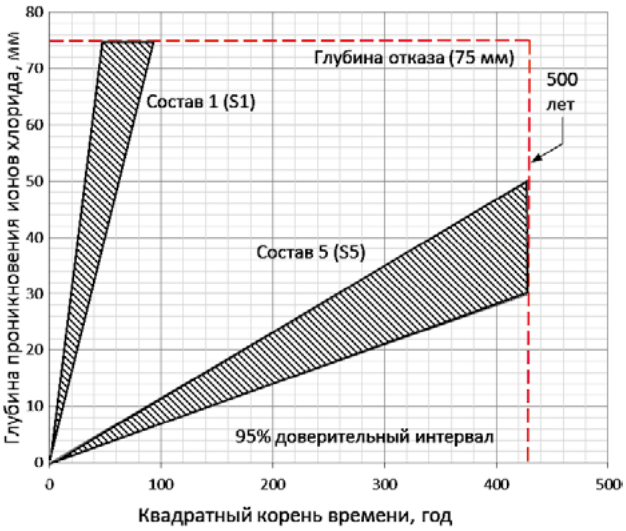

Рис. 1. Деградация бетона под воздействием ионов хлора с концентрацией 5 г/л

Исследовалась также долговечность асфальтовой гидроизоляции. Проведенные работы показали, что наличие в ней органических материалов способствует интенсивной микробиологической деградации. Относительно результатов эксперимента не сделано определенных выводов. Проблемой является количественное описание микробиологических эффектов, поэтому необходим мониторинг хранилища и наблюдение за изменениями в период после закрытия.

Долговечность напряженных ЖБК оценивалась по величине коррозии арматуры. Из сравнения результатов, полученных в 1991 и в 1995 годах, выявлено, что процесс карбонизации протекает намного быстрее в ограждающих конструкциях, чем в перегородках, и имеет тенденцию к замедлению. Скорость коррозии арматуры оценивалась экспериментально на незащищенном бетоне, подвергавшемся воздействию на разных участках. На основании результатов, полученных в этом исследовании, долговечность конструкций хранилища была оценена примерно в 635 лет. Предельное состояние определялось по степени коррозии арматуры (50%), при достижении которой с высокой вероятностью могут произойти просадки панелей перекрытия.

Исследования на базе ППЗРО Эль Кабриль (Испания) [2]

В хранилищах данного пункта захоронения будет применяться бетон, выдерживающий нагрузку 350 кг/см^2. Причем для хранилища и контейнеров он будет изготовлен по одной технологии, но для первого будет использован более крупный наполнитель. Выявлена неоднородность коррозионных процессов по площади

перекрытия. Карбонизация в таких условиях по мере увеличения срока прогноза оценивалась как более интенсивная, чем это предполагалось в начале исследований: коэффициент в параболической зависимости, определяющей глубину данного процесса от времени, был увеличен до 2 мм (для первых лет он принимался равным менее 2 мм, а для 300 лет глубина карбонизации оценивалась в 35 мм).

Деградация бетона вследствие выщелачивания гидрооксида кальция исследовалась в потоке воды с низким содержанием солей. Его скорость составила $1 \cdot 10^{-12}$—$1 \cdot 10^{-11}$ мм/год, т. е. за 300 лет глубина потери кальция составит менее 150 мм, и этим эффектом можно пренебречь.

Оценена возможность обводнения бетона и выщелачивания гидроксида кальция за счет капиллярной абсорбции (всасывания капиллярной влаги в бетон хранилищ). Коэффициент капиллярной абсорбции для бетона составил 13,22 мм/год^{0,5}. При данном показателе проникновение воды в глубь бетона за 300 лет составит приблизительно 230 мм, следовательно и в этом случае выщелачивающим эффектом можно пренебречь.

На основании выполненных исследований сделаны главные рекомендации по параметрам выбора бетона с необходимой долговечностью. К ним относятся:

- минимальное содержание портландита;
- максимальная плотность;
- минимальное водоцементное (В/Ц) отношение;
- ремонтопригодность, совместимость бетонов ремонтного и основного конструктива.

Рекомендуется контролировать и проверять указанные выше параметры.

Обобщеные результаты комплексных исследований разрушения контейнеров странами — участницами международного проекта CRP [3]

Долговечность бетонных контейнеров типа CE-2a изучалась в реальных условиях хранилища на модели в масштабе 1 : 1 (Испания). Контейнер был установлен внутри тестовой бетонной ячейки захоронения. Рассматривались две причины повреждения пассивирующего слоя бетона:

- присутствие в достаточном количестве депассивирующих ионов (хлоридов);
- снижение щелочности за счет реакций с кислой средой.

В первом случае коррозия является локальной, во втором — площадной.

В специфических условиях ППЗРО Эль Кабриль выбранная локализация рассматривалась как соответствующая долговременному хранению контейнеров:

- площадка значительно удалена от прибрежной морской зоны;
- поверхностные и грунтовые воды не содержат сульфатов и других агрессивных веществ;
- площадка локализована в сельской местности с отсутствием в атмосфере повышенного содержания углекислого газа и других загрязнителей;
- климат благоприятный, с положительной температурой воздуха;
- возможность деградации вследствие экспансивных щелочно-силикатных реакций (коррозии III вида) исключена благодаря подходящему выбору материала.

Разрушение из-за биологической активности является значительным только в окружающей среде, благоприятной для развития биологических культур, а для условий ППЗРО Эль Кабриль ее рассмотрением можно пренебречь.

На основе анализа образцов, испытанных в лабораторных условиях, определено, что для бетона в качестве основной причины деградации может быть рассмотрено выщелачивание цемента водой, а для арматуры — карбонизация защитного слоя в период, когда контейнер находится в контакте с воздухом.

Результаты испытаний образцов показали, что скорость карбонизации составляет 26 мм за 300 лет, что значительно меньше толщины пассивирующего слоя (40 мм).

Выщелачивание цемента (гидроксида кальция) происходило в результате воздействия потока воды с низким содержанием солей и высокой кислотностью. При фильтрации воды со скоростью 10^{-12}—10^{-11} м/с его глубина составит от 10 до 100 мм после 300 лет, что меньше толщины стенки контейнера (150 мм), вследствие чего выщелачивающим эффектом можно пренебречь. Величина капиллярного проникновения воды в цемент может достигать 229 мм, но в связи с ее очень низким движением, продукты выщелачивания будут тормозить развитие коррозионного процесса.

На следующем этапе работы предполагалась проверка изменения свойств материала контейнера в реальных условиях захоронения. Целью этих исследований было доказательство того, что долговечность контейнера составит не менее 300 лет.

Решались такие задачи, как:

- проверка изменения состояния бетона в отношении его главных характеристик: долговечности и изоляционных свойств;
- прогноз поведения бетонного контейнера типа CE-2a на 300 лет;
- разработка способов неразрушающего контроля бетона для оценки его состояния;

- возможность встраивания в бетон датчиков для определения показателей его состояния, а также скорости коррозии.

Результаты, полученные с помощью датчиков через шесть лет, показали, что:

- арматура контейнеров и стальные детали совершенно пассивны;
- бетон контейнера теряет влажность и уплотняется;
- внутри контейнера достаточно высокое содержание кислорода;
- циклическое изменение температуры влечет изменение механических характеристик бетона: удельного сопротивления, деформации, а также влияет на содержание кислорода;
- наличие кислорода указывает на отсутствие анаэробных условий.

Важным аспектом общих выводов по изменению свойств материалов контейнеров в условиях ППЗРО явилось понимание того, что для целей предсказания поведения материалов упаковок на 300 лет необходимо знание и верная интерпретация базовых процессов, происходящих в материалах, которые описывают их преобразование.

Количественный прогноз изменения свойств материалов инженерных барьеров, применяемых в ППЗРО, является необходимым условием обоснования возможности их использования и доказательством сохранения защитных свойств на промежутки времени, сопоставимые с периодами археологических наблюдений.

Современные технологии позволяют обеспечить и обосновать долговечность высококачественных бетонов, применяемых в строительной индустрии, на срок 100—120 лет.

Существующие методы прогнозов в принципе применимы и для цементосодержащих материалов инженерных барьеров безопасности пунктов захоронения РАО.

Однако для ППЗРО требуется предположение о долговечности на значительно большее время — 300—500 лет, а для барьеров, изолирующих долгоживущие РАО, — превышающее тысячу лет.

На такие периоды она может быть оценена путем экстраполяции краткосрочных испытаний, однако методы для количественной оценки требуемой долговечности не стандартизированы.

Экспериментальные результаты лабораторных и полевых исследований являются необходимым условием для валидации уравнений в моделях превращений. Данные, полученные в реальных условиях площадки захоронения, необходимы для актуализации моделей и уточнения прогнозов долговечности.

Деградация (или просто изменение свойств) является достаточно абстрактным понятием, которое требуется конкретизировать по отдельным параметрам (плотности, коэффициенту фильтрации, пористости, проницаемости и другим), количественно легко измеряемым. Они должны быть выбраны с учетом их функциональности и применимости.

Модели определения сроков службы бетонных ограждений ППЗРО при захоронении низкоактивных отходов представлены в [6]:

1. Выполнены оценки деградации бетона ($3CaO{\cdot}Al_2O_6$, далее C_3A) вследствие сульфатной коррозии при разной концентрации сульфатов; их результаты приведены на рис. 2—4.

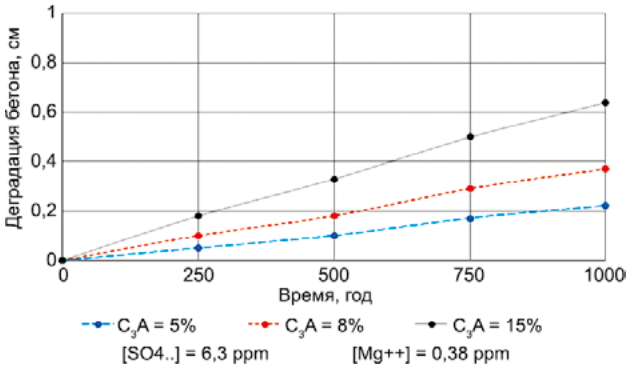

Рис. 2. Скорость сульфатной коррозии при низкой концентрации сульфатов

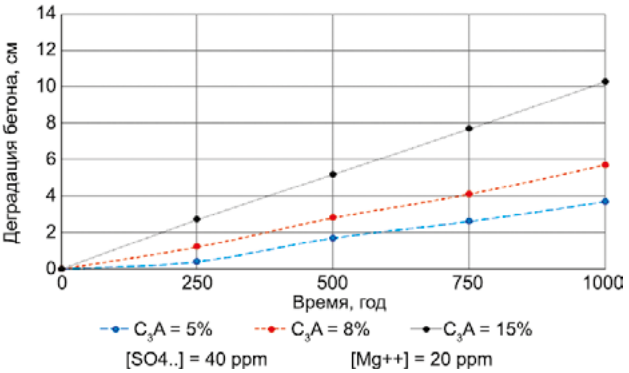

Рис. 3. Скорость сульфатной коррозии при средней концентрации сульфатов

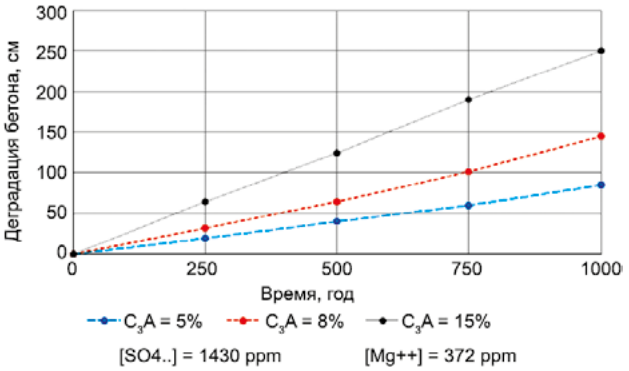

Рис. 4. Скорость сульфатной коррозии при высокой концентрации сульфатов

2. Вычислено время достижения хлоридами арматуры бетона в зависимости от концентрации хлоридов (рис. 5 и 6).

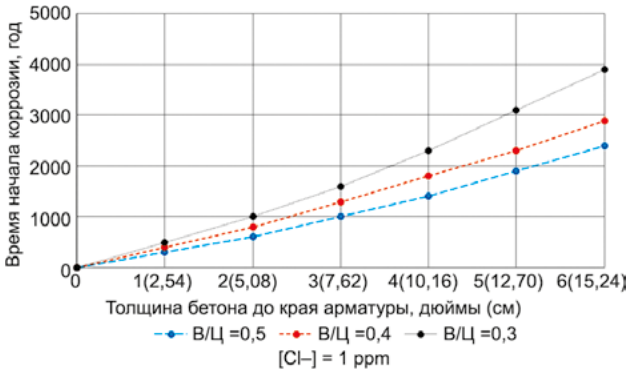

Рис. 5. Зависимость времени достижения хлоридами арматуры от толщины защитного слоя и бетонов с различным водоцементным соотношением (В/Ц). Концентрация хлоридов — 1 ppm

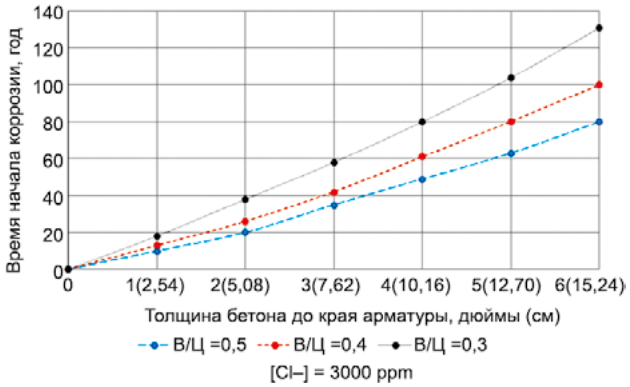

Рис. 6. Зависимость времени достижения хлоридами арматуры от толщины защитного слоя и бетонов с различным водоцементным соотношением (В/Ц). Концентрация хлоридов — 3000 ppm

3. Оценена глубина выщелачивания гидроксида кальция из бетонов различных видов (рис. 7).

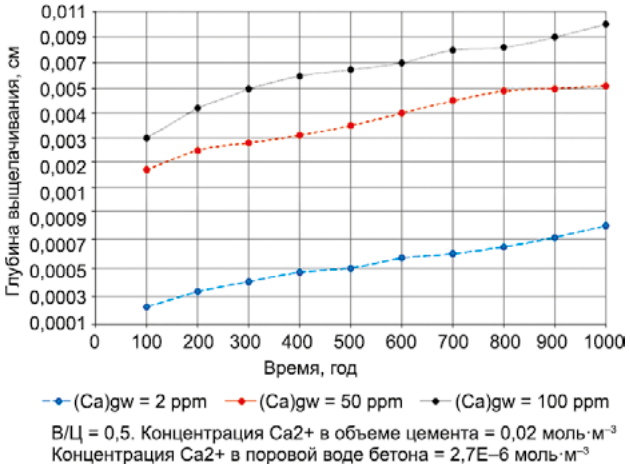

Рис. 7. Скорость выщелачивания гидроксида кальция из бетона (вяжущее — портландцемент)

4. Определена скорость карбонизации бетона в различных геохимических средах (рис. 8).

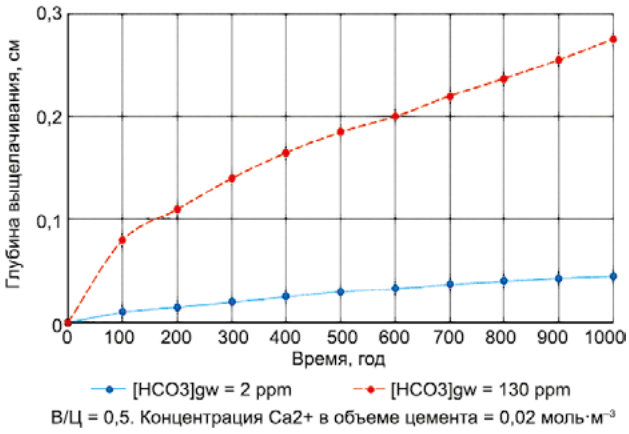

Рис. 8. Скорость карбонизации бетона (вяжущее — портландцемент) в различных геохимических средах

5. Оценено изменение pH в бетоне вследствие коррозионных процессов (рис. 9).

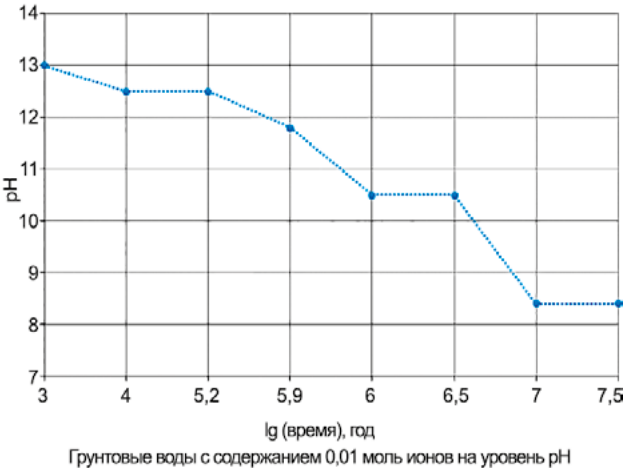

Рис. 9. Изменение pH в бетоне вследствие коррозионных процессов

Анализ долгосрочного влияния коррозии на бетон и, как следствие, на безопасность приповерхностного захоронения радиоактивных отходов приведены в работе [5]:

1. Выполнено определение скорости сульфатно-магниевой коррозии бетона. Для расчета глубины проникновения поврежденного слоя в зависимости от времени предложено уравнение:

$$x = 0,55C_s\left(C_{Mg} + C_{SO_4}\right)t, \qquad (1)$$

где x — глубина поврежденного слоя; C_s — процентное содержание C_3A в цементе; C_{Mg} — концентрация Mg^{2+} в объеме раствора (моль·см$^{-3}$); C_{SO4} — концентрация SO_4^{2-} в объеме раствора (моль·см$^{-3}$); t — время (лет).

Результаты расчета скорости деградации для разных типов бетона по уравнению (1) приведены в табл. 2.

Таблица 2. Оценка скорости деградации бетона при сульфато-магниевой коррозии

Mg^{2+} (1/мг)	SO_4^{2-} (1/мг)	Деградация бетона (м·год)		
		C_3A=5%	C_3A=8%	C_3A=15%
$3{,}8\cdot10^{-4}$	$6{,}5\cdot10^{-3}$	$2\cdot10^{-6}$	$4\cdot10^{-6}$	$7\cdot10^{-6}$
2,0·10-2	$4{,}0\cdot10^{-2}$	$3\cdot10^{-5}$	$5\cdot10^{-5}$	$1\cdot10^{-5}$
$3{,}7\cdot10^{-1}$	$1{,}4\cdot10^{0}$	$8\cdot10^{-4}$	$1\cdot10^{-4}$	$2\cdot10^{-4}$

2. Время воздействия хлоридной коррозии на арматуру рассчитывается по формуле:

$$t_c = \frac{129 x_c^{1,22}}{WCR\ \mathrm{Cl}^{0,42}}, \qquad (2)$$

где t_c — время до начала воздействия ионов хлорида (лет); x_c — толщина защитного слоя арматуры (дюйм); *WCR* — В/Ц отношение; Cl — концентрация хлорид-ионов (мг·л$^{-1}$).

В табл. 3 приведено время достижения защитного слоя арматуры для разных концентраций ионов хлорида.

Таблица 3. Время достижения защитного слоя арматуры для разных концентраций ионов хлорида

x_c (см)	Время до начала воздействия ионов хлорида на арматуру (год)								
	Cl=1/мг			Cl=100/мг			Cl=3000/мг		
	В/Ц			В/Ц			В/Ц		
	0,5	0,4	0,3	0,5	0,4	0,3	0,5	0,4	0,3
1	83	$1{,}0\cdot10^{2}$	$1{,}4\cdot10^{2}$	12	15	20	3	4	5
14	$2{,}1\cdot10^{3}$	$2{,}6\cdot10^{2}$	$3{,}5\cdot10^{3}$	$3{,}0\cdot10^{2}$	$3{,}7\cdot10^{2}$	$5{,}0\cdot10^{2}$	72	90	$1{,}2\cdot10^{2}$

3. Глубина выщелачивания кальция из бетона в зависимости от времени рассчитывается по формуле:

$$X = \left(2D_{ef} \frac{C_l - C_{gw}}{S} t \right)^{0,5}, \qquad (3)$$

где X — глубина проникновения выщелачивания (м); C_l — концентрация Ca^{2+} в поровой воде бетона (моль·м$^{-3}$); C_{gw} — концентрация Ca^{2+} в природной воде (моль·м$^{-3}$); S — концентрация кальция в твердой фазе бетона (моль·м$^{-3}$); D_{ef} — коэффициент диффузии Ca^{2+} в бетоне (м^2·с$^{-1}$); t — время (лет).

4. Глубина карбонизации рассчитывается по формуле:

$$X = \left(2D_{ef} \frac{C_{gw}}{C_s} t \right)^{0,5}, \qquad (4)$$

где X — глубина проникновения карбоната кальция (м); C_s — общая концентрация $Ca(OH)_2$ в твердой фазе (моль·м$^{-3}$).

Изменения коэффициентов распределения для цементосодержащих материалов вследствие их деградации представлены в табл. 4.

Таблица 4. Изменение коэффициентов распределения (м^3/кг) для цементосодержащих материалов вследствие их деградации [5]

Элемент	Свежий бетон pH 12,5–13,3	Частично деградированный бетон pH<12,5	Полностью деградированный бетон pH=11
Cl	$5\cdot10^{-3}$	$5\cdot10^{-3}$	$5\cdot10^{-4}$
K	0	$1\cdot10^{-4}$	$1\cdot10^{-4}$
Co	$1\cdot10^{-1}$	$1\cdot10^{-1}$	$1\cdot10^{-2}$
Ni	$1\cdot10^{-1}$	$1\cdot10^{-1}$	$1\cdot10^{-2}$
Se	0	0	0
Sr	$1\cdot10^{-3}$	$1\cdot10^{-3}$	$1\cdot10^{-3}$
Zr	5	5	1
Nb	1	1	$1\cdot10^{-1}$
Mo	0	0	0
Tc	$1\cdot10^{-3}$	$1\cdot10^{-3}$	0
Pb	$1\cdot10^{-1}$	10	$1\cdot10^{-2}$
$Ag(NaHCO_3)$	$1\cdot10^{-3}$	$1\cdot10^{-3}$	$1\cdot10^{-3}$
Sn	1	1	$1\cdot10^{-1}$
I	$1\cdot10^{-2}$	$1\cdot10^{-2}$	$1\cdot10^{-3}$
Cs	$2\cdot10^{-3}$	$2\cdot10^{-2}$	$2\cdot10^{-2}$
Pb	$5\cdot10^{-1}$	$5\cdot10^{-1}$	$5\cdot10^{-2}$
Po	0	0	0
Ra	$5\cdot10^{-2}$	$5\cdot10^{-2}$	$5\cdot10^{-2}$
Ac	1	1	$2\cdot10^{-1}$
Th	5	5	1
Pa	5	5	$1\cdot10_{-1}$
U	2	2	$1\cdot10^{-1}$
Np	5	5	$1\cdot10^{-1}$
Pu	5	5	1
Am	1	1	$2\cdot10^{-1}$
Cm	1	1	$2\cdot10^{-1}$

Количественные оценки изменения гидравлических параметров для цементосодержащих материалов вследствие деградации, выполненные в рамках Coordinated Research Programme on the Safety Assessment of Near Surface Radioactive

Waste Disposal Facilities (NSARS) по изменению гидравлических характеристик бетона в процессе захоронения РАО, приведены в табл. 5.

Таблица 5. Оценки изменения гидравлических параметров вследствие деградации бетона, выполненные в рамках NSARS [5]

Материал	Содержание влаги в образце	Остаточное содержание влаги в образце	Коэффициент фильтрации, м/с
Отходы, захоранираемые в траншее	0,30	0,07	$1 \cdot 10^{-5}$
Суглинок	0,30	0,07	$1 \cdot 10^{-7}$
Глина	0,39	0,11	$1 \cdot 10^{-10}$
Бетон (0–200 лет)	0,15	0,12	$1 \cdot 10^{-10}$
Бетон (200–500 лет)	0,15	0,12	$1 \cdot 10^{-8}$
Бетон (>500 лет)	0,38	0,07	$5 \cdot 10^{-5}$
Песок	0,38	0,07	$5 \cdot 10^{-5}$

Влияние выщелачивания кальция в значительной степени уменьшает прочность бетона. Образцы цементов с высокой (ЦЕМ-1) и низкой (ЦЕМ-V) концентрацией портландита и с составом, указанным в табл. 6, использовались в исследованиях по изменению прочности в условиях, моделирующих захоронение РАО в подземном ПЗРО.

Таблица 6. Химический состав образца портландцемента

Минерал	CaO	SiO_2	Al_2O_3	MgO	SO_3	Na_2O
Количество, %	62,3	20,8	4,4	3,8	2,9	0,39
Минерал	Fe_2O_3	K_2O	C_3Al	C_3S	C_2S	потери
Количество, %	2,4	1,28	8	53	20	0,66

Образцы бетона выдерживались в 6М растворе нитрата аммония при комнатной температуре. Продолжительность выщелачивания достигала 60 суток. Прочностные характеристики исследовались на специальном трехосном прессе как для высушенных, так и для влажных образцов цемента.

Это позволяло изучить стойкость образца к деформирующим напряжениям в условиях гидростатического сжатия, то есть в какой-то мере моделировало условия подземного захоронения РАО в глубоких геологических формациях, которые значительно отличаются от условий ППЗРО как температурным режимом, так и давлениями, оказываемыми на бетонные несущие конструкции. Однако результаты исследований можно рассматривать как предельные значения для пунктов захоронения, которые также могут размещаться на глубинах до 100 м.

Отмечено значительное вымывание кальция, концентрация которого сократилась за время эксперимента в 3,5 раза.

После выщелачивания прочность цемента на сжатие уменьшается на 90 % (с 54,1 до 5,1 МПа). Помимо этого, в четыре раза снижается стойкость к деформирующим напряжениям. Изучение образцов с помощью сканирующего электронного микроскопа показало появление большого количества пор в выщелоченном цементе, что в совокупности с химическими нарушениями состава бетона приводит к ухудшению его механических свойств [9].

Моделирование поведения системы «портландцемент — вода» на период в миллион лет показал сложную зависимость плотности и пористости от направления движения фронта выщелачивания: выделение кристаллов кальцита, брусита и эттрингита создает области пониженной плотности и пористости, в то время как растворение портландита создает области повышенной пористости.

Аналогичная картина может наблюдаться и в условиях приповерхностного захоронения, но области изменений будут значительно меньше по протяженности.

Показано, что поведение цементов ЦЕМ-I и ЦЕМ-V существенно отличается: в ЦЕМ-I идет более активное выпадение кристаллических фаз и более интенсивная, практически полная, остановка деградации бетона через 25 000 лет. Для ЦЕМ-V это происходит через 300 000 лет. Расчетная толщина измененного слоя может достичь одного метра (без учета эволюции пористости), а с учетом выпадения кристаллических фаз и уменьшения пористости — не превысит 0,4 м.

Наиболее неблагоприятным моментом для ППЗРО является попадание атмосферных осадков на участки повышенной пористости, что может привести к усилению локальной неоднородности выщелачивания на перекрытиях емкостей захоронения РАО и ускорению коррозионных процессов. Выпадение кристаллических фаз расклинивающего действия также может играть отрицательную роль и увеличивать пористость бетона.

Поскольку по данным табл. 2 через 500 лет коэффициенты фильтрации бетона и песка становятся равными, следует предположить, что активная пористость бетона станет равной полной пористости и будет иметь такое же значение, как у песка. Таким образом, через 500 лет в ППЗРО наступает полная деградация бетона, и он превращается в исходные компоненты

наполнителя, полностью потеряв свою защитную функцию.

Изменение коэффициентов диффузии нейтральных радиоактивных компонентов в бетоне в зависимости от пористости представлено на рис. 10.

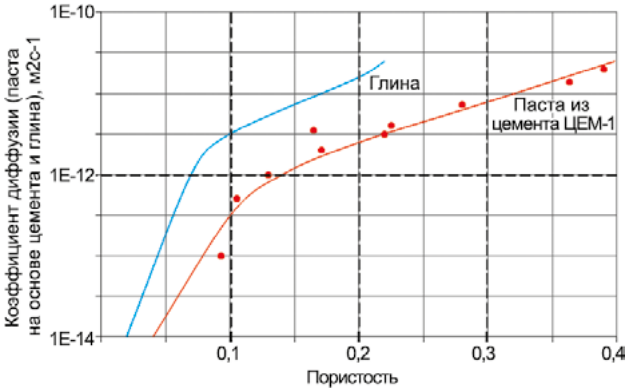

Рис. 10. Зависимость коэффициентов диффузии нейтральных радионуклидов от пористости в цементной пасте ЦЕМ-I (кружки и соответствующая кривая) и в реальных глинистых породах [8]

Поскольку конечными продуктами деградации бетона являются исходные компоненты (песок и гравий) [7], то механические и физико-химические характеристики будут стремиться к значениям, соответствующим этим природным материалам, т. е. коэффициенты распределения, диффузии, фильтрации и пористость будут соответствовать значениям этих параметров в песке и гравии ориентировочно через 500 лет.

В целом, рассматривая увеличение пористости и, соответственно, уменьшение плотности как неблагоприятные факторы, увеличивающие коэффициенты диффузии радионуклидов, авторы [8] для оценки этого негативного влияния предлагают использовать следующее уравнение:

$$D_d = D_0 + D_{\max}\left[1-\left(1+\left(\frac{d}{d_{cr}}\right)^n\right)^{-1}\right], \qquad (5)$$

где D_d, D_0 и $D_{\max}$ — коэффициенты диффузии в повреждаемом, исходном и полностью поврежденном барьерах соответственно, n — параметр ($n=5$), d и d_{cr} — текущее и критическое значения критерия повреждаемости $d_{cr}=0{,}4$. Таким образом, зная степень изменения пористости или проницаемости, можно рассчитать изменение коэффициентов диффузии.

Предположительно, максимальное значение этого параметра в разрушенном бетоне составляет около 80 % от его значения для радионуклида в воде [8].

В работе [8] приведена информация об усадке бетона при долговременном хранении РАО. Она оценивается величиной $(200—800)\cdot10^{-6}$ мм/мм, а для цементной массы — $(2000—6000)\cdot10^{-6}$ мм/мм.

Проектные решения предусматривают возможность усадки бетона в процессе эксплуатации ППЗРО и в период после закрытия, в результате чего там образуется некоторое свободное пространство, соответствующее степени усадки.

Выводы

В работе приведены итоги зарубежных исследований по изучению изменений свойств материалов на основе цемента с целью оценки возможностей их использования в качестве инженерных барьеров для ППЗРО нижнего и среднего уровней активности (по классификации МАГАТЭ).

Полученные результаты показывают стойкость бетонов на оценочных сроках эксплуатационного и постэксплуатационного этапов жизненного цикла приповерхностного пункта захоронения РАО.

Литература

1. *Енговатов Е. А.* Защитные бетоны для АЭС нового поколения // Вестник МГСУ. 2011. № 8. С. 320—324.

2. Performance of engineered barrier materials in near surface disposal facilities for radioactive waste. Results of a co-ordinated research project. IAEA-TECDOC-1255. IAEA, Vienna, 2001.

3. Long term behaviour of low and intermediate level waste packages under repository conditions. Results of a co-ordinated research project 1997—2002. IAEA-TECDOC-1397. IAEA, Vienna, 2004.

4. The Behaviours of Cementitious Materials in Long Term Storage and Disposal of Radioactive Waste. Results of a Coordinated Research Project. IAEA-TECDOC-1701. IAEA, Vienna, 2013.

5. Safety Assessment Methodologies for Near Surface Disposal Facilities. Results of a coordinated research project. IAEA, Vienna, 2004.

6. *Walton J. C., Plansky L. E., Smith R. W.* Models for Estimation of Service Life of Concrete Barriers in Low-level Radioactive Waste Disposal. NUREG/CR-5542, EGG-2597, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls. USA, Idaho, 1990.

7. Coordinated Research Program on the Safety Assessment of Near Surface Radioactive Waste Disposal Facilities. Specification for Test Case 2c. IAEA, NSARS, 1995.

8. *Samson E., Sarkar S., Kossom D. S.* Mechanical damage review. In: Review of Mechanistic Understanding

and Modeling and Uncertainty Analysis Methods for Predicting Cementitious Barrier Performance, CBP-TR-2009-002, Rev. 0. Washington, 2009.

9. *Kefei L.* Durability Design of Concrete Structures: Phenomena, Modeling, and Practice. Singapore, John Wiley & Sons, Inc., 2016. DOI: 10.1002/9781118910108.

Информация об авторах

Бамборин Михаил Юрьевич, кандидат технических наук, директор департамента лицензирования и разрешительной деятельности, ФГУП «Национальный оператор по обращению с радиоактивными отходами» (119017, Москва, Пятницкая ул., д. 49А, к. 2), e-mail: MYBamborin@norao.ru.

Кузьмин Евгений Викторович, профессор, доктор технических наук, главный специалист, ФГУП «Национальный оператор по обращению с радиоактивными отходами» (119017, Москва, Пятницкая ул., д. 49А, к. 2), e-mail: EVKuzmin@norao.ru.

Спешилов Сергей Леонидович, доктор технических наук, главный геолог, ФГУП «Национальный оператор по обращению с радиоактивными отходами» (119017, Москва, Пятницкая ул., д. 49А, к. 2), e-mail: SLSpeshilov@norao.ru.

Хахунова Мария Михайловна, кандидат технических наук, эксперт, ФГУП «Национальный оператор по обращению с радиоактивными отходами» (119017, Москва, Пятницкая ул., д. 49А, к. 2), e-mail: MMHahunova@norao.ru.

Каманин Антон Николаевич, начальник отдела, ФГУП «Национальный оператор по обращению с радиоактивными отходами» (119017, Москва, Пятницкая ул., д. 49А, к. 2), e-mail: ANKamanin@norao.ru.

Минин Андрей Васильевич, заместитель генерального директора по лицензированию и разрешительной деятельности, ФГУП «Национальный оператор по обращению с радиоактивными отходами» (119017, Москва, Пятницкая ул., д. 49А, к. 2), e-mail: AVMinin@norao.ru.

Барышев Александр Владимирович, заместитель генерального директора по эксплуатации, ФГУП «Национальный оператор по обращению с радиоактивными отходами» (119017, Москва, Пятницкая ул., д. 49А, к. 2), e-mail: AVBaryshev@norao.ru.

Собко Александр Анатольевич, генеральный директор, АО «РАОПРОЕКТ» (192019, Санкт-Петербург, наб. Обводного канала, д. 14), e-mail: AASobko@raoproekt.ru.

Доильницына Вера Владимировна, кандидат технических наук, главный инженер проекта, АО «РАОПРОЕКТ» (192019, Санкт-Петербург, наб. Обводного канала, д. 14), e-mail: VVDoilnitcyna@raoproekt.ru.

Библиографическое описание статьи

Бамборин М. Ю., Кузьмин Е. В., Спешилов С. Л., Хахунова М. М., Каманин А. Н., Минин А. В., Барышев А. В., Собко А. А., Доильницына В. В. Обзор зарубежного опыта и результаты испытаний материалов на основе цемента для обеспечения долговременной безопасности хранилищ радиоактивных отходов // Радиоактивные отходы. 2023. № 4 (25). С. 62—71. DOI: 10.25283/2587-9707-2023-4-62-71.

OVERVIEW OF INTERNATIONAL EXPERIENCE AND TESTS FOCUSED ON CEMENT-BASED MATERIALS PROPOSED TO PROVIDE THE LONG TERM SAFETY OF RADIOACTIVE WASTE REPOSITORIES

Bamborin M. Yu.[1], Kuzmin E. V.[1], Speshilov S. L.[1], Hahunova M. M.[1], Kamanin A. N.[1], Minin A. V.[1], Baryshev A. V.[1], Sobko A. A.[2], Doilnitcyna V. V.[2]

[1]National Operator for Radioactive Waste management FSUE, Moscow, Russia

[2]JSC "RAOPROEKT", Saint Petersburg, Russia

Article received on July 18, 2023

In-depth analysis of proposed materials should always precede the construction of purpose designed facilities. These studies primarily demonstrating their feasibility, performance, service life, when applied in aggressive environments, are basically seeking to validate the timeframes of their safe operation. This article analyses the studies that have been implemented at the Canadian Nuclear Research Center (Chalk River Laboratories), at a radioactive waste storage

facility at the Dukovany NPP site in the Czech Republic, at the El Cabril radioactive waste storage facility (E1 Carbil facility) in Spain, as well as the results obtained within the framework of the international CRP project.

Keywords: *radioactive waste management, radioactive waste, near-surface radioactive waste disposal facilities, radioactive waste disposal, concrete, cement-containing materials, degradation of materials.*

References

1. Yengovatov E. A. Zashchitnyye betony dlya AES novogo pokoleniya [Shielding Concretes of New Generation NPPS]. *Vestnik MGSU — Vestnik MGSU,* 2011, no. 8, pp. 320—324.
2. Performance of engineered barrier materials in near surface disposal facilities for radioactive waste. Results of a co-ordinated research project. IAEA-TECDOC-1255. IAEA, Vienna, 2001.
3. Long term behaviour of low and intermediate level waste packages under repository conditions. Results of a co-ordinated research project 1997—2002. IAEA-TECDOC-1397. IAEA, Vienna, 2004.
4. The Behaviours of Cementitious Materials in Long Term Storage and Disposal of Radioactive Waste. Results of a Coordinated Research Project. IAEA-TECDOC-1701. IAEA, Vienna, 2013.
5. Safety Assessment Methodologies for Near Surface Disposal Facilities. Results of a coordinated research project. IAEA, Vienna, 2004.
6. Walton J. C., Plansky L. E., Smith R. W. Models for Estimation of Service Life of Concrete Barriers in Low-level Radioactive Waste Disposal. NUREG/CR-5542, EGG-2597, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls. USA, Idaho, 1990.
7. Coordinated Research Program on the Safety Assessment of Near Surface Radioactive Waste Disposal Facilities. Specification for Test Case 2c. IAEA, NSARS, 1995.
8. Samson E., Sarkar S., Kossom D. S. Mechanical damage review. In: Review of Mechanistic Understanding and Modeling and Uncertainty Analysis Methods for Predicting Cementitious Barrier Performance, CBP-TR-2009-002, Rev. 0. Washington, 2009.
9. Kefei L. *Durability Design of Concrete Structures: Phenomena, Modeling, and Practice.* Singapore, John Wiley & Sons, Inc. Publ., 2016. DOI: 10.1002/9781118910108.

Information about the authors

Bamborin Mikhail Yurievich, PhD, Director of the Licensing and Permitting Activities Department, National Operator for Radioactive Waste management FSUE (49A, bld. 2, Pyatnitskaya st., Moscow, 119017, Russia), e-mail: MYBamborin@norao.ru.

Kuzmin Evgeny Viktorovich, professor, Doctor of Science, Chief Specialist, National Operator for Radioactive Waste management FSUE (49A, bld. 2, Pyatnitskaya st., Moscow, 119017, Russia), e-mail: EVKuzmin@norao.ru.

Speshilov Sergey Leonidovich, Doctor of Technical Sciences, Chief Geologist, National Operator for Radioactive Waste management FSUE (49A, bld. 2, Pyatnitskaya st., Moscow, 119017, Russia), e-mail: SLSpeshilov@norao.ru.

Hahunova Maria Mikhailovna, PhD, expert, National Operator for Radioactive Waste management FSUE (49A, bld. 2, Pyatnitskaya st., Moscow, 119017, Russia), e-mail: MMHahunova@norao.ru.

Kamanin Anton Nikolaevich, Section head, National Operator for Radioactive Waste management FSUE (49A, bld. 2, Pyatnitskaya st., Moscow, 119017, Russia), e-mail: ANKamanin@norao.ru.

Minin Andrey Vasilievich, Deputy General Director for Licensing and Permitting Activities, National Operator for Radioactive Waste management FSUE (49A, bld. 2, Pyatnitskaya st., Moscow, 119017, Russia), e-mail: AVMinin@norao.ru.

Baryshev Aleksandr Vladimirovich, Deputy General Director for Operations, National Operator for Radioactive Waste management FSUE (49A, bld. 2, Pyatnitskaya st., Moscow, 119017, Russia), e-mail: AVBaryshev@norao.ru.

Sobko Aleksandr Anatolyevich, General Director, JSC "RAOPROEKT" (14, Naberezhnaya Obvodny Kanal, Saint Petersburg, 192019, Russia), e-mail: AASobko@raoproekt.ru.

Doilnitcyna Vera Vladimirovna, PhD, Chief Project Engineer, JSC "RAOPROEKT" (14, Naberezhnaya Obvodny Kanal, Saint Petersburg, 192019, Russia), e-mail: VVDoilnitcyna@raoproekt.ru.

Bibliographic description

Bamborin M. Yu., Kuzmin E. V., Speshilov S. L., Hahunova M. M., Kamanin A. N., Minin A. V., Baryshev A. V., Sobko A. A., Doilnitcyna V. V. Overview of international experience and tests focused on cement-based materials proposed to provide the long-term safety of radioactive waste repositories. *Radioactive Waste,* 2023, no. 4 (25), pp. 62—71. DOI: 10.25283/2587-9707-2023-4-62-71. (In Russian).