

## ВИКОРИСТАННЯ БЕТЕЛУ-М ДЛЯ ІММОБІЛІЗАЦІЇ РІДКИХ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ

В.Р. Сердюк, О.В. Христич

### Вступ

Пошук альтернативних джерел життєзабезпечення людства вкотре звертається до енергії атома, як одного з перспективних світових енергоресурсів. Атомна енергетика, як показує Зарубіжний і Вітчизняний досвід, є головною складовою енергосистеми будь-якої сучасної розвиненої держави. Україна входить до першої десятки країн світу за кількістю діючих енергоблоків на атомних електростанціях (АЕС). Питома вага АЕС в загальному обсязі Вітчизняних виробників електроенергії сягає 45 %, а тому експлуатація існуючих енергоблоків і будівництво нових є необхідністю сучасної енергозалежної економіки нашої держави.

Відомо, що процес експлуатації АЕС супроводжується щорічним накопиченням різноманітних радіоактивних відходів, які тимчасово зберігаються на самих станціях. Так за даними статистичних досліджень [1, 2], в результаті виробничої діяльності п'яти АЕС на їх територіях накопичилось більше 40 тисяч м<sup>3</sup> твердих і близько 35 тисяч м<sup>3</sup> рідких радіоактивних відходів. Крім того, стрімкий розвиток науково-технічного прогресу, призвів до широкого використання радіонуклідів природного і штучного походження в науково-дослідній діяльності, промисловості, медицині, сільгоспвиробництві, оборонній та інших галузях народного господарства. Внаслідок чого також відбувається нагромадження радіоактивних відходів (РАВ). Проблемою №1 для України також є техногенна катастрофа на Чорнобильській АЕС, екологічні і економічні наслідки якої державою і дотепер остаточно не ліквідовані. Таким чином, наряду з іншими економічними проблемами і чинниками для України гостро постає проблема техногенної безпеки – збереження і захоронення РАВ.

### Постановка задач досліджень і шляхи їх вирішення

Перед відправкою РАВ з підприємства-виробника на пункти довгострокового зберігання або захоронення, їх переводять в тверду монолітну форму для отримання нормованих фізико-механічних параметрів, які повинні відповідати вимогам безпечного їх транспортування. Загальна технологічна схема переробки РАВ включає збір, сортування, кондиціонування і переробку токсичних продуктів з послідуною їх іммобілізацією у спеціальні матричні матеріали для набування відходами твердого агрегатного стану. Враховуючи фізико-хімічну природу цих нестабільних токсичних матеріалів, науковцями проводяться пошук і розробка ефективних технологій по переведенню таких техногенних відходів в твердий стан для забезпечення заданих параметрів фізико-механічної стійкості від впливів зовнішніх руйнівних факторів.

Для діючих АЕС України особливо гостро стоїть проблема зберігання і переробки рідких РАВ, яка зумовлена їх складним хімічним складом і нестабільним агрегатним станом [3,4]. Головним завданням іммобілізації рідких РАВ є концентрація відходів в максимально-допустимих об'ємах, фізико-хімічна іммобілізація самих радіонуклідів у складі елементів матриці, отримання монолітних форм кінцевого виробу здатних протистояти будь-яким фізико-механічним, хімічним і біологічним впливам для запобігання можливого виходу шкідливих речовин в навколишнє середовище. Найбільш поширеними методами і способами іммобілізації є бітумізація, цементация, силікатизация і полімеризация. Використання того чи іншого методу залежить від агрегатного стану відходів, фізико-механічних параметрів стабільності кінцевого виробу, який підлягає подальшим транспортуванню і зберіганню в сховищі. Такі спеціальні технології потребують значних коштів і крім того призводять до збільшення об'ємів шкідливих відходів. А тому перед науковцями гостро постає завдання розробки і дослідження нових ефективних сорбційно-матричних матеріалів для іммобілізації рідких РАВ.

До радіоактивних відходів відносяться матеріали, вироби, біологічні об'єкти, розчини, які вміщують радіоактивні елементи в кількості, що перевищує допустимі концентрації встановлені відповідними нормативними документами. Усі РАВ в залежності від агрегатного стану, потужності дози випромінювання на відстані 10 см від їх поверхні і величини активності розчинів

розподіляються на відповідні категорії і групи (рис. 1).

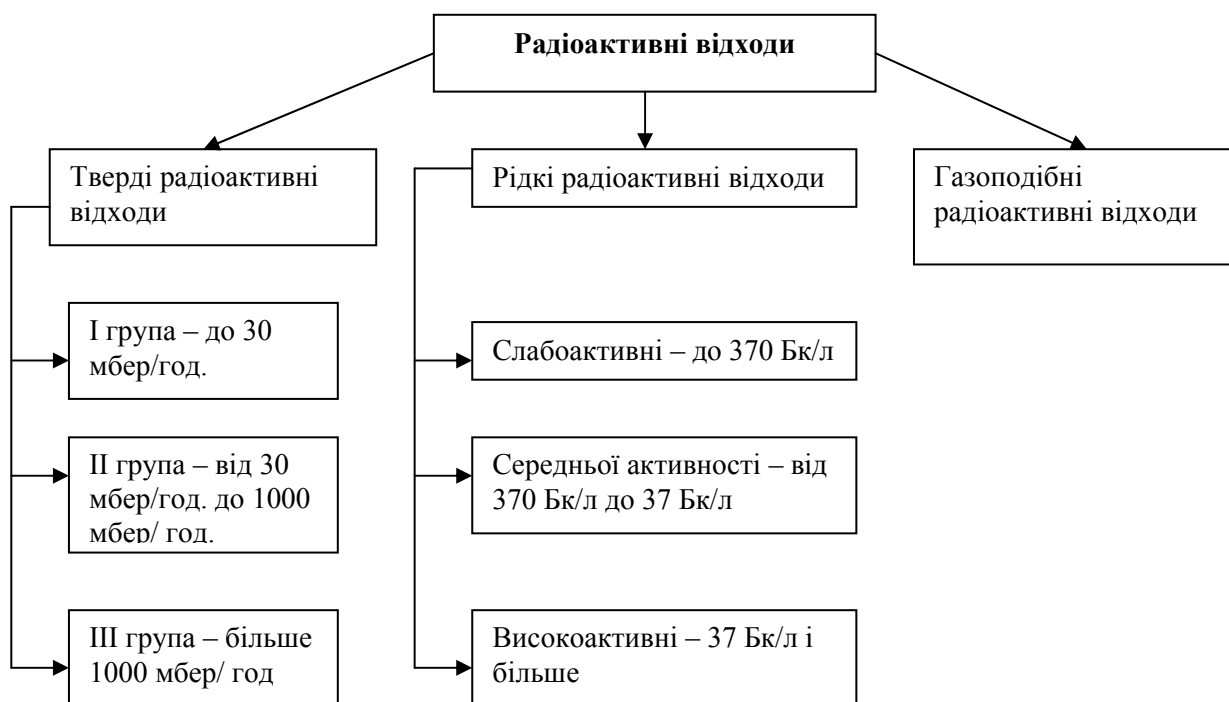


Рис. 1. Загальна класифікація радіоактивних відходів [1, 2].

З приведеної на рисунку 1 загальної класифікації РАВ, особливу увагу привертають рідкі в тому числі слабоактивні і середньої активності. В загальному підсумку нагромадження цих відходів, питома вага вказаних різновидів складає 65 –75 %. Крім того терміни їх зберігання диктуються природою довгоживучих радіонуклідів, які входять до їх складу. Тому і використання матричних матеріалів для іммобілізації рідких РАВ повинно забезпечувати значну довговічність їх безпечного захоронення.

Серед різновиду існуючих технологій переробки і іммобілізації рідких РАВ однією з найбільш поширених є цементация, тобто – використання матричних матеріалів на основі мінеральних в'язучих [2, 3]. Так звана технологія цементации набула популярності завдяки використанню традиційних сировинних матеріалів та обладнання і не потребує значних витрат коштів. В Київському науково-дослідному інституті в'язучих матеріалів ім. В.Д. Глуховського на основі шлаколузних в'язучих розроблені екобетони для іммобілізації РАВ [4, 5]. Отримані вченими наукові результати відповідають вимогам нормованих параметрів твердого агрегатного стану замонолічених відходів.

Спеціальні матричні матеріали на основі мінеральних в'язучих в переважній більшості виготовляються у вигляді сухих сумішей, що в свою чергу дозволяє застосування традиційних технологій їх виготовлення, а також використання існуючого обладнання і технологічних способів приготування робочих розчинів. Основними проблемами при розробці ефективних сорбційно-матричних матеріалів є жорсткі технічні параметри кінцевого продукту іммобілізації, які включають:

- забезпечення довговічності зберігання монолітної форми затверділих РАВ в фізично-стабільному стані протягом заданих термінів розпаду радіонуклідів;
- забезпечення корозійної стійкості твердих РАВ внаслідок можливих зовнішніх впливів фізичних, хімічних, механічних і біологічних факторів;
- отримання твердих форм РАВ із заданими параметрами радіаційної стійкості за умови зберігання фізико-механічних характеристик виробів;
- мінімізація об'ємів затверділих РАВ, які в подальшому підлягають контейнеризації і транспортуванню до сховищ;
- доступність сировинних матеріалів, придатних до фізико-хімічних взаємодій з речовинами РАВ і використання традиційних технологій для здійснення процесу іммобілізації [2-3].

Вченими Вінницького національного технічного університету (ВНТУ) розроблених новий різновид спеціальних бетонів – бетон електропровідний металонасичений (бетел-м). Бетел-м був отриманий як струмопровідний композиційний матеріал з широким спектром поліфункціональних властивостей. Основними серед них є здатність акумулювати в структурі виробів теплову енергію, отримання напівпровідників для виготовлення елементів катодного захисту металоконструкцій підземних інженерних мереж і комунікацій, створення радіаційноекрануючих покриттів для захисту біологічних об'єктів, будівництво варіотропних конструкцій захисту від шкідливих впливів електромагнітних випромінювань. Основну спеціальну здатність бетелу-м проводити електричний струм забезпечило використання наповнювачем металевих порошоків. На електрофізичні властивості матеріалу в цілому впливатимуть види металевого наповнювача, вміст його в складу композиту, наявність механічного чи корозійного контактів між складовими компонентами структури, рівномірність розподілу провідникового компоненту та способи контактів електричного ланцюга в об'ємі зразка. Завдяки можливості штучного синтезу фазового складу новоутворень металонасиченого цементного каменю в структурі бетелу-м досягнуто необхідних показників властивостей матеріалу по струмопровідності, розчинності, корозії бетону і фізико-механічним характеристикам.

На основі бетелу-м отримано новий бетон з підвищеними радіаційно-захисними властивостями порівняно із традиційними спеціальними матеріалами при співрозмірній густині. Розроблено технологічні основи виготовлення монолітного і збірного спеціального покриття огорожуючих конструкцій всередині приміщень будівель і споруд з металонасиченого композиту для біологічного захисту від іонізуючих випромінювань. Міцність на стиск зразків дорівнює 10 - 5 МПа, лінійний коефіцієнт послаблення бетелу-м для енергії гамма-квантів 60 - 1400 кеВ дорівнює 0.55 - 0.192 см<sup>-1</sup>. Завдяки набуванню ним струмопровідних властивостей товщина екрану радіаційного захисту від фотонних випромінювань зменшується у 1.8 - 2.4 рази порівняно із звичайним бетоном при співрозмірній густині. отриманий новий бетон з відходів промисловості, здатний поглинати проникаючі потоки іонізуючих випромінювань до заданих меж [6, 7].

За своєю структурою бетел-м відноситься до дрібнозернистих бетонів з дисперсними наповнювачами. У взаємнопрониклій структурі цього композиційного матеріалу буде зберігатися безперервність двох основних компонентів – провідника і мінерального в'язучого. Середній розмір частинок металевого наповнювача складає  $2 \times 10^{-5}$  м, що відповідає питомій поверхні  $1060 \div 1260$  м<sup>2</sup>/кг. Використання різної кількості діелектричного кварцевого наповнювача (30 ÷ 46 % мас) в структурі виробів з металонасиченого композиційного матеріалу диктувалось їхніми технічними вимогами щодо питомого опору, середньої щільності, механічної стійкості і довговічності експлуатації. Разом з тим, завдяки наявності на поверхні металевого наповнювача (дрібнодисперсні відходи металообробки) оксидних плівок, що утворились внаслідок механічної обробки металів, в структурі зразків виявлено підвищений вміст хімічно-зв'язаної води [6, 7]. Отже отримані метало-цементні дисперсні системи здатні зв'язувати в своїй структурі підвищену кількість води, що і є актуальним при мінімізації об'ємів іммобілізованих рідких РАВ в структурі матричних матеріалів.

Згідно з приведеними в нормативному документі – ГОСТ 51883-2002 вимогами, композиційні матеріали з іммобілізованими в матриці мінеральних в'язучих рідкими РАВ повинні відповідати наступним технологічним параметрам: міцність при стиску  $\geq 5,0$  МПа; водостійкість  $\geq 90$  діб; показник вилуговування по Cs  $\leq 1 \times 10^{-3}$  г/см<sup>2</sup>×діб. Крім того важливим параметром є показник збільшення остаточного об'єму замоноличених відходів. З метою обґрунтування можливості використання дрібнозернистих металонасичених сухих сумішей в технології іммобілізації рідких радіоактивних відходів нами проведено комплекс експериментальних досліджень. Графічна інтерпретація результатів приведена на рисунках 2 і 3.

На рисунку 2 приведені результати експериментальних досліджень впливу кількості металевого наповнювача у складі суміші на механічні та фізичні параметри зразків. Металевий наповнювач – шлами сталі ШХ-15 характеризуються високою гідрофільністю, а отже і водопороби металонасичених розчинів із заданими реологічними параметрами зростатимуть по мірі збільшення у складі суміші важкого наповнювача. Збільшення кількості води замішування негативно відобразатиметься на механічних характеристиках зразків і разом з тим позитивно впливатиме на кількість фізично і хімічно зв'язаної рідкої фази в структурі тіла дослідного зразка.

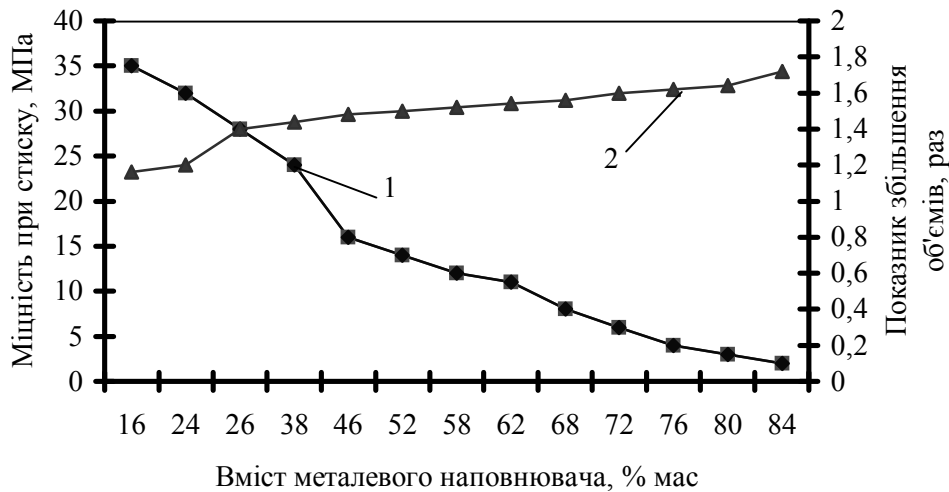


Рис. 2. Динаміка зміни фізико-механічних характеристик зразків литих металонасичених сумішей (рухливість П12): 1 – міцність при стиску; 2 – показник збільшення об'ємів

Приведені на рис.2 результати досліджень підтверджують можливість використання бетелу-м для переведення в твердий агрегатний стан рідких токсичних відходів. Так при кількості води замішування до 48% мас робочого розчину отримано зразки з середнім значенням міцності 5.2 МПа, при цьому показник збільшення об'ємів дорівнює 1.48. Після замішування сухих сумішей водою, в системі з'являються електроліти і агрегування складових компонентів відбувається також за рахунок стиснення подвійного електричного шару іонів на поверхні флокул або зниження потенціалу частинок. Наявність тонкої затверділої гелевої плівки в контактах металевго наповнювача забезпечує набування композиційним матеріалом нелінійних властивостей.

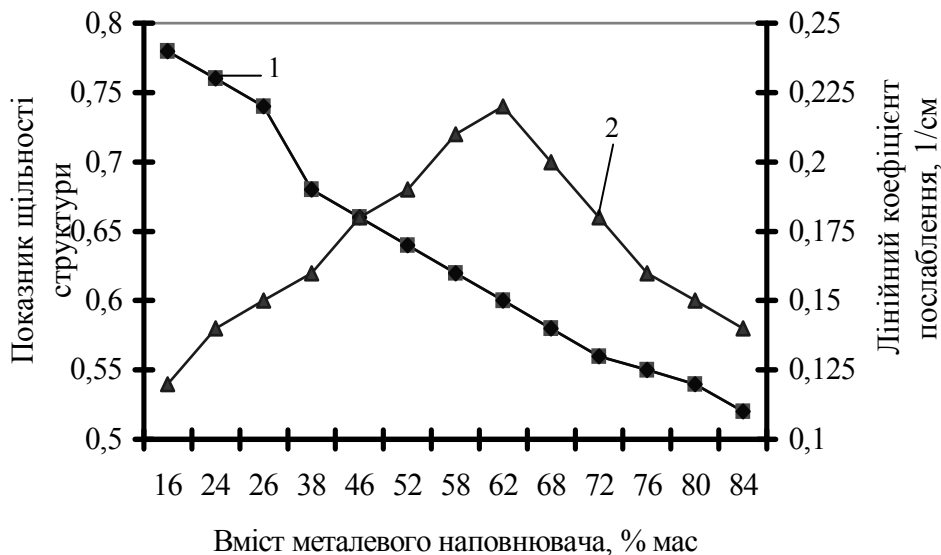


Рис. 3. Взаємозв'язок кількісних і якісних параметрів радіаційно-захисних властивостей дослідних зразків: 1 – показник щільності структури; 2 – лінійний коефіцієнт послаблення гамма-випромінювань (E=121 кЕв).

Графічна інтерпретація взаємозв'язку між рецептурними і фізичними та радіаційнозахисними властивостями дослідних зразків показує, що бетел-м може

використовуватись для зниження потужності навколишнього випромінювання затверділого виробу з іммобілізованими РАВ. Так ступінь наповнення матричних матеріалів рідкими токсичними відходами окрім нормативних вимог, приведених в ГОСТ 51883-2002, залежить і від сумарної дози опромінення на відстані 1.0 м від контейнера із замоноліченими речовинами. В даному випадку послаблення дозових навантажень відбуватиметься за рахунок внутрішнього екранування потоків радіації в структурі композиційного матеріалу. Значення лінійного коефіцієнту послаблення гамма-випромінювань з енергією до 121 кЕв (слабо і середньоактивні РАВ) дорівнює 0,2 для зразків, міцність яких перевищує 5МПа, хоча показник щільності структури не перевищує значення 0,6. Така невідповідність між щільністю і радіаційно-захисними властивостями пояснюється перш за все поліфункціональними властивостями бетелу-м, матеріали досліджень яких приведені в роботі [7, 8].

Для подальшого продовження досліджень за напрямком використання бетелу-м в якості матричного матеріалу в технології іммобілізації радіоактивних відходів необхідно розробити модельні склади РАВ з підвищеним вмістом електролітів, без вмісту радіоактивних елементів. Насьогодні вже розроблено комплексну програму пошукових досліджень, яка передбачає дотримання вимог ГОСТ 51883-2002, ГОСТ 29114-91 та стандарту ISO 6961-82, щодо композиційних матеріалів з іммобілізованими рідкими РАВ.

### Висновки

- Експериментальними дослідженнями встановлено, що використання сухих металонасичених сумішей дозволяє замонолітити і перевести в твердий агрегатний стан до 50 % мас рідкої речовини. При цьому забезпечуються задані параметри механічної стійкості ( $\geq 5$  МПа), екрануючої здатності радіоактивних випромінювань і незначне (до 50 %) збільшення об'ємів монолітної маси компаунду. Отримані результати досліджень підтверджують доцільність проведення подальших наукових робіт по розробці нового виду матричних матеріалів на основі бетелу-м для іммобілізації рідких токсичних відходів.

### Список літератури

1. Корчагин П.А. Обращение с радиоактивными отходами в Украине: опыт, проблемы, перспективы / П.А. Корчагин, П.В. Замостьян, В.М. Шестопалов – Киев. – 2000. – 178 с.
2. Обращение с радиоактивными отходами : сборник трудов IV Международной научно-технической конференции 26-28 июня 2001 г. – Москва. – 2000. – 387 с.
3. Андронов О.Б. Очистка жидких радиоактивных отходов: обзор методов и технологий / О.Б. Андронов, О.Л. Стрихарь. – Чернобыль, 2001. – 356 с.
4. Технология компактирования жидких радиоактивных отходов : сб. тезисов Международной конференции “Чернобыль-96”/ П.В. Кривенко, Л.В. Горовой, Г.В. Коцков и др. – К.: Зеленый мыс, 1996. – С. 147.
5. Alkaline cement based concretes and compounds : second international conference “Alkaline cements and concretes”/ Oleg N. Petropavlovskii. – Kyiv. Ukraine. – ORANTA Ltd, 1999. – P. 483–505.
6. Сердюк В.Р. Новий різновид спеціальних бетонів – бетел-м / В.Р. Сердюк, О.В. Христич // Сучасні технології, матеріали і конструкції в будівництві. – 2004. – №1. – С. 18-27.
7. Сердюк В.Р. Фізико-хімічні особливості формування структури електропровідних бетонів / В.Р. Сердюк, М.С. Лемешев, О.В. Христич // Вісник Вінницького політехнічного інституту. – 1997. – №2. – С. 5-9.
8. Христич О.В. Формування мікроструктури бетонів для захисту від іонізуючого випромінювання / О.В. Христич, М.С. Лемешев // Вісник Вінницького політехнічного інституту. – 1998. – №2. – С. 18-23.

**Сердюк Василь Романович** – д.т.н., зав. кафедри менеджменту будівництва, охорони праці та безпеки життєдіяльності Вінницького національного технічного університету.

**Христич Олександр Володимирович** – к.т.н., доцент кафедри менеджменту будівництва, охорони праці та безпеки життєдіяльності Вінницького національного технічного університету.