

ЭКОЛОГИЧЕСКИ БЕЗОПАСНАЯ И БЕЗОТХОДНАЯ ТЕХНОЛОГИЯ КОНДИЦИОНИРОВАНИЯ И УТИЛИЗАЦИИ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Ястребинский Р. Н., Евтушенко Е. И., Воронов Д. В., Четвериков Н. А.

ФГБОУ ВПО «Белгородский государственный технологический университет им. В. Г. Шухова», Белгород, Россия (308012, Белгород, ул. Костюкова, 46), e-mail: yrndo@mail.ru

Показана необходимость разработки целостной концепции переработки, хранения, транспортировки и захоронения радиоактивных отходов. Авторами разработаны способы переработки и утилизации радиоактивных отходов посредством их включения в бетонные матрицы с железооксидными наполнителями с последующей контейнеризацией низкоактивных твердых радиоактивных отходов. Полученные по данной технологии бетонные композиты обладают прочностью на сжатие 120 кг/см², плотностью 2750 кг/м³ и снижением мощности экспозиционной дозы не менее 2. Среднегодовая выщелачиваемость радионуклидов составляет менее 10⁻⁴ (г/см²)/сут при альфа-загрязненности поверхности материала не более 2 (расп/см)/мин. Захоронение компактированных низкоактивных отходов проводится в защитных контейнерах плотностью 3800 кг/м³ и прочностью на сжатие не менее 160 МПа. При этом линейный коэффициент ослабления γ -излучения по ¹³⁷Cs (E=0,66 МэВ) составляет 0,26 см⁻¹, а по ⁶⁰Co (E=1,2 МэВ) 0,12 см⁻¹. Изучены механизмы и кинетика взаимодействия высокоэнергетических пучков различной физической природы на структуру и свойства полученных материалов. Подтверждена адекватность разработанных физических моделей геометрии радиационной защиты контейнеров с консервированными в них твердыми радиоактивными отходами.

Ключевые слова: радиоактивные отходы, переработка, железооксидный наполнитель, бетонные матрицы, контейнеры, излучение, радиационная защита.

ECOLOGICALLY SAFE AND WASTE-FREE TECHNOLOGY OF CONDITIONING AND UTILIZATION OF RADIOACTIVE WASTE

Yastrebinsky R. N., Evtushenko E. I., Voronov D. V., Chetverikov N. A.

Belgorod Shukhov State Technology University, Belgorod, Russia (308012, Belgorod, street Kostukova, 46), e-mail: yrndo@mail.ru

Need of development of the complete concept of processing, storage, transportation and burial of radioactive waste is shown. Authors developed ways of processing and utilization of radioactive waste by means of their inclusion in concrete matrixes with zhelezooksidny fillers with the subsequent konteynerization of low-active solid radioactive waste. The concrete composites received on this technology possess durability on compression of 120 kg/cm², with a density of 2750 kg/m³ and decrease in power of an exposition dose not less than 2. The average annual extent of washing away of radionuclides makes less than 10⁻⁴ (g/cm²)/days at alpha impurity of a surface of a material no more than 2 (rasp/cm)/min. Burial of the compacted low-active waste is carried out in protective containers with a density of 3800 kg/m³ and durability on compression not less than 160 MPa. Thus the linear coefficient of easing gamma-radiation ¹³⁷Cs (E=0,66 MeV) makes 0,26 cm⁻¹, and on ⁶⁰Co (E=1,2 MeV) 0,12 cm⁻¹. Mechanisms and kinetics of interaction of high-energy bunches of the various physical nature on structure and properties of the received materials are studied. Adequacy of the developed physical models of geometry of radiation protection of containers with the solid radioactive waste preserved in them is confirmed.

Keywords: radioactive waste, processing, zhelezooksidny filler, concrete matrixes, containers, radiation, radiation protection.

Введение

Развитие атомной энергетики требует разработки и внедрения целостной системы по обращению с радиоактивными отходами (РАО), основой которой является концепция, охватывающая вопросы их переработки, хранения, транспортировки и захоронения. Конечной целью концепции является отработка технологий и оборудования для переработки отходов, проектов их безопасного хранения и захоронения, а также руководство

нормативной документацией по обращению с РАО. На территории АЭС РФ хранится около 300 тыс. м³ РАО общей активностью порядка 45 тыс. Ки. В настоящее время ни одна АЭС РФ не имеет полного комплекса установок по кондиционированию РАО. На многих АЭС РАО хранят без переработки. В связи с этим в настоящее время наиболее актуально создание единой технологии кондиционирования радиоактивных отходов, обеспечивающей химическую, тепловую и радиационную устойчивость, пониженную радиационную активность, взрывобезопасность, механическую прочность получаемого продукта, отсутствие газовыделения, а также высокие экономические показатели.

Для сбора, переработки и долговременной локализации радиоактивных отходов создана централизованная система, включающая территориальные спецкомбинаты и пункты захоронения (ПЗРО) [6]. Однако для реакторов типа РБМК АЭС учет поступающих на долговременное хранение отходов, оценка качества их подготовки и захоронения на большинстве ПЗРО России не отвечают современным научно-техническим требованиям. В связи с этим возникает необходимость разработки новых научно-технических подходов не просто к захоронению твердых радиоактивных отходов (ТРО), а переводу их из класса повышенной радиоактивности к малоактивным или даже нерадиоактивным объектам путем их консервирования в универсальные безопасные высокопрочные контейнеры.

Анализ отечественного и зарубежного опыта исследований показывает, что в качестве радиационно-защитных материалов используется защита, состоящая из тяжелого бетона (Россия), фибробетона марки «Сожефибр», «Синрок» (Франция), «Сюрепак» фирмы «Вестингаузе» (США) [5,9]. Известные материалы обладают низкой механической прочностью и радиационной стойкостью [8]. Предлагаемые материалы позволяют устранить их недостатки и значительно повысить качество и долговечность защитных экранов.

Авторами предлагается использование безопасной технологии кондиционирования, переработки и утилизации РАО посредством включения их в бетонные матрицы с железоксидными наполнителями с последующей контейнеризацией твердых радиоактивных отходов.

Цель исследования

Разработка технологии получения и исследование свойств железоксидных цементных компаундов с РАО, а также фибробетонных контейнеров на основе высокожелезистого гематитового сырья. Изучение механизмов и кинетики взаимодействия высокоэнергетических пучков различной физической природы на структуру и свойства полученных материалов. Исследование разработанных физических моделей геометрии радиационной защиты контейнеров с консервированными в них ТРО.

Материал и методы исследования

Для исследований использованы твердые радиоактивные отходы на основе иловых отложений АЭС с удельной активностью менее $2 \cdot 10^{-6}$ Ки/кг, которые в соответствии со СПОРО-99 и СП-АС-99/2000 считаются токсичными и не могут быть вывезены по штатной схеме в места захоронения [1]. В качестве наполнителя цементных компаундов использованы высокожелезистые гематитовые и магнетитовые концентраты КМА с общим содержанием железа до 68,5 %. В качестве вяжущего использован цемент марки М500, а в качестве тяжелых заполнителей стенок фибробетонных контейнеров использованы высокожелезистые модифицированные гематитовые железорудные концентраты, высокопрочные скальные горные выработки железорудных карьеров бассейна КМА, специальные армирующие и пластифицирующие добавки заводского изготовителя.

Исследование физико-механических свойств материалов проводили с использованием стандартных гостированных методик. Анализ радиационно-защитных свойств материалов по отношению к γ -излучению выполнен на аттестованном в ВНИИФТРИ γ -спектрометрическом комплексе «Прогресс» в государственном, аккредитованном в Федеральном агентстве по техническому регулированию и метрологии РФ Центре «Радиационного мониторинга» при БГТУ им. В. Г. Шухова (аттестат аккредитации №САРК RU.0001.443195).

Результаты исследования и их обсуждение

Разработанная технология переработки и утилизации радиоактивных иловых отходов АЭС обеспечивает получение объекта разработки с повышенными эксплуатационными и экономическими показателями. Полученные по данной технологии бетонные композиты обладают следующими характеристиками:

Предел прочности на сжатие после 28 суток твердения, кг/см ²	100 – 120
Плотность материала, кг/м ³	2650 – 2750
Водопоглощение, масс %	10 – 15
Ослабление мощности экспозиционной дозы, крат.	2,0 – 10,0
Выщелачиваемость по ¹³⁷ Cs (среднегодовая), (г/см ²)/сут	менее 10 ⁻⁴
Альфа-загрязненность поверхности материала, (расп/см)/мин	не более 2
Содержание сухого ила в 1 м ³ при кратности ослабления МЭД равной 2, кг	500 – 1000

Полученные бетонные композиты направляются на захоронение в контейнерах, выполненных из усиленного фибробетона на цементном вяжущем [3,4].

Проведены опытно-промышленные испытания разработанного контейнера, выполнены пробные расчеты на ЭВМ и подтверждена адекватность разработанных физических моделей геометрии радиационной защиты контейнеров с консервированными в них ТРО. Консервация ТРО осуществлена путем цементирования механоактивированного железосодержащего компонента [2,7].

Разработанный универсальный защитный контейнер обладает следующими физико-механическими и радиационно-защитными характеристиками:

Плотность фибробетона, кг/м ³	3200...3800
Предел прочности на сжатие, МПа	160
Предел прочности на изгиб, МПа	30
Марка бетона по водонепроницаемости	W8
Марка бетона по морозостойкости	F 200
Линейный коэффициент ослабления γ -излучения, см ⁻¹ :	
Cs ¹³⁷ (E=0,66 МэВ)	0,24...0,26
Co ⁶⁰ (E=1,2 МэВ)	0,10...0,12

Смоделировано и экспериментально исследовано влияние γ -излучения на структуру и свойства радиационно-защитных фибробетонных композитов.

Прохождение γ -квантов от источников через стенку защиты моделировалось методом Монте-Карло. Физическая модель процессов и константное обеспечение позволили провести расчеты для энергий фотонов от 0,05 до 1,0 МэВ. Выполнены расчеты интегральных характеристик радиационно-защитных свойств материалов. Получены системные данные по энергетическим факторам накопления (ЭФН) (рис. 1 а, б) и коэффициентам пропускания (ЭКП) (рис. 2 а, б) для двух типов моделей – мононаправленный однородный источник излучения, нормально падающий на плоский защитный экран, и точечный изотропный источник в бесконечной среде.

Приведенные ниже на рисунках зависимости получены с учетом факторов накопления, содержащих как рассеянное, так и флуоресцентное излучение, образующиеся в результате фотоэффекта.

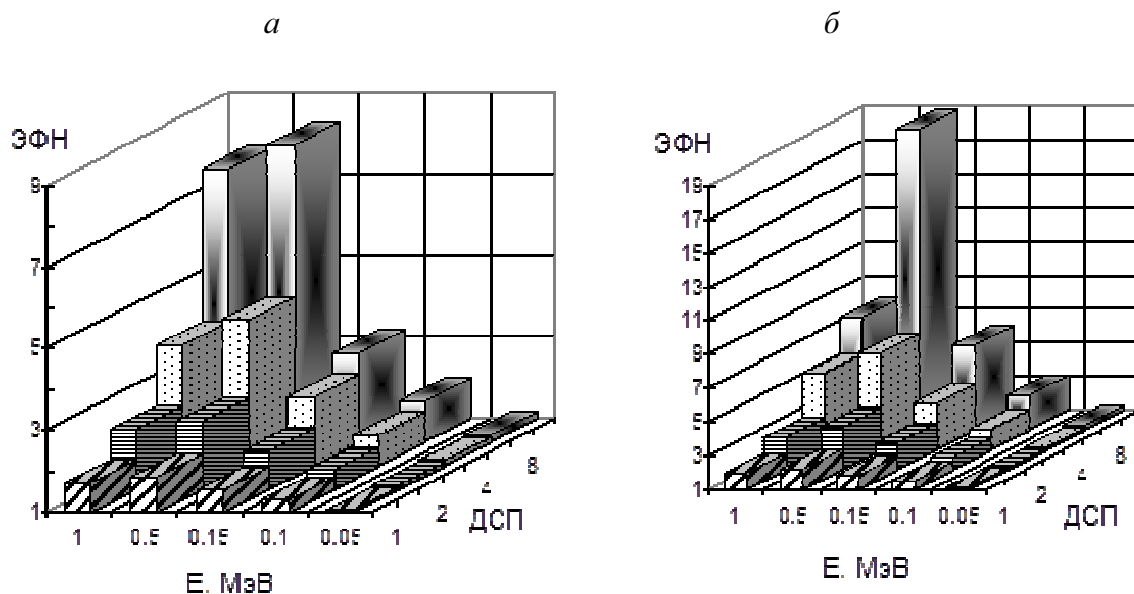


Рис. 1. Энергетический фактор накопления в фибробетоне с гематитовым наполнителем для плоского мононаправленного гамма-источника, нормально падающего на плоскую защиту (а) и для изотропного точечного гамма-источника в бесконечной среде

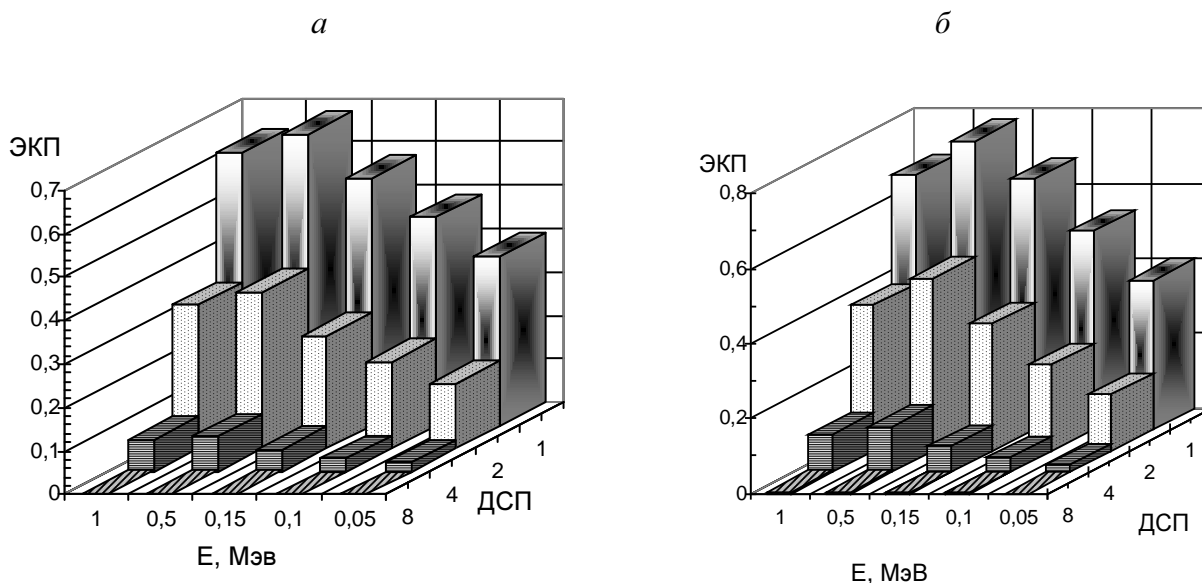


Рис. 2. Энергетический коэффициент пропускания в фибробетоне с гематитовым наполнителем для плоского мононаправленного гамма-источника, нормально падающего на плоскую защиту (а), для изотропного точечного гамма-источника в бесконечной среде (б)

Анализ произведенных расчетов показал:

1. В случае увеличения толщины защитного материала (или ДСП – длины свободного пробега фотона) и энергии излучения ЭФН (энергетический фактор накопления) для исследованных материалов (стенки фибробетонного контейнера) возрастает (рис. 1). Для

защитных материалов наблюдается незначительное увеличение ЭФН при малых ДСП (1, 2) и рост ЭФН – для высоких величин ДСП (4) фотона. Величина ЭФН для одного значения ДСП фотона слабо зависит от концентрации атомов железа в защитном материале (от 30,2 до 45,7 мас.).

2. Зависимости коэффициентов пропускания от толщины защитных фибробетонных материалов, представленные в полулогарифмическом масштабе (рис. 2 а, б), позволяют дать оценку характеристик материалов, величин отношения толщины слоя исследуемого материала к толщине свинцового слоя, имеющего тот же коэффициент пропускания. Отметим, что это отношение слабо зависит от величины коэффициента пропускания. По полученным результатам удобно проводить количественное сравнение различных образцов материалов при решении практических задач радиационной защиты. Полученные таким образом данные в комплексе с другими характеристиками материала позволяют принять решение о его использовании и позволяют проводить аналитические расчеты, необходимые при решении инженерных задач.

Изучены защитные свойства железобетонных материалов при воздействии на них точечных (ТГИ) и объемных (ОГИ) гамма-источников.

Теоретически рассчитанные значения линейных коэффициентов ослабления, выполненные по методу Монте-Карло в исследованном энергетическом интервале (табл.1), близки к экспериментальным, что дает основание использовать их на практике.

Таблица 1. Линейный коэффициент ослабления (μ) ТГИ для защитного материала на основе фибробетона

Тип материала	ρ , кг/м ³	μ , см ⁻¹ для энергий (кэВ) ТГИ					
		60	122	166	392	511	661
Фибробетон	3500	6,82	2,95	1,95	0,48	0,36	0,22

Значения линейного коэффициента ослабления μ (см⁻¹) для объемных γ -источников (ОГИ) показано в табл. 2.

Таблица 2. Линейный коэффициент ослабления (μ) ОГИ для защитного материала на основе фибробетона

Тип материала	ρ , кг/м ³	μ , см ⁻¹ для энергий (кэВ) ОГИ					
		59	168	350	605	847	1811
Фибробетон	3500	8,37	2,12	0,65	0,26	0,11	0,04

Практический интерес представляло исследование защитных характеристик фибробетонов по отношению к двум типам источников: на базе ТГИ и ОГИ с примерно

одинаковыми энергиями (60 кэВ). Установлено, что кратность ослабления ОГИ больше кратности ослабления ТГИ (табл. 3), что связано с числовым фактором накопления, который в случае ОГИ больше 1 (числовой фактор накопления B_N равен $K_{ОГИ}/K_{ТГИ}$ для данного фиксированного значения E_γ).

Таблица 3. Кратность ослабления и числовой фактор накопления фибробетона с гематитовым наполнителем для ТГИ и ОГИ с $E \approx 60$ кэВ

$h, \text{ см}$	0	1,0	1,6	2,2	3,2
$K_{ТГИ}, \text{ отн.ед.}$	1,00	$7,30 \cdot 10^5$	$7,90 \cdot 10^9$	$9,10 \cdot 10^{13}$	$3,23 \cdot 10^{19}$
$K_{ОГИ}, \text{ отн.ед.}$	1,00	$1,60 \cdot 10^6$	$2,80 \cdot 10^{10}$	$5,10 \cdot 10^{14}$	$3,40 \cdot 10^{20}$
$B_{N\gamma}, \text{ отн.ед.}$	1,00	2,19	3,54	5,60	10,53

Таким образом, результаты анализа радиационно-защитных свойств защитных материалов на основе фибробетона на базе двух типов источников: точечного и объемного, практически совпадают, т.е. не зависят от применяемого γ -источника. Использование ОГИ – это моделирование реальной ситуации взаимодействия γ -излучения с защитными стенками фибробетонных контейнеров с РАО.

Заключение

Разработаны способы переработки и утилизации РАО посредством включения их в бетонные матрицы с железоксидными наполнителями; контейнеризации твердых радиоактивных отходов; механизма и кинетики взаимодействия высокоэнергетических пучков различной физической природы на структуру и свойства полученных материалов. Новый подход к решению проблемы создания долговечного и безопасного контейнера для утилизации РАО низкой и средней активности основан на разработке нового типа радиационно-защитного композиционного материала на основе тяжелого фибробетона, обладающего повышенными физико-механическими, конструкционными, радиационно-защитными свойствами.

Исследование выполнено при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации, соглашение 14.В37.21.0298.

Список литературы

1. Козлов В. Ф. Справочник по радиационной безопасности. – М.: Атомиздат, 1987. – 192 с.
2. Лесовик Р. В., Агеева М. С., Чернышева Н. В. Активация мелкозернистого бетона на железосодержащих техногенных песках магнитным полем // Вестник БГТУ им. В.Г. Шухова. – 2011. – № 1. – С. 24–28.

3. Павленко В. И., Епифановский И. С., Ястребинский Р. Н. Радиационно-защитный бетон для биологической защиты ядерных реакторов // Перспективные материалы. – 2006. – № 3.– С. 22-24.
4. Павленко В. И., Ястребинский Р. Н., Басманов Г. В. Защитные контейнеры для РАО на основе фибробетона // Известия ВУЗов. Физика. – 2003. – № 9. – С. 90 – 94.
5. Патент США №4784802 / 1988// Noy. 15. Sheet 6 of 6.
6. Сорокин В. Т., Куликов А. В. Обращение с радиоактивными отходами с использованием невозвратных методов и технологий. – М.: Минатомпром, НТС на Балаковском АЭС, 1994. – С. 40-41.
7. Строкова В. В., Соловьева Л. Н., Максаков А. В., Огурцова Ю. Н. Механизм структурообразования строительных композитов с гранулированным наноструктурирующим наполнителем пролонгированного действия // Строительные материалы. – 2011. – № 9. – С. 64–65.
8. Reactor Experiments. INS.– 1990.–USA. – California, 94070/3278. – Catalog №23.– P.1-25.
9. Wyckoft H. O., Kennedy R. I. Broad-and narrow beam attenuation of 400-1400 kV X-rays in lead and concrete // Radiol. – 1988. – P. 849.

Рецензенты:

Савотченко Сергей Евгеньевич, д.ф-м.н., профессор, заведующий кафедрой информационных технологий «Белгородского института повышения квалификации и профессиональной переподготовки специалистов», г. Белгород.

Красильников Владимир Владимирович, д.ф-м.н., профессор кафедры материаловедения и нанотехнологий НИУ «Белгородского государственного университета», г. Белгород.