

Ю. О. Ольховик¹, Ю. Г. Федоренко¹, А. М. Розко², С. Ю. Саєнко³, В. А. Шкуропатенко³

¹ДУ «Інститут геохімії навколишнього середовища НАН України», просп. Академіка Палладіна, 34а, м. Київ, 03142, Україна

²Інститут геохімії, мінералогії та рудоутворення НАН України ім. М. П. Семененка, просп. Академіка Палладіна, 34, м. Київ, 03142, Україна

³Інститут фізики твердого тіла, матеріалознавства та технологій Національного наукового центру «Харківський фізико-технічний інститут», вул. Академічна, 1, м. Харків, 61108, Україна

Цементування боратвмісних рідких радіоактивних відходів за підвищеної температури

Ключові слова:

радіоактивні відходи, цементування, радіаційна стійкість, швидкість вилуговування, початок тужавлення, механічна міцність.

Розглянуто особливості цементування боратвмісних концентрованих сольових розчинів. Внесення до пересиченого розчину (800 г/дм^3) імітату кубового залишку центрів кристалізації у вигляді дрібнодисперсних порошоків бентоніту та портландцементу сприяє утворенню в компаундах великої кількості дрібних кристаликів солей, у тому числі метаборату натрію. Зразки цементних компаундів у цьому випадку мають межу міцності на стиск більше $4,9 \text{ МПа}$, задовільна міцність зразків зберігається після γ -опромінення дозою 10 кГр та після 30 циклів заморожування – відтаювання. Нормована швидкість вилуговування $10^{-3} \text{ г/(см}^2 \cdot \text{доба)}$ досягається на $107 \div 446$ добу. Залежність нормованих показників від складу компаундів надається відповідними рівняннями.

Вступ

Під час експлуатації атомних електростанцій (АЕС) з водо-водяними енергетичними реакторами (ВВЕР) утворюються і накопичуються великі об'єми рідких радіоактивних відходів (РАВ) низької і середньої активності у вигляді сольових концентратів. Кондиціонування рідких відходів, що містять переважну частину активності, накопиченої у сховищах АЕС, передбачає їх переведення в стабільну фізико-хімічну форму, яка здатна максимально обмежити можливість міграції радіонуклідів у довкілля і бути прийнятною для захоронення в поверхневій сховища на майданчику комплексу «Вектор». Об'єм накопиченого кубового залишку (КЗ) на АЕС Державного підприємства «НАЕК «Енергоатом» на 31.12.2017 р. становить 9 000 м^3 із сумарною активністю $\approx 100 \text{ ТБк}$. КЗ є сольовими розчинами з високою концентрацією, як правило, нітратів і боратів натрію, з питомою активністю до 10^8 Бк/дм^3 , що

містять продукти поділу, радіонукліди корозійного походження й різні речовини, які використовуються для підтримки водно-хімічного режиму і дезактивації устаткування.

Найбільш розповсюдженим методом кондиціонування середньо- і низькоактивних відходів є цементування [1–3]. Недоліком згаданого методу є значне збільшення об'єму і, відповідно, вартості витрат у разі довготривалого зберігання і захоронення в поверхневих сховищах. Проте як матриці для іммобілізації рідких РАВ широко використовуються цементні компаунди на основі портландцементу [4]. Ця технологія налічує не один десяток років і дотепер її використання є актуальним у зв'язку з можливістю отримання механічно міцних і негорючих отверджених рідких РАВ.

На Ростовській АЕС (Російська Федерація) впроваджено метод цементування КЗ із солевмістом $700\text{--}750 \text{ г/дм}^3$ із застосуванням портландцементу, бентоніту і NaOH [5]. Матриця являє собою

© Ю. О. Ольховик, Ю. Г. Федоренко, А. М. Розко, С. Ю. Саєнко, В. А. Шкуропатенко

цементно-глиняну суміш (суміш бентоніту і портландцементу марки М-500 (ПЦ 1-500) російських виробників у пропорції 1 : 9). Рецептuru складу цементного компаунду: концентрат КЗ – 38 %; портландцемент + бентоніт – 59 %; розчин NaOH (46 %) – 3 %. Вміст солей в отриманих цементних компаундах складає 22 %.

Згідно з економічними оцінками різних способів переробки рідких РАВ економічно виправданим цементування може стати лише якщо КЗ має концентрацію солей не менше 700–800 г/л [4], однак наразі не існує випарних установок, здатних точно забезпечувати задану концентрацію сольового розчину рідких РАВ для досягнення відповідної якості цементного компаунда. У цьому випадку може бути корисним аналітичне прогнозування нормованих показників, базоване на відповідних експериментальних рівняннях.

Відповідно до національного законодавства РАВ підлягають захороненню лише у твердому стані. Однак конкретних вимог щодо характеристик упаковок РАВ (і відповідно матриць, які вміщують РАВ) рекомендації [6] не наводять, оскільки згадані параметри визначаються під час проектування сховища шляхом встановлення критеріїв приймання відходів до нього [7]. Установлені критерії і вимоги до приймання кондиційованих відходів від заводу з переробки рідких РАВ та заводу з переробки твердих РАВ ДСП «Чорнобильська АЕС» для захоронення у два відсіки спеціально обладнаного приповерхневого сховища твердих РАВ [7] мають тимчасовий характер, дійсні тільки на час завантаження двох відсіків і не можуть розглядатися як нормативи для продуктів кондиціювання боратвмісних рідких РАВ АЕС з реакторами типу ВВЕР.

З огляду на відсутність в Україні відповідного загальнодержавного нормативного документу, автори роботи орієнтувались на загальні технічні вимоги до цементованих РАВ, що наведені у стандарті Російської Федерації ГОСТ Р 51883-2002

«Отходы радиоактивные цементированные» [8] (табл. 1).

Метою роботи було дослідити вплив температури та застосування дисперсного бентоніту під час цементування імітату боратвмісних рідких РАВ на нормовані показники компаундів.

Експериментальна частина

Згідно з вимогами нормативних документів означені показники (табл. 1) необхідно вимірювати одночасно, тобто кожна партія компаундів повинна відповідати значенням усіх нормованих показників. Для експериментів використовувався імітат КЗ сольового складу (надалі солі імітату).

Сольовий склад імітату кубового залишку, % мас.

$\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$	60,1
NaNO_3	13,1
NaCl	0,5
KOH	3,4
NaOH	21,7
Fe_2O_3	0,5
NH_4OH	0,2
CsNO_3	0,1
ПАР*	0,4

*Як поверхнево-активну речовину (ПАР) використано препарат «Щит», який застосовується на АЕС України для дезактивації обладнання і прання одягу персоналу.

Під час вивчення поведінки солей імітату у водному розчині було встановлено, що при розчиненні у воді температура розчину (імітату) підвищується вище 60 °С. За підвищеної температури імітат представляє собою рідкий розчин. У разі охолодження імітату до температури 26÷27 °С відбувається його пересичення через відсутність центрів кристалізації. Надалі починається кристалізація, і температура підвищується до 40÷42 °С. Після підвищення температури-

Таблиця 1. Характеристики цементованих рідких РАВ (компаундів)

Показник	Значення показника	Метод випробування
Максимальна швидкість вилуговування ^{137}Cs , г/(см ² · доба)	10 ⁻³	ГОСТ 29114-91
Мінімальна механічна міцність (границя міцності на стиснення), МПа	4,9	ГОСТ 310.4-81
Морозостійкість (кількість циклів замерзання/відмерзання)	30	ГОСТ 10060.1-95
Радіаційна стійкість під час опромінення, Гр	1 · 10 ⁶	Вимірювання механічної міцності
Стійкість до перебування у воді, діб	90	

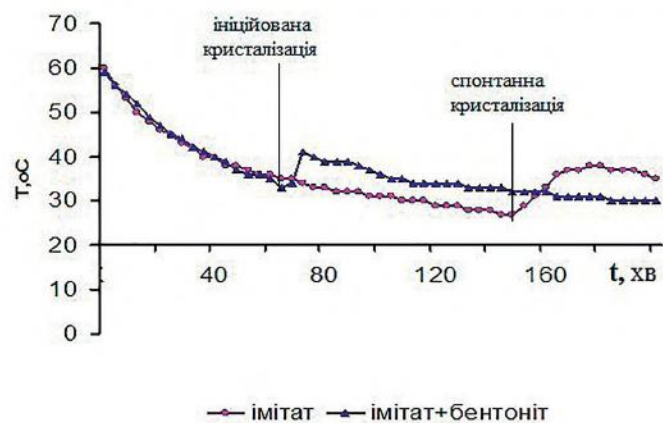


Рис. 1. Температурний хід за охолодження імітату

ри відбувається її зниження, і з'являються кристали переважно метаборату, які поступово виростають до розмірів 2÷3 мм, що посилює неоднорідність компаундів.

Якщо за температури 40÷60 °С до початку спонтанної кристалізації ввести в імітат центри кристалізації у вигляді дрібних частинок бентоніту фр. <100 мкм, то хід охолодження пересиченого розчину змінюється і кристалізація відбувається раніше за більш високої температури (рис. 1).

У цьому випадку формується значна кількість дуже дрібних кристаликів, які входять у цементну матрицю, що менше впливає на міцність та радіаційну стійкість компаундів.

Подібне слід очікувати і в разі поєднання з імітатом частинок портландцементу. Таким чином, створення компаундів доцільно робити за підвищеної температури, тому всі зразки компаундів для досліджень були виготовлені за температури імітату 40÷42 °С.

Виконання роботи проводилось шляхом аналізу результатів факторного експерименту [9]. Фактора-

ми були обрані масові кількості солей імітату, води, цементу, що був поєднаний з бентонітом у співвідношенні 10 : 1 (надалі цемент).

Відповідно до факторного експерименту базовими обрано такі масові співвідношення:

- вода/цемент = 0,5;
- вода/солі імітату = 1,0;
- бентоніт/цемент = 0,1.

Склад базового компаунда, %

Солі імітату.....	23,8
Портландцемент.....	47,6
Бентоніт.....	4,8
Вода.....	23,8

Надалі означені три фактори варіювались на ±10 % відносно базових значень. Остаточна маса компонентів у зразках наведена в табл. 2.

Для проведення експериментів були виготовлені зразки різних розмірів. Межа міцності на стиск вимірювалась на зразках 5 × 5 × 5 см [10], опромінювались зразки розміром 1,5 × 1,5 × 1,5 см, що обумовлено геометрією каналу опромінення. Швидкість вилуговування визначалась на зразках із зовнішньою поверхнею близько 80 см².

Випробування на стиск зразків компаундів проведені на електромеханічному пресі марки ZD 10/90 (виробництво – Німеччина), максимальне навантаження – 10 т. Імітацію опромінення здійснювали на прискорювачі електронів ЛУ-10 з енергією 10 МеВ, середній струм пучка – 800 мкА, частота проходження імпульсів – 250 Гц, швидкість вилуговування стабільного цезію визначалась на двохпроменевому атомно-абсорбційному спектрофотометрі (АА 8500F «Jarrel-H»), тужавлення зразків компаундів – за допомогою приладу Віка.

Таблиця 2. Початок тужавлення і маса компонентів у зразках для факторного експерименту

Номер серії	Початок тужавлення, хв	Маса, г		
		солі імітату	вода	цемент
М-350/1	115	416	416	915,2
М-350/1a	110	416	416	915,2
М-352/1	160	457	457	1006,5
М-352/2	190	457	457	823,9
М-352/3	70	457	374	1006,5
М-352/4	75	457	374	823,9
М-352/5	315	374	457	1006,5
М-352/6	225	374	457	823,9
М-352/7	85	374	374	1006,5
М-352/8	95	374	374	823,9

Результати досліджень та їх аналіз

Початок тужавлення. Інтервал часу від закінчення поєднання всіх компонентів цементних компаундів до початку їх тужавлення є важливою технологічною характеристикою водоцементних сумішей.

Результати вимірювань показали, що залежно від складу компаундів початок тужавлення становить від 70 хв (зразок 352/3) до 215 хв (зразок 352/5) (табл. 2).

Отримане рівняння регресії у цьому випадку виглядає так:

$$t_{\text{туж}} = 189,6 + 0,29m_c + 1,32m_b - 0,11m_{\text{ц}}, R^2 = 0,94, \quad (1)$$

де $t_{\text{туж}}$ – початок тужавлення, хв; m_c – маса солей імітату в компаунді, г; m_b – маса води в компаунді, г; $m_{\text{ц}}$ – маса цементу в компаунді, г.

Рівняння показує, що на початок тужавлення найбільше впливає кількість води у компаунді, а найменше – кількість цементу з бентонітом.

Механічна міцність. Зразки компаундних матеріалів були випробувані на міцність під час одноосного стискування. Переважна кількість зразків здебільшого зберегла форму куба з тріщинами по вертикальних гранях. Аналіз отриманих результатів показав, що межа міцності всіх зразків перевершує нормований показник 4,9 МПа, і складає 8,2÷19,8 МПа. Визначено рівняння регресії, яке пов'язує показник міцності (δ) зі складом компаундів:

$$\delta = -23,3 + 0,006m_c + 0,045m_b + 0,019m_{\text{ц}}. \quad (2)$$

Коефіцієнт кореляції між експериментальними та розрахованими за рівнянням результатами складає $R^2 = 0,71$. Такий коефіцієнт свідчить, що у вивченні межі міцності були недостатньо враховані чинники температури.

Унаслідок змішування імітату з цементом температура суміші знижується залежно від маси цементу

та його температури. Подальше її зниження залежить від маси зразків, відповідно цементування відбувається за значно нижчих температур. Вплив температури як додаткового чинника має бути вивчений додатково.

Експеримент щодо визначення механічних властивостей компаундів, які безперервно перебували у воді 90 діб, показав, що за цей час межа міцності знизилась приблизно на 20 %, але майже вдвічі перевищувала нормований показник.

Швидкість вилуговування. Підрахунки отриманих даних щодо вилуговування стабільного цезію дали результати, відображені в табл. 3.

У разі подовження терміну експерименту швидкість вилуговування зменшується і за деякий час виходить на нормований показник.

Термін $J_{\text{доба}}$, за який швидкість вилуговування стає $1 \cdot 10^{-3} \text{ г}/(\text{см}^2 \cdot \text{доба})$, описується рівнянням

$$J_{\text{доба}} = 1867 + 0,027m_c - 2,96m_b - 0,51m_{\text{ц}}. \quad (3)$$

Коефіцієнт кореляції $R^2 = 0,96$.

З рівняння видно, що найбільше впливає на термін виходу на нормований показник кількість води у компаунді, зі збільшенням якої термін виходу скорочується.

Радіаційна стійкість. Сольовий плав, класифікований як середньоактивні відходи, має активність $n \cdot 10^7$ Бк/л. Виконані розрахунки свідчать, що за 160 років зберігання цементний компаунд набере дозу 0,41 кГр. Враховуючи це, а також можливість нерівномірного розподілу радіонуклідів цезію в цементних компаундах, що може збільшити дозу самоопромінення окремих компаундів, доза імітаційного γ -опромінення була підвищена до 10 кГр. Загальний вигляд досліджуваних зразків до та після γ -опромінення представлено на рис. 2.

Під час візуального огляду опромінених зразків слідів механічного руйнування у вигляді відколів та

Таблиця 3. Швидкість вилуговування цезію з компаундів, $\text{г}/(\text{см}^2 \cdot \text{доба}) \times 10^3$

Номер зразка	Термін виходу на нормований показник	Термін вилуговування, доба					
		1	3	7	14	21	28
M352/1	107	64,5	24	11,5	6,2	4,4	3,3
M352/2	251	42,0	23	12,5	7,4	5,3	4,4
M352/4	446	44,0	27,9	16,0	9,4	6,7	5,7
M352/6	178	45,0	23,5	12,6	7,3	3,9	4,5
M352/7	355	42,0	24,2	13,8	8,2	6,1	5,0



Рис. 2. Вигляд зразків: а – до опромінення; б – після γ -опромінення дозою 10 кГр

Таблиця 4. Межа міцності на стиск зразків цементних компаундів, неопромінених та γ -опромінених до дози 10 кГр

Номер зразка	До опромінення		Після опромінення		Зміна міцності після опромінення, %
	зусилля, кгс	межа міцності, МПа	зусилля, кгс	межа міцності, МПа	
М-350	230	10,0	275	12,0	+20
М-351	220	9,6	230	10,0	+4
М-352/1	535	23,3	275	12,0	-48
М-352/2	365	15,9	365	15,9	0
М-352/3	355	15,5	325	14,2	-8
М-352/4	415	18,1	285	12,4	-31
М-352/5	225	9,8	325	14,2	+45
М-352/6	500	21,8	345	15,0	-31
М-352/7	445	19,4	375	16,3	-16
М-352/8	240	10,5	195	8,5	-19

тріщин не виявлено. Також не виявлено зміни кольору в опромінених зразках порівняно з неопроміненими. Для порівняння значення межі міцності на стиск опромінених та неопромінених зразків наведено у табл. 4.

Значення міцності на стиск зразків після імітаційного γ -опромінення наведені поряд зі значенням міцності зразків еквівалентних складів та в еквівалентному віці твердіння в повітряно-вологих умовах.

З таблиці видно, що межа міцності на стиск більшості зразків зменшується, крім зразків № М-350, М-351 та М-352/5, для яких характерне підвищення межі міцності після опромінення. Зменшення межі міцності зразків після γ -опромінення, ймовірно, зумовлене тим, що за інтенсивного γ -опромінення відбувається нагрів зразків і відповідно видалення незв'язаної води [8].

Морозостійкість. Зразки цементних компаундів партій № М-350, М-351 та М-352/1-8 були випробувані на морозостійкість (30 циклів заморожування – відтавання). Отримані результати наведено в табл. 5.

Отримані дані випробувань на морозостійкість зразків показали, що найкращі показники морозостійкості спостерігаються у зразків партії № М-352/3, зміна міцності яких після випробування на морозостійкість становить 29,4 % за допустимої межі в 25 %. Характерно, що зразки цієї партії показали також і високу радіаційну стійкість, демонструючи низьке зменшення міцності після опромінення – 8 %. Випробувані на морозостійкість зразки партій № М-352/3, М-352/4 та М-352/7 залишалися достатньо міцними і перевищували нормований показник 4,9 МПа, наведений у [8]. Слід зазначити, що за показниками механічної міцності зазначені зразки також перевищують параметри структурної стабільності іммобілізованих у матрицю рідких РАВ, що наведені у галузевому стандарті ДП «НАЕК «Енергоатом»» [11].

Висновки

У процесі роботи з цементування імітату боратвмісних рідких РАВ із сольовим вмістом 800 г/дм³ за температури вище спонтанної кристалізації (40 °С) та з

Таблиця 5. Результати випробувань зразків на міцність на стиск після 30 циклів заморожування

Номер зразка	Контрольні зразки		Після тесту на морозостійкість		Зміна міцності після тесту на морозостійкість, %
	міцність, МПа	середнє значення, МПа	міцність, МПа	середнє значення, МПа	
М-352/3 (1)	12,2	13,1	–	–	–29,4
М-352/3 (2)	14,0		–	–	
М-352/3 (3)	–	–	9,1	9,25	
М-352/3 (4)	–	–	9,4		
М-352/4 (1)	13,3	14,4	–	–	–44,8
М-352/4 (2)	15,5		–	–	
М-352/4 (3)	–	–	7,6	7,95	
М-352/4 (4)	–	–	8,3		
М-352/7 (1)	25,3	22,55	–	–	–41,7
М-352/7 (2)	19,8		–	–	
М-352/7 (3)	–	–	11,2	13,15	
М-352/7 (4)	–	–	15,1		

застосуванням бентонітового порошку фр. < 100 мкм у співвідношенні з цементом 1 : 10, отримано результати:

1. Досліджені зразки мали межу міцності на стиск більше 4,9 МПа, швидкість вилугування стабільного цезію 10^{-3} г/(см²·доба) досягала на 107÷446 добу. Зразки після γ -опромінення дозою 10 кГр зберігали високу міцність на стиск і відповідали регламентованим вимогам. Міцність зразків на стиск після 30 циклів заморожування була вище регламентованої величини.

2. Отримано рівняння, які пов'язують маси солей імітату, води та цементу і бентоніту з терміном початку тужавлення, межею міцності на стиск та терміном досягання нормованого показника під час вилугування. Рівняння дозволяють враховувати зміну величин показників при оптимізації співвідношень між компонентами.

3. Спосіб цементування рідких РАВ за підвищених температур після вивчення впливу температури на нормовані показники компаундів різного компонентного складу може мати практичне застосування, якщо факторами (аргументами) додатково розглядати температуру та щільність сольового концентрату.

Вважаємо необхідною розробку національного нормативного документа, який би визначив загальні технічні умови до цементованих РАВ (цементних компаундів), отриманих введенням рідких РАВ у матриці на основі неорганічних в'язучих речовин.

Список використаної літератури

1. Козлов П. В. Цементирование кубовых остатков АЭС с размещением компаунда в хранилищах наливного типа / П. В. Козлов, О. М. Слюнчев, К. В. Кирьянов и др. // Атомная энергия. – 2011. – Т. 111. – № 3. – С. 148–154.
2. Козлов П. В. Цементирование как способ отверждения жидких радиоактивных отходов / П. В. Козлов, О. М. Слюнчев, С. И. Ровный и др. // Цемент и его применение. – 2009. – Вып. 6. – С. 67–72.
3. Ершов Б. Г. Имобилизация средне- и высокоактивных отходов в цементную матрицу: влияние облучения на образование газов и выщелачивание радионуклидов / Б. Г. Ершов, Т. К. Юрик и др. // Вопросы радиационной безопасности. – 2008. – № 1. – С. 3–15.
4. Маслов М. В. Исследование схем обращения с накопленными радиоактивными отходами в целях их подготовки для окончательной изоляции / М. В. Маслов, В. С. Гупало, В. Н. Чистяков // Горный информационно-аналитический бюллетень. – 2012. – № 1. – С. 160–164.
5. Ростовская АЭС эксплуатирует установку цементирования жидких радиоактивных отходов // EnergyLand.info. – Режим доступа: <http://www.energyland.info/analytic-show-104136>. – Название с экрана.
6. РД 306.4.098-2004. Рекомендации щодо встановлення критеріїв приймання кондиційованих радіоактивних відходів на захоронення у приповерхневих сховищах

- [затверджено Наказом Державного комітету ядерного регулювання України № 160 від 25.10.2004 р.].
7. Критерії приймання радіоактивних відходів на захоронення в спеціально обладнаному приповерхневому сховищі твердих радіоактивних відходів (СОПСТРВ). Перший етап експлуатації СОПСТРВ. Приймання РАВ від ЗПРРВ та ЗПТРВ ДСП ЧАЕС для захоронення в два симетричних відсіки СОПСТРВ. – Чорнобиль, 2009. – 38 с.
 8. ГОСТ Р 51883-2002. Отходы радиоактивные цементированные. Общие технические требования / Госстандарт России. – М. : ИПК Издательство стандартов, 2002. – 7 с.
 9. Новик Ф. С. Оптимизация процессов технологии металлов методами планирования экспериментов / Ф. С. Новик, Я. Б. Арсов. – М. : Машиностроение; София : Техника, 1980. – 304 с.
 10. ASTM C293/C293M-10. Standard Test Method for Flexural Strength of Concrete (Using Simple Beam With Center-Point Loading) / ASTM International. – 2010. – doi: 10.1520/C0293_C0293M-10.
 11. Короткоіснуючі низько- та середньоактивні відходи АЕС. Вимоги до кінцевого продукту переробки СОУ ЯЕК 1.037:2013. Затверджено наказом Міністерства енергетики та вугільної промисловості України від 28.10.2013 № 790. – Київ, 2013.

**Ю. А. Ольховик¹, Ю. Г. Федоренко¹,
А. Н. Розко², С. Ю. Саенко³, В. А. Шкуропатенко³**

¹ГУ «Институт геохимии окружающей среды НАН Украины», просп. Академика Палладина, 34а, г. Киев, 03142, Украина

²Институт геохимии, минералогии и рудообразования НАН Украины им. Н. П. Семеновко, просп. Академика Палладина, 34, г. Киев, 03142, Украина

³Институт физики твердого тела, материаловедения и технологий НИЦ «Харьковский физико-технический институт», ул. Академическая, 1, г. Харьков, 61108, Украина

Цементирование боратсодержащих жидких радиоактивных отходов при повышенной температуре

Рассмотрены особенности цементирования боратсодержащих концентрированных солевых растворов. Внесение в перенасыщенный раствор 800 г/дм³ солей имитата центров кристаллизации в виде порошка бентонита и портландцемента способствует образованию в компаун-

дах большого количества мелких кристалликов солей, в том числе метабората натрия.

Образцы цементных компаундов в этом случае имеют предел прочности на сжатие больше 4,9 МПа, удовлетворительная прочность образцов сохраняется после γ -облучения дозой 10 кГр и после 30 циклов замораживания – оттаивания. Нормированная скорость выщелачивания 10^{-3} г/(см² · сутки) достигается на 107÷446 сутки.

Зависимость нормированных показателей от состава компаундов приводится в соответствующих уравнениях.

Ключевые слова: радиоактивные отходы, цементирование, радиационная стойкость, скорость выщелачивания, начало схватывания, механическая прочность.

**Yu. A. Olkhovik¹, Yu. G. Fedorenko¹,
A. N. Rozko², S. Yu. Saenko³, V. A. Shkuropatenko³**

¹SI “The Institute of Environmental Geochemistry of the National Academy of Sciences of Ukraine”, 34 a, Palladin ave., Kyiv, 03142, Ukraine

²M. P. Semenenko Institute of Geochemistry, Mineralogy and Ore Formation of the National Academy of Sciences of Ukraine, 34, Palladin ave., Kyiv, 03142, Ukraine

³Institute of Solid-State Physics, Materials Science and Technology of the National Science Center “Kharkov Institute of Physics and Technology”, 1, Akademichna st., Kharkiv, 61108, Ukraine

Cementation of Boron-Containing Liquid Radioactive Waste at Elevated Temperature

The features of cementation of borate-containing concentrated salt solutions, which, in their composition simulate liquid radioactive solutions of atomic power plants with WWER reactors, are considered. The addition of salts of imitate of crystallization centers in the form of bentonite powder and portland cement in an over-saturated solution (800 g/dm³) promotes the formation of a large number of small crystals of salts, including sodium metaborate, in the compounds.

The purpose of the work was to investigate the effect of temperature and the bentonite during cementation of borate liquid radionuclide radwaste imitation on the normalized indexes of compounds. Tests for compression of samples of compounds were carried out on the electromechanical press of the brand ZD 10/90 (production – Germany), the maximum load – 10 t. Imitation of irradiation was carried out on an electron accelerator LU-10 with energy of 10 MeV, the rate of leaching of stable cesium was determined by an atomic absorption spectrophotometer AA 8500F «Jarrel-H», annealing of samples

of compounds – using the device Vick.

The samples of cement compounds that have been synthesized under these conditions have a compressive strength of more than 4.9 MPa, and the satisfactory strength of the samples is preserved after γ -irradiation with a dose of 10 kGy and after 30 cycles of freezing-thawing. The visual inspection of irradiated samples of mechanical fracture marks in the form of chips and cracks and color changes did not reveal. The normalized leaching rate of 10^{-3} g/(cm²·d) is achieved on 107÷446 days.

The equations that associate the masses of imitate, water, cement and bentonite salts with the term of the beginning of gripping, the limit of compressive strength and the time of reaching the normalized value during leaching are obtained. The equations allow taking into account the change in the values of the parameters when optimizing the relations between the components.

Keywords: radioactivity, radiation firmness, speed of lixiviating, speed of consolidation, mechanical durability.

References

1. Kozlov P. V., Slyunchev O. M., Kiryanov K. V. (2011) [Cementing of bottoms of nuclear power plants with the placement of the compound in bulk storages]. *Atomnaya energiya* [Atomic energy], vol. 111, no. 3, pp. 148–154. (in Russ.)
2. Kozlov P. V., Slyunchev O. M., Smooth S. I. (2009) [Cementation as a method of solidifying liquid radioactive waste]. *Tsement i yego primeneniye* [Cement and its application], vol. 6, pp. 67–72. (in Russ.)
3. Ershov B. G., Yurik T. K. (2008) [Immobilization of medium and high level waste in the cement matrix: the effect of irradiation on the formation of gases and leaching of radionuclides]. *Voprosy radiatsionnoy bezopasnosti* [Radiation Safety Issues], no. 1, pp. 3–15. (in Russ.)
4. Maslov M. V., Gupalo B. C., Chistyakov V. N. (2012) [Investigation of schemes for the management of accumulated radioactive waste in order to prepare them for final isolation]. *Gornyi informatsionno analiticheskiy byulleten'* [Mining Information Analytical Bulletin], no. 1, pp. 160–164. (in Russ.)
5. [Rostov NPP operates an installation for liquid radioactive waste cementation] (17.05.2013) EnergyLand.info. Available at: <http://www.energyland.info/analytic-show-104136>. (in Russ.)
6. RD 306.4.098-2004. *Recommendations on the establishment of criteria for the acceptance of conditioned radioactive waste for disposal in near-surface storage facilities*. Approved by order of the State Nuclear Regulatory Committee of Ukraine from the no. 160, dated 25.10.2004. (in Ukr.)
7. *Criteria for the acceptance of radioactive waste for disposal in a specially equipped near-surface storage facility for solid radioactive waste (SOPSTRV). The first stage of operation of SOPSTRV. Acceptance of radioactive waste from ZPPRW and ZPTRW of ChNPP for disposal in two symmetric compartments of SOPSTRV*. Chornobyl, 2009, 38 p. (in Russ.)
8. GOST R 51883-2002. *Waste radioactive cemented. General technical requirements*. Moscow, IPK Publishing house of standards, 2002, 7 p. (in Russ.)
9. Novik F. S., Arsov Ya. B. (1980) *Optimizatsiya protsessov tekhnologii metallov metodami planirovaniya eksperimentov* [Optimization of metal technology processes using experimental planning methods]. Moscow: Mechanical Engineering; Sofia: Technique, 304 p. (in Russ.)
10. ASTM C293/C293M-10. *Standard Test Method for Flexural Strength of Concrete (Using Simple Beam With Center-Point Loading)*. ASTM International, West Conshohocken, PA, 2010. doi: 10.1520/C0293_C0293M-10.
11. SOU YaEK 1.037: 2013. *Short-lived low- and intermediate-level waste of NPPs. Requirements for the final processing product*. Approved by the order of the Ministry of Energy and Coal Industry of Ukraine dated October 28, 2013, no. 790. Kyiv, 2013. (in Ukr.)

Надійшла 04.03.2019

Received 04.03.2019