

### ВЛИЯНИЕ РАДИАЦИОННЫХ НАГРУЗОК, ХАРАКТЕРНЫХ ДЛЯ ВЫСОКОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ, НА СВОЙСТВА ЦЕМЕНТНОЙ МАТРИЦЫ

А. П. Варлаков<sup>1</sup>, В. В. Капустин<sup>1</sup>, Г. А. Варлакова<sup>1</sup>, А. А. Жеребцов<sup>2</sup>,  
В. Г. Петров<sup>3</sup>, Е. А. Ширшин<sup>3</sup>, С. Н. Калмыков<sup>3</sup>

<sup>1</sup>АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт  
неорганических материалов им. акад. А. А. Бочвара», Москва

<sup>2</sup>ИТЦП «Прорыв», Москва

<sup>3</sup>МГУ имени М. В. Ломоносова, Москва

Статья поступила в редакцию 12 декабря 2017 г.

*Исследована радиационная стойкость цементных компаундов на основе портландцемента при воздействии гамма-излучения до величин поглощенной дозы  $10^8$  Гр, что эквивалентно дозовым нагрузкам от ВАО за период хранения. Результаты исследования физико-химических свойств, морфологических, структурных и фазовых особенностей цементных компаундов показывают способность цементного камня сохранять их под воздействием таких радиационных нагрузок.*

**Ключевые слова:** цементирование, радиационная стойкость, дозовые нагрузки, прочность на сжатие, газовыделение, структурные свойства.

#### Введение

В сфере кондиционирования радиоактивных отходов (РАО) цементирование является наиболее распространенным методом с хорошо проработанным технологическим процессом и оборудованием. Цементирование применяется для кондиционирования как жидких, так и твердых радиоактивных отходов низкого и среднего уровня активности. Его преимущества состоят в простоте осуществления технологического процесса, негорючести и непластичности получаемой в процессе цементирования матрицы.

На сегодняшний день цементный компаунд не рассматривается в качестве матрицы, подходящей для иммобилизации высокоактивных отходов (ВАО). Это связано прежде всего с высокими дозовыми нагрузками на цементный камень в процессе хранения, в структуре которого большое количество связанной и свободной воды, солей. Однако цементные материалы, главным образом портландцемент, широко применяются для создания бассейнов выдержки и хранилищ для размещения отработавшего ядерного

топлива [1], источников ионизирующего излучения, в качестве радиационно-защитных материалов реакторов, наконец, контейнеров для хранения и захоронения РАО [2–4].

Собственно сам цемент является радиационно устойчивым материалом. Радиационному изменению в цементном камне подвержены содержащиеся в нем вода, гидраты и соли [5]. Считается, что вследствие этого радиационные эффекты, в частности радиолиз, могут приводить к изменению свойств цементного компаунда, например: снижению прочности, развитию трещин вследствие газовыделения, снижению водостойкости и повышению выхода радионуклидов. Это и вызывает сомнения в надежности цементной матрицы, которая должна локализовать ВАО на протяжении длительного периода, сопоставимого с временем распада локализованных радионуклидов или на регламентированный срок хранения.

Для прогнозирования свойств цементных компаундов важно понимание механизма

гидратации цементного материала, формирования и изменения структуры матрицы цементных компаундов в присутствии РАО.

Твердение цементных компаундов имеет сложный характер: после набора прочности может наблюдаться резкий спад или замедление твердения с возобновлением медленного монотонного нарастания прочности до 1 года с последующей стабилизацией прочностных характеристик. Вообще, причина сбросов прочности в вяжущих системах заключается во внутренней противоречивости процессов твердения, при котором наряду с упрочением структуры происходят процессы, вызывающие внутренние напряжения и разрушения первоначально образовавшейся структуры.

Следует отметить немногочисленное количество публикаций [6–8], посвященных вопросу радиационной устойчивости цементных компаундов с РАО. Среди них есть работы, авторы которых склоняются к мнению о наличии перспектив по использованию цементных материалов для получения отходной формы ВАО [9, 10]. Данных по радиационным испытаниям цементных компаундов крайне мало, а суждения и выводы строятся в основном на общих представлениях о цементном камне.

В имеющихся работах часто рассматриваются отдельные свойства цементных компаундов при воздействии радиационных нагрузок. Так, в работах [11, 12] рассматривается изменение механической прочности цемента и минерального состава при значениях доз 1 МГр, приводятся данные по изменению только механической прочности до доз  $10^9$  рад (эквивалентно 10 МГр) [13] и 22 МГр [14], исследуется [15] изменение только фазового состава и морфологии поверхности цементов вплоть до дозы 1409 МГр, в работе [16] исследовано газовыделение при дозах до 2 МГр. При этом работы, в которых проводились системные исследования для одного и того же объекта (прочность цементного камня, выщелачивание элементов, газовыделение и др.), как правило, использовали дозы облучения до 1–2 МГр [10].

Анализ источников позволяет отметить, что компаунды на основе цемента оцениваются как стойкие материалы к дозам облучения до  $10^6$  Гр. При такой радиационной нагрузке значимых изменений механических свойств цементных материалов не наблюдалось, что обусловлено и несущественным газообразованием, и достаточной газопроницаемостью цементного камня. Однако согласно ГОСТ Р 50926-96 [17] матрицы для ВАО должны обладать радиационной устойчивостью к дозе  $1 \cdot 10^8$  Гр ( $\beta$ - и  $\gamma$ -излучение).

В целом преимущественное применение обычного цемента на объектах использования атомной энергии говорит о потенциальной возможности реализовать иммобилизацию определенных видов ВАО в цементную матрицу.

Целью настоящей работы является комплексная оценка изменений регламентированных свойств, фазового состава и микроструктуры цементных компаундов, подвергнутых воздействию высоких доз (до  $10^8$  Гр) ионизирующего излучения, характерных для высокоактивных отходов.

Задача настоящего этапа работы состоит в том, чтобы получить исходную информацию о воздействии гамма-излучения на традиционный цементный камень, приготовленный с использованием обычного портландцемента и чистой воды. Результаты в дальнейшем будут использованы для сравнительного анализа воздействия более широкого спектра радиационного излучения на цементный компаунд, в том числе с включенными различными компонентами радиоактивных отходов.

В ходе работы исследовались механические, физико-химические свойства, газовыделение, структурные и фазовые особенности цементных компаундов после воздействия радиационных нагрузок до значения поглощенной дозы  $10^8$  Гр, что эквивалентно величине дозы ионизирующих излучений ВАО за период хранения.

### Методика исследований

Объектом исследования в данной работе являлся цементный компаунд, приготовленный с использованием портландцемента марки ПЦ ЦЕМ I 42,5Б при водоцементном (В/Ц) отношении 0,5, без добавок. Характеристики цементного компаунда на стадии раствора приведены в табл. 1.

**Таблица 1. Свойства цементного раствора**

Наименование параметра, ед.изм.	В/Ц	Плотность, г/см <sup>3</sup>	Растекаемость, мм	Водоотделение, % об.	Сроки схватывания, ч-мин: начало конец
Показатели	0,5	1,79±0,18	123±3	3,0±0,5	4-20±5 5-20±5

На стадии раствора определение растекаемости цементного раствора осуществлялось с помощью конуса марки «АзНИИ КР-1», определение сроков схватывания производилось с использованием прибора Вика марки ОЦ-1.

На стадии твердения определяли показатели механических, физико-химических свойств полученных компаундов: прочность на сжатие в возрасте твердения 7, 14, 28 суток; морозостойкость в возрасте твердения 28 суток; водостойкость образцов с возраста твердения 28 суток (устойчивость к длительному пребыванию в воде в течение 28 суток); радиационную стойкость образцов с возраста твердения 28 суток.

Методики проведения испытаний цементных компаундов основываются на методах,

Таблица 2. Прочностные характеристики необлученных цементных компаундов

Механическая прочность на сжатие, МПа (среднее значение по выполненным измерениям)						
Компаунд, твердевший в воздушно-влажных условиях			В ходе испытаний на морозостойчивость		В ходе испытаний на водостойчивость	
7 суток	14 суток	28 суток	Контрольный компаунд в эквивалентном возрасте твердения	Компаунд после 30 циклов замораживания/оттаивания	Контрольный компаунд в эквивалентном возрасте твердения	Компаунд после пребывания в воде в течение 28 суток
20,53±4,93	26,25±6,30	31,67±7,60	45,4±10,90	36,20±8,67	66,5±15,9	68,20±16,37

рекомендованных в соответствующих ГОСТ. Испытания проводились на образцах в форме балочек размером 1×1×3 см и кубиков — 2×2×2 см.

Для определения механической прочности на сжатие использовали испытательную машину марки Testing Cybertronic с приспособлениями для установки под пресс испытательной машины цементных образцов кубиков и балочек. Морозостойкость цементных компаундов оценивали путем периодического замораживания-оттаивания образцов с использованием климатической камеры МК-53.

Рентгенофазовый анализ (РФА) цементного компаунда проводился при помощи рентгеновского дифрактометра Ultima-IV фирмы Rigaku (Япония). Рабочий режим: 40 кВ, 40 мА,  $\text{CuK}_\alpha$ -излучение, никелевый фильтр, диапазон измерений 2—80° 2 $\theta$ , шаг по углу сканирования 0,02° 2 $\theta$ , фиксированная система фокусирующих щелей. Для ускорения съемки и повышения качества экспериментальных данных использовался полупроводниковый детектор нового поколения DTex/Ultra: скорость сканирования 5° 2 $\theta$ /минуту. Диагностику минерального состава проводили методом сопоставления экспериментального и эталонных спектров из базы данных PDF-2 в программном пакете Jade 6.5, компании MDI.

Морфологическая характеристика образцов выполнена с использованием растрового электронного микроскопа (РЭМ) JEOL JSM 6380 LA (JEOL, Япония) при ускоряющем напряжении 20 кВ в режиме вторичных электронов. Для исследований РЭМ от представительного образца получали тонкий срез и напыляли его золотом. Также была проведена съемка на просвечивающем электронном микроскопе (ПЭМ) JEOL JEM 2100F (JEOL, Япония).

Радиационной нагрузке цементные образцы подвергались в гамма-камере «Гамма-400», источник излучения Cs-137 с энергией 661 кэВ. Цементные образцы на 28 суток твердения помещали в стеклянную ампулу, ампулу запаивали и облучали в гамма-камере в течение времени, за которое поглощенная доза достигнет значений порядка 10<sup>6</sup>, 10<sup>7</sup>, 10<sup>8</sup> Гр. Ампулы с образцами, подвергнутые облучению, использовались для определения выделяющегося газа. Качественный и количественный анализ выделившихся газов после облучения цементного компаунда осуществлялся методом атомно-эмиссионной

спектроскопии с лазерной ионизацией (метод LIBS — Laser-Induced Breakdown Spectroscopy). Преимущество данного метода по отношению к другим заключается, прежде всего, в сочетании простоты реализации, универсальности и относительно низкого предела детектирования (на уровне 100 ppm объемной концентрации).

### Результаты и обсуждение

Чтобы получить сравнительную оценку свойств цементных компаундов, проведены испытания и обследования образцов до и после облучения дозами 10<sup>6</sup>, 10<sup>7</sup>, 10<sup>8</sup> Гр. Критерием для сравнительной оценки физико-механических свойств являлся параметр механическая прочность на сжатие.

Физико-механические свойства необлученных цементных компаундов приведены в табл. 2.

Определения прочности на сжатие образцов после 30 циклов замораживания/оттаивания и после 28 суток выдержки в водной среде проведены наряду с определением прочности образцов эквивалентных составов, в эквивалентном возрасте твердения в воздушно-влажных условиях.

Результаты измерений демонстрируют традиционный процесс твердения цементных компаундов, когда с возрастом прочность компаундов повышается в результате процессов гидратации, происходящих в цементном камне.

Для определения радиационной устойчивости цементные образцы помещали в стеклянную ампулу. После вскрытия ампул облученные образцы испытывали на механическую прочность, параллельно измеряли прочность на сжатие контрольных образцов, хранившихся в воздушно-влажных условиях. Изменения фазового состава, микроструктуры, морфологии поверхности исследовали соответственно методами РФА, ПЭМ и РЭМ.

Результаты влияния гамма-излучения на механическую прочность цементных компаундов приведены в табл. 3.

При визуальном осмотре облученных образцов следов механического разрушения в виде сколов, трещин не обнаружено. Цементные компаунды при увеличении дозы облучения от 10<sup>6</sup> до 10<sup>8</sup> Гр сохраняют высокую прочность на сжатие и отвечают регламентированным требованиям. Их прочность на сжатие в 4—8 раз выше



**Таблица 3. Прочность на сжатие цементных компанудов, подвергнутых радиационной нагрузке**

Гамма-облучение, Гр	Механическая прочность на сжатие, МПа
Контрольный образец	33,61±8,06
10 <sup>6</sup>	32,13±7,71
10 <sup>7</sup>	37,57±9,02
10 <sup>8</sup>	30,95±7,43

регламентируемой величины для омоноличенных РАО (5 МПа).

Сравнение фазового состава образцов до и после облучения при разных значениях поглощенной дозы показывает, что изменений в составе даже при высоких дозах облучения (до 1·10<sup>8</sup> Гр) не проявляется. Для всех образцов от пробы к пробе незначительно изменяется

относительное содержание минорных минеральных фаз, но, вероятнее всего, это связано с неоднородностью проб.

Изображения кристаллов минеральных фаз до и после облучения до значения поглощенной дозы 1·10<sup>8</sup> Гр, полученные методом ПЭМ, приведены на рис. 1.

Вид кристаллов свидетельствуют о том, что кристалличность образцов сохраняется после облучения и видимых изменений структуры отдельных кристаллов не наблюдается.

Снимки, полученные на растровом электронном микроскопе, свидетельствуют о том, что различия в морфологии поверхности между образцами до облучения и после облучения не наблюдается (рис. 2).

Сравнительный анализ результатов РФА, ПЭМ и РЭМ исследований позволяет говорить о том,

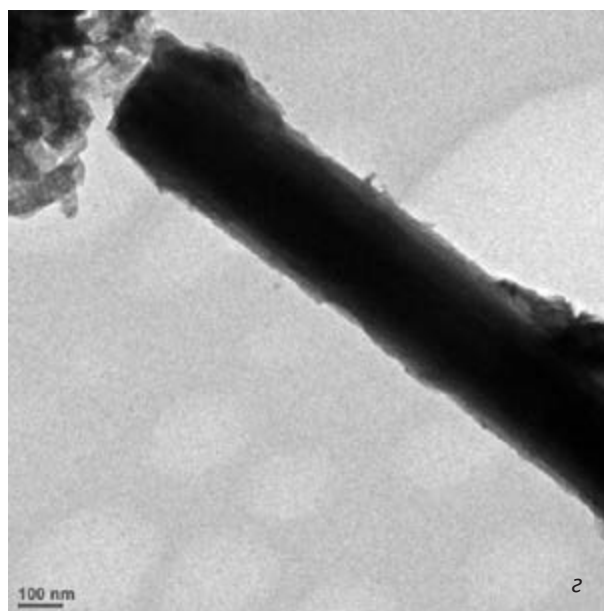
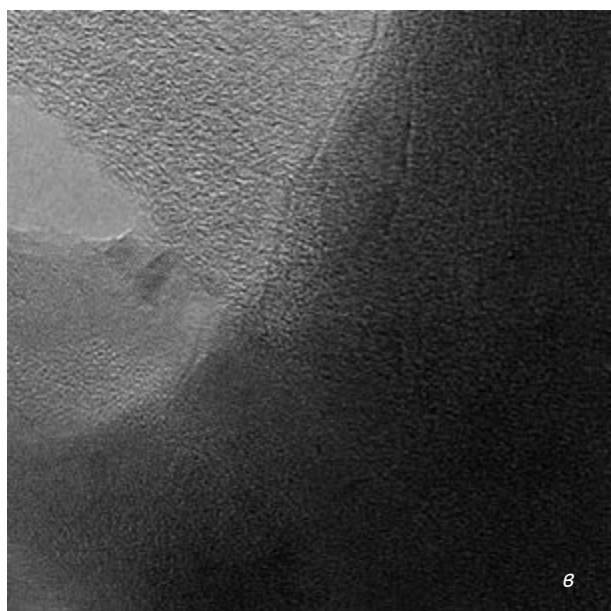
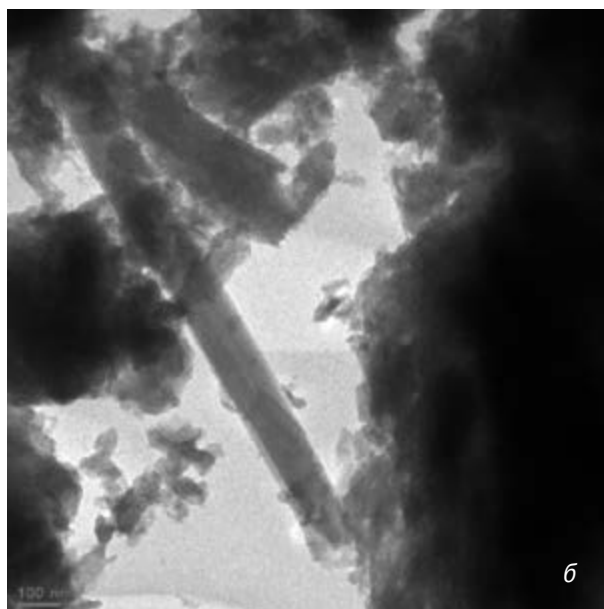
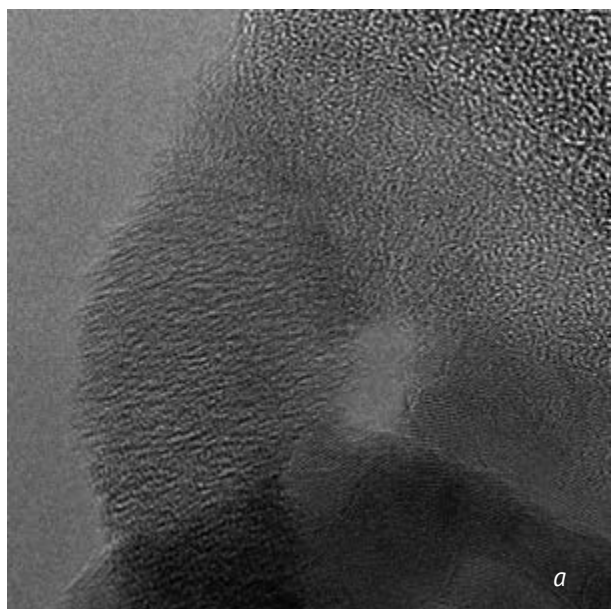


Рис. 1. Сравнение ПЭМ-изображений цементного компануда до облучения (а, б) и после облучения (в, г) до значения поглощенной дозы 1·10<sup>8</sup> Гр

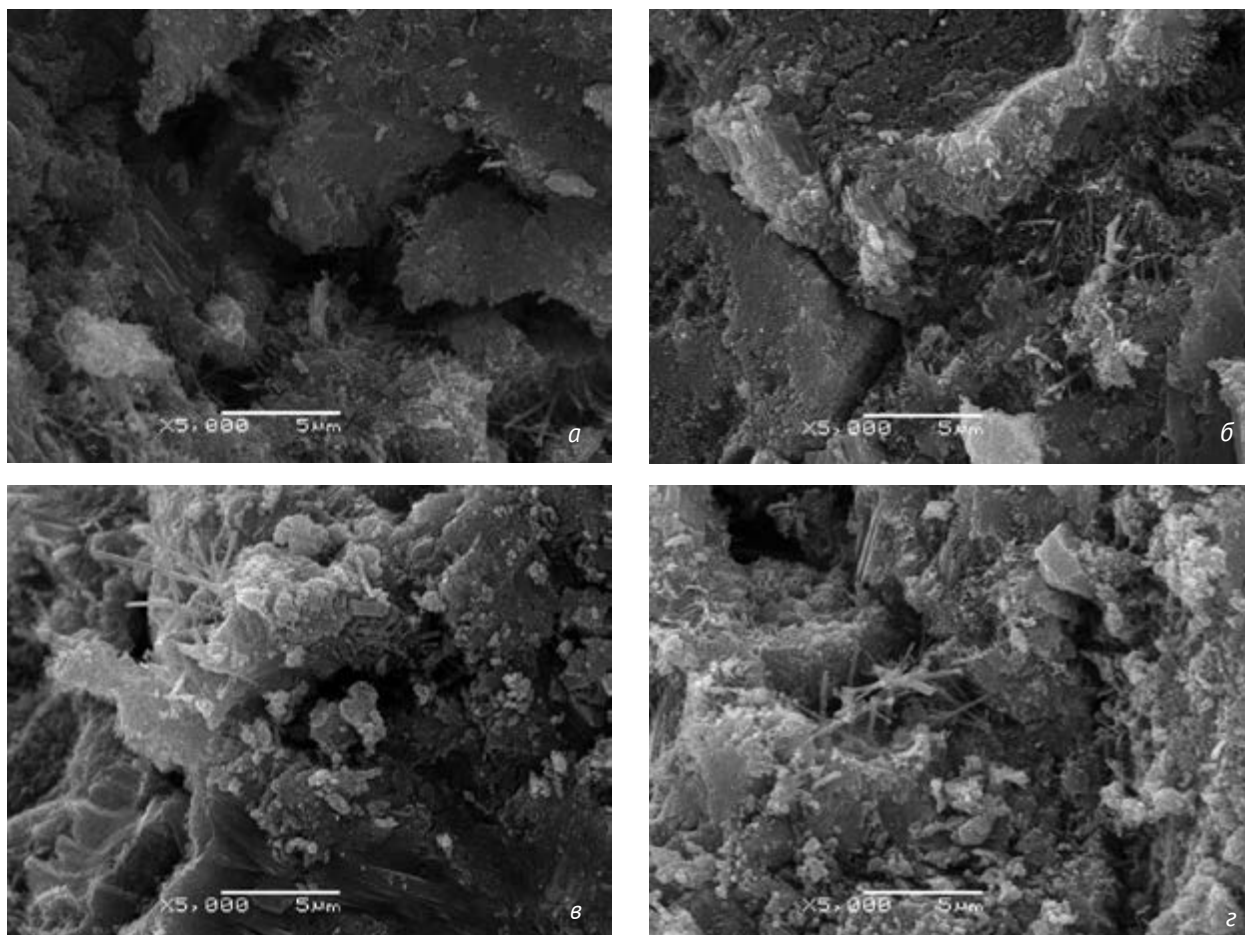


Рис. 2. Сравнение РЭМ-изображений цементного компаунда до облучения (а) и после облучения до значения поглощенной дозы  $1 \cdot 10^6$  Гр (б),  $1 \cdot 10^7$  Гр (в),  $1 \cdot 10^8$  Гр (з)

что дозовые нагрузки величиной  $1 \cdot 10^8$  Гр не приводят к изменениям в структуре цементного камня, появлению новообразований и дефектов. По-видимому, тех условий (температура, давление, образование газов), которые формируются в результате дозовых нагрузок, не достаточно для развития реакций деструкции в цементном камне, дефектной структуры в виде микротрещин.

Полученные результаты свидетельствуют о том, что композиции на основе цемента способны сформировать соответствующие регламентированным требованиям матрицы для широкого спектра радиоактивных отходов с высоким уровнем активности.

**Газообразование под воздействием дозовых нагрузок.** Исследования газообразования проводились путем измерения спектра плазмы, полученного в результате оптического пробоя при фокусировке лазерного излучения в объеме запаянной пробирки. Использовались запаянные пробирки с атмосферным воздухом в качестве «холостого опыта» и пробирки с образцами после облучения. Регистрация спектров осуществлялась в диапазоне 640–770 нм (рис. 3). В области 656 нм наблюдается эмиссия водорода (пары воды в воздухе), в области 745 нм — триплет эмиссии азота. Для каждого

образца накапливалась статистика спектров, полученных от каждого из нескольких (2–3) тысяч лазерных импульсов. Концентрацию водорода в каждом опыте оценивали по соотношению интенсивностей линий водорода и азота, поскольку в образцах концентрация азота была постоянна. Для повышения точности при оценке данного отношения использовались кадры, в которых интенсивность линии водорода была велика.

На основании полученных значений по концентрации водорода и с учетом объема ампул были рассчитаны количества выделившегося водорода под воздействием дозовых нагрузок (рис. 4).

Линией на рис. 4 показаны результаты аппроксимации полученных экспериментальных данных в диапазоне доз  $10^4$ – $10^8$  Гр, где в качестве математической модели использовали уравнение [18]:

$$n(\text{H}_2) = n_{\infty}(1 - e^{-kD}), \text{ моль/г}$$

где  $n(\text{H}_2)$  — зависящее от дозы облучения количество выделившегося водорода относительно массы образца, моль/г;  $n_{\infty}$  — количество выделившегося водорода при бесконечно большой дозе облучения, моль/г;  $D$  — доза облучения, Гр;  $k$  — константа скорости выделения водорода, Гр<sup>-1</sup>.

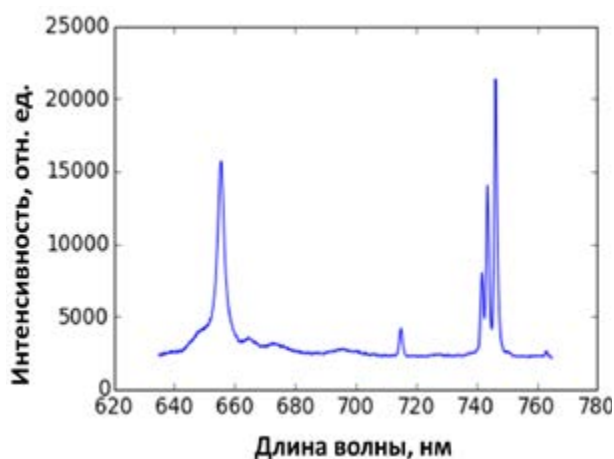


Рис. 3. Спектр эмиссии плазмы образца воздуха в колбе

Стоит отметить, что приведенное уравнение не объясняет те процессы, которые происходят в цементном компаунде при радиолитизе воды. Подробные модели таких процессов описаны, например, в [19–21].

Тем не менее данная аппроксимация позволяет оценить максимально возможное выделение водорода при определенной поглощенной дозе излучения. Экспериментальные данные показывают, что максимальное выделение водорода не превышает  $10^{-3}$  моль/(г образца) при значении поглощенной дозы  $10^8$  Гр.

### Заключение и выводы

Проведенные исследования показывают, что цементные компаунды, полученные на основе обычного портландцемента, способны сохранять свои физико-механические характеристики, фазовый состав и структуру под воздействием радиационных нагрузок, эквивалентных по величине радиационному излучению от ВАО за время хранения, и, следовательно, могут рассматриваться в качестве матрицы для иммобилизации не только среднеактивных, но и высокоактивных отходов.

### Литература

1. Дубровский В. Б. Строительные материалы и конструкции защиты от ионизирующих излучений / В. Б. Дубровский, З. А. Аблевич — М.: Стройиздат, 1983. — С. 60–118.
2. Орлов В. К. Особо тяжелый бетон и кермет — защитные материалы с повышенным поглощением  $\gamma$ -излучения / В. К. Орлов, Ю. А. Метелкин, А. А. Маслов // Атомная энергия. — 2014. — Т. 117. — Вып. 4. — С. 198–203.
3. Ястребинский Р. Н. Экологически безопасная и безотходная технология кондиционирования и утилизации радиоактивных отходов / Р. Н. Ястребинский, Е. И. Евтушенко, Д. В. Воронов, Н. А. Четвериков // Современные проблемы науки и образования (Пенза). — 2012. — № 6. — С. 143–150.

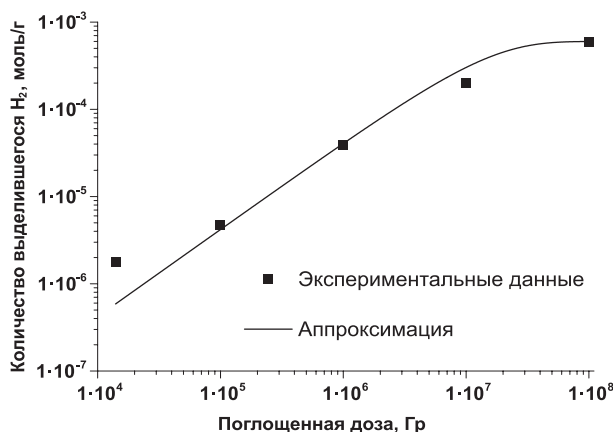


Рис. 4. Количество выделившегося водорода (моль) от величины поглощенной дозы (Гр)

4. Craeye B. Cement-waste interactions: Hardening self-compacting mortar exposed to gamma radiation / Craeye B., De Schutter G., Vuyc C., Gerardy I. // Progress in Nuclear Energy. — 2015. — V. 83. — P. 212–219.
5. Bouniol P. Aspects physico-chimiques du comportement des betons sous irradiation. / Bouniol P., Thouvenot P. // J. Chim. Phys. — 1997. — V. 94. — P. 10–417.
6. Dole L. R. Cement-Based Radioactive Waste Hosts Formed Under Elevated Temperatures and Pressures For Savannah River Plant High-Level Defense Waste / L. R. Dole, G. C. Rogers, M. T. Morgan, et al. — US DOE. Under Contract № W-7405-eng-26. — 1983. — 84 p.
7. Ojovan M. I. Long-term field and laboratory leaching tests of cemented radioactive wastes / M. I. Ojovan, G. A. Varlackova, Z. I. Golubeva, O. N. Burlaka // Journal of Hazardous Materials. — 2011. — V. 187. — P. 296–302.
8. Mobasher N. Gamma irradiation resistance of an early age slag-blended cement matrix for nuclear waste encapsulation / N. Mobasher, S. A. Bernal, H. Kinoshita, et al. // J. Mater. Res. — 2015. — V. 30. — № 9. — P. 1563–1571.
9. Roy D. M. High Level Radioactive Waste Incorporation into Special Cements / D. M. Roy, G. G. Gouda // Nucl. Technol. — 1978. — V. 40. — P. 214–219.
10. Ершов Б. Г. Иммобилизация средне- и высокоактивных отходов в цементную матрицу: влияние облучения на образование газов и выщелачивание радионуклидов / Б. Г. Ершов, Т. К. Юрик, Г. Л. Быков и др. // Вопросы радиационной безопасности. — 2008. — № 1. — С. 3–15.
11. Vodák F. Effect of  $\gamma$ -irradiation on strength of concrete for nuclear-safety structures / F. Vodák, K. Trtík, V. Sopko, et al. // Cement and concrete research. — 2005. — V. 35. — № 7. — P. 1447–1451.
12. Vodák F. Effect of gamma irradiation on properties of hardened cement paste / F. Vodák, V. Vydra, K. Trtík, O. Kapičková // Materials and structures. — 2011. — V. 44. — № 1. — P. 101–107.
13. Шейнич Л. Специальные бетоны и композиционные материалы // Капстроительство. — 2002. — № 8. — С. 47–49.
14. Soo P. The effect of gamma radiation on the strength of Portland cement mortars / P. Soo,



- L. M. Milian // Journal of materials science letters. — 2001. — V. 20. — №. 14. — P. 1345—1348.
15. *Lowinska-Kluge A.* Effect of gamma irradiation on cement composites observed with XRD and SEM methods in the range of radiation dose 0-1409 MGy / A. Lowinska-Kluge, P. Piszora // Acta Physica Polonica-Series A General Physics. — 2008. — V. 114. — № 2. — P. 399—411.
16. *Быков Г. Л.* Образование газов при действии  $\gamma$ -излучения на цементный материал / Г.Л. Быков, А. В. Гордеев, Т. К. Юрик, Б. Г. Ершов // Химия высоких энергий. — 2008. — Т. 42. — № 3. — С. 248—251.
17. ГОСТ Р. 50926-96. Отходы высокоактивные отвержденные. Общие технические требования, М.: Госстандарт России, 1996.
18. *Le Caër S.* Radiolysis of confined water: Hydrogen production at a high dose rate / S. Le Caër, P. Rotureau, F. Brunet, et al. // ChemPhysChem. — 2005. — V. 6. — № 12. — P. 2585—2596.
19. *Ershov B. G.* A model for radiolysis of water and aqueous solutions of  $H_2$ ,  $H_2O_2$  and  $O_2$  / B. G. Ershov, A. V. Gordeev // Radiation Physics and Chemistry. — 2008. — V. 77. — № 8. — P. 928—935.
20. *Bouniol P.* A comprehensive model to describe radiolytic processes in cement medium / P. Bouniol, E. Bjergbakke // Journal of Nuclear Materials. — 2008. — V. 372. — №. 1. — P. 1-15.
21. *Le Caër S.* Water radiolysis: influence of oxide surfaces on  $H_2$  production under ionizing radiation // Water. — 2011. — V. 3. — №. 1. — P. 235—253.

### Информация об авторах

*Варлаков Андрей Петрович*, доктор технических наук, директор отделения, АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов им. академика А. А. Бочвара» (123060, Москва, ул. Рогова, 5а), e-mail: APVarlakov@bochvar.ru.

*Варлакова Галина Андреевна*, кандидат технических наук, главный специалист, АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов им. академика А. А. Бочвара» (123060, Москва, ул. Рогова, 5а), e-mail: varlakova@inbox.ru.

*Жеребцов Александр Анатольевич*, кандидат химических наук, начальник отдела, ИТЦП «Прорыв», e-mail: zhala@progyv2020.ru.

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

*Капустин Виталий Владимирович*, ведущий инженер-технолог, АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов им. академика А. А. Бочвара» (123060, Москва, ул. Рогова, 5а), e-mail: vit4022@gmail.com.

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

*Ширшин Евгений Александрович*, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, МГУ им. М. В. Ломоносова (119991, Москва, ул. Ленинские горы, 1 стр. 3); e-mail: eshirshin@gmail.com.

### Библиографическое описание данной статьи

*Варлаков А. П., Жеребцов А. А., Петров В. Г. и др.* Влияние радиационных нагрузок, характерных для высокоактивных отходов, на свойства цементной матрицы // Радиоактивные отходы. — 2018. — № 1 (2). — С. 89—96.

## THE EFFECT OF RADIATION DOSES TYPICAL FOR HIGH-LEVEL WASTE ON THE PROPERTIES OF THE CEMENT MATRIX

A. P. Varlakov<sup>1</sup>, V. V. Kapustin<sup>1</sup>, G. A. Varlakova<sup>1</sup>, A. A. Zhrebtsov<sup>2</sup>,  
V. G. Petrov<sup>3</sup>, E. A. Shirshin<sup>3</sup>, S. N. Kalmykov<sup>3</sup>

<sup>1</sup>JSC «A.A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials», Moscow, Russian Federation

<sup>2</sup>ITCP "Proryv", Moscow, Russian Federation

<sup>3</sup>M. V. Lomonosov Moscow State University, Moscow, Russian Federation

Article received 12 December 2017

*The radiation stability of Portland cement based compounds was studied under the gamma irradiation at values of the absorbed dose up to 108 Gy, which is similar to the irradiation dose of high-level waste within the storage period. The investigation of their physical and chemical properties, morphological, structural and phase features demonstrates the ability of cement compounds to retain their characteristics under such irradiation doses.*

**Key words:** cementing, radiation stability, irradiation doses, compressive strength, gas evolution, structural properties.

### References

1. *Dubrovskij V. B.* Stroitel'nye materialy i konstrukcii zashchity ot ioniziruyushchih izlucheniij / V. B. Dubrovskij, Z. A. Ablevich — M.: Strojizdat, 1983. — S. 60–118. (In Russian).
2. *Orlov V. K.* Osobo tyazhelyj beton i kermet — zashchitnye materialy s povyshennym pogloshcheniem  $\gamma$ -izlucheniya / V. K. Orlov, Yu. A. Metelkin, A. A. Maslov. *Atomnaya ehnergiya*, 2014, t. 117, vyp. 4, s. 198–203. (In Russian).
3. *YAstrebinskij R. N.* Ehkologicheskij bezopasnaya i bezothodnaya tekhnologiya kondicionirovaniya i utilizacii radioaktivnyh othodov / R. N. YAstrebinskij, E. I. Evtushenko, D. V. Voronov, N. A. Chetverikov. *Sovremennye problemy nauki i obrazovaniya (Penza)*, 2012, no 6, S. 143–150. (In Russian).
4. *Craeye B.* Cement-waste interactions: Hardening self-compacting mortar exposed to gamma radiation / Craeye B., De Schutter G., Vuyc C., Gerardy I. *Progress in Nuclear Energy*, 2015, v. 83, pp. 212–219.
5. *Bouniol P.* Aspects physico-chimiques du comportement des betons sous irradiation. / Bouniol P., Thouvenot P. *J. Chem. Phys.*, 1997, v. 94, pp 410–417.
6. *Dole L. R.* Cement-Based Radioactive Waste Hosts Formed Under Elevated Temperatures and Pressures For Savannah River Plant High-Level Defense Waste / L. R. Dole, G. C. Rogers, M. T. Morgan et al. — US DOE. Under Contract N<sup>o</sup> W-7405-eng-26, 1983, 84 p.
7. *Ojovan M. I.* Long-term field and laboratory leaching tests of cemented radioactive wastes / M. I. Ojovan, G. A. Varlackova, Z. I. Golubeva, O. N. Burlaka // *Journal of Hazardous Materials*. — 2011, v. 187, pp 296–302.
8. *Mobasher N.* Gamma irradiation resistance of an early age slag-blended cement matrix for nuclear waste encapsulation / N. Mobasher, S. A. Bernal, H. Kinoshita et al. *J. Mater. Res.*, 2015, v. 30, no 9, pp 1563–1571.
9. *Roy D. M.* High Level Radioactive Waste Incorporation into Special Cements / D. M. Roy, G. G. Gouda. *Nucl. Technol.*, 1978, v. 40, pp 214–219.
10. *Ershov B. G.* Immobilizaciya sredne- i vysokoaktivnyh othodov v cementnuyu matricu: vliyanie oblucheniya na obrazovanie gazov i vyshchelachivanie radionuklidov / B. G. Ershov, T. K. Yurik, G. L. Bykov i dr. *Voprosy radiacionnoj bezopasnosti*, 2008, no 1, S. 3–15. (In Russian).
11. *Vodák F.* Effect of  $\gamma$ -irradiation on strength of concrete for nuclear-safety structures / F. Vodák, K. Trtík, V. Sopko et al. *Cement and concrete research*, 2005, v. 35, no 7, pp 1447–1451.
12. *Vodák F.* Effect of gamma irradiation on properties of hardened cement paste / F. Vodák, V. Vydra, K. Trtík, O. Kapičková. *Materials and structures*, 2011, v. 44, no 1, pp 101–107.
13. *Shejnich L.* Special'nye betony i kompozicionnye materialy / L. Shejnich. *Kapstroitel'tvo*, 2002, no 8, S. 47–49. (In Russian).
14. *Soo P.* The effect of gamma radiation on the strength of Portland cement mortars / P. Soo, L. M. Milian. *Journal of materials science letters*, 2001, v. 20, no 14, pp 1345–1348.
15. *Lowinska-Kluge A.* Effect of gamma irradiation on cement composites observed with XRD and SEM methods in the range of radiation dose 0-1409 MGy / A. Lowinska-Kluge, P. Piszora. *Acta Physica Polonica, Series A. General Physics*, 2008, v. 114, no 2, pp 399–411.
16. *Bykov G. L.* Obrazovanie gazov pri dejstvii  $\gamma$ -izlucheniya na cementnyj material / G. L. Bykov, A. V. Gordeev, T. K. Yurik, B. G. Ershov. *Himiya vysokih ehnergij*, 2008, t. 42, no 3, s. 248–251. (In Russian).
17. GOST R. 50926-96. Othody vysokoaktivnye otverzhdennye. Obshchie tekhnicheskie trebovaniya, M.: Gosstandart Rossii, 1996. (In Russian).
18. *Le Caër S.* Radiolysis of confined water: Hydrogen production at a high dose rate / S. Le Caër, P. Rotureau, F. Brunet, et al. *ChemPhysChem*, 2005, v. 6, no 12, pp 2585–2596.
19. *Ershov B. G.* A model for radiolysis of water and aqueous solutions of H<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> / B. G. Ershov, A. V. Gordeev. *Radiation Physics and Chemistry*, 2008, v. 77, no 8, pp 928–935.
20. *Bouniol P.* A comprehensive model to describe radiolytic processes in cement medium / P. Bouniol, E. Bjergbakke. *Journal of Nuclear Materials*, 2008, v. 372, no 1, pp 1–15.
21. *Le Caër S.* Water radiolysis: influence of oxide surfaces on H<sub>2</sub> production under ionizing radiation / S. Le Caër. *Water*, 2011, v. 3, no 1, pp 235–253.

### Information about the authors

*Varlakov Andrej Petrovich*, Doctor of Sciences, Director of Department, JSC «VNIINM», e-mail: APVarlakov@bochvar.ru.

*Varlakova Galina Andreevna*, PhD, Main Specialist, JSC «VNIINM», e-mail: varlakova@inbox.ru.

*Zherebcov Alexander Anatolevich*, PhD, Head of Department, ITCP «PRORYV», e-mail: zhala@proryv2020.ru.

*Kalmykov Stepan Nikolaevich*, Doctor of Sciences, Acting Dean of Chemical Faculty of MSU, Lomonosov Moscow State University; e-mail: stepan@radio.chem.msu.ru.

*Kapustin Vitalij Vladimirovich*, Lead Engineer, JSC «VNIINM», e-mail: vit4022@gmail.com.

*Petrov Vladimir Gennadevich*, PhD, Associate Professor, Lomonosov Moscow State University, e-mail: vladimir.g.petrov@gmail.com.

*Shirshin Evgenij Alexandrovich*, PhD, Senior Research Officer, Lomonosov Moscow State University, e-mail: eshirshin@gmail.com.

### Bibliographic description

*Varlakov A. P., Kapustin V. V., Varlakova G. A., Zherebtsov A. A., Petrov V. G., Shirshin E. A., Kalmykov S. N.* The effect of radiation doses typical for high-level waste on the properties of the cement matrix. *Radioactive Waste*, no 1 (2), 2018, pp. 89–96 (In Russian).