

УДК 621.039

ПОЛИМЕРКОМПОЗИЦИОННЫЕ МАТРИЦЫ ДЛЯ ЗАХОРОНЕНИЯ РАДИОНУКЛИДНЫХ ИСТОЧНИКОВ ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ*Соболев И.А., Ожован М.И., Баринев А.С., Тимофеев Е.М., Минигалиев Р.М., Качалов М.Б. (МосНПО «Радон»)*

Радионуклидные источники ионизирующего излучения применяются в промышленности, медицине, сельском хозяйстве, научных исследованиях [1]. Их радионуклидный состав широк, часто используют ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{192}Ir , ^{170}Tm , ^{75}Se , среди устаревших источников много ^{226}Ra . Радиоактивность отдельных источников может составлять $\sim 10^{15}$ Бк и выше при малом размере. Отработавшие источники по своим характеристикам могут быть отнесены к отходам высокого уровня активности. Устаревшие и отработавшие источники представляют огромную опасность для окружающей среды и человека [2]. Для их кондиционирования наиболее подходящими матричными материалами являются металлы [3], хотя во многих странах все еще применяется цемент [2]. Включение источников в металлические матрицы, в качестве которых используются, как правило, свинец или сплавы на его основе, позволяет надежно изолировать их от окружающей среды, однако требует соответствующего технологического обеспечения. Передвижные установки кондиционирования отходов с использованием металлических матриц в настоящее время используются только в России [3, 4]. По-видимому, для захоронения высокоактивных источников металлическим матрицам нет альтернативы. Но для не очень мощных источников возможно использование других матриц, не требующих сложного оборудования. Это целесообразно для небольших потребителей источников, не имеющих возможности эксплуатации сложной техники.

Целью настоящей работы является описание возможности кондиционирования источников с использованием полимеркомпозиционных материалов: матриц на основе эпоксидных смол и неорганических наполнителей из цемента или бентонита.

Полимеркомпозиционные материалы. В отличие от однофазных композиционные материалы из двух или более компонентов могут иметь эксплуатационные характеристики, превосходящие каждый из компонентов в отдельности. Так, включение радиоактивных отходов в полимерные материалы ограничено относительно низкой радиационной устойчивостью полимеров. Включение отходов в цементные матрицы ограничено водопроницаемостью цементного камня, пористость которого может достигать 20%, и соответственно возможностью выноса радионуклидов. Композиционные материалы на основе полимера с наполнителем из цементного порошка или бентонита выдерживают дозовые нагрузки в десятки раз большие, чем исходный полимер, сохраняя при этом высокие показатели химической устойчивости.

В качестве матричного материала для кондиционирования источников выбраны композиционные материалы на основе эпоксидной смолы марки ЭД-20 (отвердитель полиэтиленполиамин) и наполнителя из цемента М-400 и -500. Эпоксидная матрица выбрана в связи с ее высокой химической устойчивостью и прочностью, хорошей адгезией отвержденной смолы к материалам капсул источников. Как правило, это различные металлы, но могут быть также стекло, керамика, полимеры. Наполнитель в виде цементного порошка был выбран для поглощения воды в случае возникновения микротрещин в монолитном блоке с источниками при их длительном хранении. Такими же свойствами обладает и бентонитный наполнитель.

Полимеркомпозиционные материалы для испытаний готовили следующим образом. В эпоксидную смолу добавляли наполнитель в количестве от 40 до 80% по массе, перемешивали двухлопастной мешалкой из нержавеющей стали до получения однородной смеси, добавляли от 4 до 10% по массе отвердителя, перемешивали и разливали в металлические формы (кубические емкости размером $3 \times 3 \times 3$ см). Для радиационных испытаний готовили и крупные образцы, представляющие собой цилиндры диаметром 9 и высотой 18 см. Время отверждения образцов составляло от 30 мин до нескольких часов в зависимости от конкретных параметров.

Полученные образцы композитов подвергали воздействию мощных радиационных полей для определения радиационной стойкости. Кроме визуального осмотра и измерения основных параметров после воздействия заданной дозой излучения анализировали количество и состав радиолизных газовыделений. Образцы облучали в центральном канале мощной гамма-облучательной установки марки РХМ-γ-20 с ^{60}Co . Мощность экспозиционной дозы была 7,5 кГр/ч, температура 45 °С. Для анализа радиолизных газов образцы облучали в запаянных стеклянных ампулах. Состав газовых выделений определяли методом газовой хроматографии. В радиолизных газах найдены CO_2 (30%), CH_4 (8%) и H_2 (62%).

Была проведена оптимизация состава композита относительно воздействия радиационных полей. Наилучшим оказался композит следующего состава, % по массе: эпоксидная смола 24, цемент 71, отвердитель 5. Основные параметры полимеркомпозиционного материала, предлагаемого для кондиционирования источников, приведены в табл. 1.

Т а б л и ц а 1. Свойства эпоксидно-цементного композита

Характеристика	Источник [5—8]	Эксперимент	
		до облучения	после облучения
Плотность, г/см ³	—	1,75±0,05	
Прочность, кг/см ²	500—1200	700±100	800±100
Теплостойкость, °С	80—120	300 в течение 1 ч	
Коэффициент термического расширения, 1/°С	(2—6)10 ⁻³	Не измеряли	
Коэффициент теплопроводности, Вт/(м·град)	0,25	Не измеряли	
Пористость, %	0,2—1,5	0,05	1,0
Морозостойкость, цикл	300	Не определяли	
Адгезия, кг/см ²	20—100	Сильная	Теряется свыше 3 ¹⁰ Гр
Радиационно-химический выход газов, мол./100 эВ	—	—	0,023
Радиационная стойкость, Гр	10 ⁹ —10 ¹⁰	—	(9±1)10 ⁷

При поглощенной дозе до 10⁸ Гр существенных изменений структуры образцов нет. Происходит их почернение, связанное, видимо, с радиационной деструкцией полимерных цепей на фоне их дополнительной радиационной шивки. Ни на поверхности, ни в объеме трещин не наблюдалось. При поглощенной дозе выше 10¹⁸ Гр происходит вспучивание образцов, что, по-видимому, связано с интенсивным газовыделением.

Эпоксидно-цементный полимеркомпозит гидрофобен, причем это свойство не теряется при облучении образцов. Способность к самозалечиванию трещин сохраняется и в случае выгорания полимерного связующего. При лабораторных испытаниях цемент не терял вяжущих свойств после отжига образцов при 600 °С, когда полимер выгорал полностью. Химическая стойкость композита оценивается по десятибальной шкале относительно воздействия различных агрессивных реагентов (табл. 2) [8].

Т а б л и ц а 2. Химическая стойкость эпоксидно-цементного композита

Материал	Обычный бетон	Полимеркомпозит
Кислота	1	9
Щелочь	9	8
Соль	5	10

Ограничения на радиоактивность источников. Максимально допустимую радиоактивность источников при их фиксации в полимеркомпозитную матрицу можно определить для каждого радионуклида, так чтобы суммарно набранная доза излучения за весь срок хранения не превышала радиационную прочность матрицы. Пусть $P(0)$ — начальная мощность поглощенной дозы вблизи источника, $T_{1/2}$ — период полураспада радионуклида. Тогда суммарная доза вблизи источника за все время $D = (\ln 2)^{-1} P(0) T_{1/2}$. Считая источник точечным с грамм-эквивалентом m , с некоторым приближением для начальной мощности поглощенной дозы (рад/ч) можем полагать $P(0) = 8,4mr^{-2}$, где $r \sim 1$ см — размер источника. Тогда верхним ограничением на радиоактивность каждого источника (выраженную в г·экв. радия) служит условие $m \leq (r^2/12,1T_{1/2})D_0$, где радиационная стойкость матрицы измеряется в единицах рад, размер источника в см и период полураспада в ч (табл. 3). При превышении указанной радиоактивности каким-то источником матрица не выдержит дозовой нагрузки, т.е. начнутся локальные разрушения слоя полимеркомпозита, окружающего данный источник.

Т а б л и ц а 3. Максимально допустимая радиоактивность отдельных источников

Радионуклид	Период полураспада, ч	Максимальная радиоактивность	
		мг·экв.Ра	мКи
⁶⁰ Co	$4,62 \cdot 10^4$	16100	10520
¹³⁷ Cs	$2,65 \cdot 10^5$	2817	7300
²²⁶ Ra	$1,40 \cdot 10^7$	53	49

Ограничения на суммарную радиоактивность всех источников. Очевидно, имеется ограничение на суммарную радиоактивность включенных в монолитный блок полимеркомпозита источников, связанное с радиогенным тепловыделением. Увеличение температуры за счет распада радионуклидов и последующего поглощения излучения матрицей не должно превышать тепловую стойкость матрицы T_0 . Следовательно, суммарная радиоактивность всех источников A внутри монолитного цилиндра высотой h [3] $A \leq \epsilon^{-1} \pi k T_0 h$, где ϵ — средняя энергия одного распада; k — коэффициент теплопроводности материала, окружающего цилиндр. Предполагается, что радиальное изменение температуры внутри цилиндрического хранилища несущественно. Значение $k = (2,8 \pm 0,3)$ Вт/(м·К) было найдено для типовых хранилищ в имитационных экспериментах [9]. Учитывая, что $h = 150$ см, можно найти ограничения на A для типовых хранилищ. В табл. 4 приведена максимально допустимая суммарная активность всех источников, фиксируемых внутри типового хранилища в полимеркомпозитную матрицу. Для теплостойкости принималось $T_0 = 80$ °С.

Т а б л и ц а 4. Максимально допустимая радиоактивность всех источников в типовом хранилище

Радионуклид	Энергия распада, МэВ	Максимальная радиоактивность	
		г·экв.Ра	Ки
⁶⁰ Co	2,5	108500	70930
¹³⁷ Cs	0,56	122220	316682
²²⁶ Ra	1,76	108327	100773

Для других хранилищ, отличающихся конструкционными параметрами от типовых, ограничения на максимальную радиоактивность будут другие.

Опытное захоронение источников с использованием полимеркомпозитного материала. В 1985 г. в МосНПО «Радон» было проведено опытное захоронение пяти партий источников суммарной радиоактивностью 6630 Ки в одном из эксплуатируемых типовых хранилищ с их включением в полимеркомпозитную матрицу непосредственно в приемном резервуаре хранилища: в этом случае удачно используется радиационная защита самого хранилища. Кроме того, кондиционирование источников непосредственно в подземных резервуарах позволяет вести их предварительное накопление с эпизодическим (по мере необходимости) включением в матрицу. Матричный материал подавали в приемный резервуар хранилища через гибкий рукав. В отличие от известного метода [3] при проведении работ дополнительную газоочистку не проводили. Загрязнения радионуклидами при этом не зарегистрировано.

Всего включено в полимеркомпозиционный материал 569 отработавших источников, в том числе ^{60}Co 7, ^{137}Cs 28, ^{226}Ra 1, ^{170}Tm 5, ^{192}Ir 525, ^{75}Se 3. В подземном резервуаре получен блок объемом 130 дм³ (табл. 5).

Т а б л и ц а 5. Параметры типового хранилища при включении источников в композит

Характеристика	До включения	После включения
Концентрация водорода, % по объему	0,5—3,1	0
Температура, °С	10	10
Мощность дозы, кР/ч	800	2,8

Последующие наблюдения за состоянием хранилища показали отсутствие газоуделения. Полимеркомпозитный материал изолирует источники от возможного проникновения в хранилище воды и служит надежным барьером на пути выхода радионуклидов.

Таким образом, если радиоактивность отдельных источников невысока и их суммарная радиоактивность небольшая, использование полимеркомпозитных матричных материалов представляется возможным решением проблемы кондиционирования. Эпоксидно-цементные композиты с цементным или бентонитным наполнителем доступны, дешевы, просты в обращении, не требуют дополнительных газоочистных и защитных сооружений. Для небольших потребителей источников, по-видимому, наибольшую перспективу представляют именно эти матричные материалы. Они могут быть успешно использованы при изоляции от окружающей среды устаревших источников ионизирующего излучения, например, содержащих ^{226}Ra [10].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Череватенко Г.А., Чистов Е.Д., Кодюков В.М. Радионуклидные источники в радиационной технике. М.: Энергоатомиздат, 1989. 290 с.
2. Nature and magnitude of the problem of spent radiation sources. Vienna: IAEA, 1991, TECDOC-620, 182 p.
3. Соболев И.А., Арустамов А.Э., Ожован М.И. и др. Захоронение высокоактивных отработавших источников ионизирующего излучения в металлические матрицы. — Атомная энергия, 1989, т. 66, вып. 3, с. 340—342.
4. Ojovan M.I., Sobolev I.A., Kachalov M.B. et al. Mobile unit for high active spent radiation sources immobilization. — In: Proc. Intern. Conf. on Nuclear Waste Management and Environmental Remediation, Prague, Sept. 5—11, 1993, v. 1, p. 155—157.
5. Радиационная стойкость материалов. Справочник. Под ред. В.Б. Дубровского. М.: Атомиздат, 1973.
6. Волберов А.А., Соловьев В.Н. Влияние степени наполнения на изменение свойств эпоксидных композиций после γ -облучения. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Проектирование и строительство, 1978, вып. 2, с. 125—127.
7. Соломатов В.И. Полимерцементные бетоны и пластибетоны. М., 1967.
8. Энциклопедия полимеров. М.: Химия, 1974, с. 882—883.

9. Кашеев В.А., Ожован М.И., Полуэктов П.П. и др. Физическое моделирование термических нагрузок в приповерхностном хранилище отработавших высокоактивных источников ионизирующего излучения. — Атомная энергия, 1990, т. 69, вып. 1, с. 20—23.
10. Petterson B. Improving the management of spent radiation sources. — Intern. Atomic Energy Agency Bulletin, 1992, v. 34, № 3, p. 19—23.

Поступила в Редакцию 10.09.93

УДК 539.1.073/074:678.55:631.41

ТРЕКОВЫЙ ДЕТЕКТОР НА ОСНОВЕ ПЛАСТИКА CR-39 ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЙ α -АКТИВНЫХ ГРУНТОВ В НАТУРНЫХ УСЛОВИЯХ

*Книжник Е.И., Прокопенко В.С., Столяров С.В., Токаревский В.В.
(Отделение проблем атомной энергетики ИЯИ АН Украины)*

α -Загрязнение грунта после аварии на Чернобыльской АЭС остается актуальным вследствие длительной химической, радиационной опасности радионуклидов реакторного выброса [1], наличия в продуктах выброса α -активных горячих частиц топливного происхождения [2—9], возможности разрушения матриц топливных частиц под действием внешней среды [5, 10, 11], биологических эффектов [6] и самооблучения [12] с последующим выходом α -излучающих радионуклидов в окружающую среду, потенциальной опасности загрязнения ими территории вне зоны аварии [1—4, 6—8, 12—14].

Для наиболее существенных к 1990 г. α -излучающих радионуклидов $^{238-241}\text{Pu}$, $^{241, 243}\text{Am}$, $^{243, 244}\text{Cm}$, $^{236, 238}\text{U}$ область энергии составляет 4,15—6,06 МэВ [15]. Энергия α -частиц, испускаемых природными газообразными α -излучателями — ^{222}Rn , ^{220}Rn и дочерними продуктами их распада, находится в интервале 5,30—8,78 МэВ [16]. Широкий диапазон энергии (0,1—20 МэВ [16]) α -частиц, формирующих распознаваемые треки в пластике CR-39, и высокая эффективность их регистрации (0,95 [17]) обуславливают применение пластика в качестве материала диэлектрических трековых детекторов как в исследованиях α -загрязнения почвы [3, 7, 9, 18—20], так и при дозиметрии радона [16].

Измерение α -активности грунта в натуральных условиях имеет преимущества по сравнению со стандартной методикой, предусматривающей проведение трудоемких процедур (отбора проб, нередко обладающих высокой γ -, β - и α -активностью, с помощью специального отборника, их транспортировки к лабораторным помещениям, приготовления образцов для испытаний, включающего удаление камней и остатков растений, сушку, измельчение и просеивание через сито, хранения радиоактивных проб и образцов в определенных условиях, разработки и изготовления стандартизованных образцов сравнения и эталонов [21]).

Целью настоящей работы является разработка простой и надежной конструкции трекового детектора на основе пластика CR-39, пригодного для экспонирования непосредственно на α -активном грунте, в частности, зоны аварии на Чернобыльской АЭС без пробоотбора.

Методика определения абсолютной α -активности. Основной методической трудностью широкого использования трековых детекторов в натуральных исследованиях α -активного грунта является переход от числа зарегистрированных треков к удельной активности грунта или плотности поверхностного загрязнения, например в Ки/км², широко применяемой при составлении карт радиоактивного загрязнения территории. По существу проблема сводится к обоснованию представительности измерения, так как анализируемая детектором поверхность имеет площадь 1 см² и глубину до нескольких десятков микрометров. Распространение результатов измерений на требуемые площадь и глубину должно быть метрологически обосновано.