Study of The Possibility of Radioactive Waste Cementation By Different Types of Improved Iraqi Cement

دراسة امكانية استخدام السمنت العراقي في سمنتة النفايات المشعة بعد اضافة المحسنات الكيمياوية

محسن عباس مشاي د.احمد محمد سعيد عامر موسى جبر
جمال رحيم علوان على عباس حبيب
وزارة العلوم والتكنولوجيا / مديرية معاملة وادارة النفايات المشعة

الخلاصة

في هذا البحث تم دراسة امكانية استخدام السمنت العراقي انتاج الشركة العامة للسمنت العراقية (معمل القائم AL-Qaim plant) بنوعية السمنت البورتلاندي العادي والسمنت المقاوم للاملاح في عملية السمنتة لتكييف النفايات المشعة ذات المستوئ الاشعاعي الواطئ والمتوسط.تم تحضير نماذج بنسب وزنية مختلفة (Water/Cement ratio: 0.62 ,0.55 ,0.44) بشكل مكعب طول ضلعة (50 mm) وتم اضافة المحسنات الكيمياوية بنسب وزنية مختلفة (Fly ash/Cement ratio: 0.2 ,0.3,0.5) وكذلك اضافة المحسنات الكيمياوية نوع توب فلوSP703,SP603 بنسبة (1 liter/100 Kg Cement) ، زمن الخلط (30 min) .

اظهرت النتائج التي تم التوصل اليها ان اعلى مقاومة انضغاط بعد 28 يوم من تاريخ تحضير النماذج تكون عند استخدام السمنت البورتلاندي الاعتيادي مقارنة بالسمنت المقاوم للاملاح وان مقاومة الانضغاط تزداد باضافة المحسنات الكيمياوية .

الكلمات الدالة: السمنتة ، النفايات المشعة، التصليد، السمنت البورتلاندي، الرماد المتطاير

Abstract

In the present work study of the possibility of radioactive waste cementation by using ordinary portland cement and Sulphate resisting cement obtained from Iraqi cement state company (AL-Qaim plant) .The solidified samples prepared with different weight (Water/Cement ratio: 0.62 ,0.55 ,0.44) into cubic of length 50 mm .The chemical additives (Fly ash/Cement ratio: 0.2 ,0.3,0.5) and Topflow SP703,SP603 with (1 liter/100 Kg cement).Resulting mixture were stirred for 30 min.The result showed that the maximum compressive strength after 28 days from preparation of specimens when used ordinary Portland cement and increases with chemical additives .

Keywords: Cementation; radioactive waste; immobilization ;Portland cement ;Fly ash

المقدمة

عملية سمنتة النفايات المشعة من الطرق الشائعة لتهيئة النفايات فهي طريقة رخيصة لاحتواء انواع مختلفة من النفايات المشعة لضمان شكل امن ومناسب للخزن والنقل والطمر وتتم في درجات حرارة اعتيادية ويتميز المنتج بأستقرار حراري واستقرار كيميائي [1] .استخدم السمنت البورتلاندي منذ الخمسينات في معاملة المواد الخطرة الموجودة في الاوحال و الرواسب عن طريق تصليدها او كبسلتها (Encapsulation) [2] . عند تصليد النفايات بطريقة الخرسنة يجب الالتزام بانواع السمنت البورتلاندي المناسبة للنوع المعين من النفايات وعند تصليد نفايات تتضمن كميات من الماء يجب ان تؤخذ نسبة الماء الموجودة في النفايات في الحسبان عند حساب كمية الماء اللازمة للخرسنة ولا يجوز اضافة اية كمية زائدة من الماء فوق النسبة المقررة حتى لا تقل جودة الخرسنة وقدرتها على التماسك [3] .استعملت السمنتة على نطاق واسع في الولايات المتحدة الامريكية لتصليد السوائل العضوية المشعة (زيت التوربينات ، زيت المضخات ، ...الخ) ، التركيب المكون للنفايات المصلدة بحجم 200 لتر كانت (165 كغم سمنت بورتلاندي ، 17 كغم كلس ، 27 لتر زيت ، 14 لتر ماء ، 7 لتر سليكا) [4] .يتميز السمنت البورتلاندي بالمعايير المقبولة في تصليد النفايات المشعة وذلك بسبب كلفتة المنخفضة وكثافتة العالية وقوة التحمل وسهولة تقنيات استخدامة في المعاملة ، تم تصليد المركبات (Polyacrylamide-Zeolite and polyacrylamide-bentonite) المحملة بالنويدات المشعة السيزيوم او الكوبلت مع الاسمنت البورتلاندي الاعتيادي (OPC) وتم اجراء فحوصات مقاومة الانضغاط لها [5] .

تم دراسة تأثير مكونات الخبطة (نسبة الماء الى السمنت ونسبة المحسنات الكيمياوية المضافة) على الخواص الميكانيكية للخبطة ، حيث تم استخدام المحسنات (Fly ash , penetron admix) وبنسب اضافة مختلفة واجراء الفحوصات الميكانيكية .[6]

اضافة الرمل الابيض (White sand) بنسبة وزنية 20% الى السمنت البورتلاندي الاعتيادي (OPC) يزيد من مقاومة الانضغاط مما ساعد في استخدامة لسمنتة النفايات المشعة السائلة (LLW) الحاوية على السيزيوم 137.[7] .
في البحث الحالي تم دراسة استخدام السمنت العراقي بنوعية العادي والمقاوم مع استخدام المحسنات الكيمياوية للوصول الى افضل نسبة خلط بين الماء الى السمنت وكذلك نسبة اضافة المحسنات واجراء الفحوصات المختبرية المتضمنة قياس مقاومة الانضغاط والكثافة ليتسنى لنا استخدامه في معاملة النفايات المشعة في محطة معاملة النفايات المشعة في التويثة .

الجزء العملي

المواد المستخدمة في البحث

- **مادة الاسمنت** :الاسمنت المستخدم في هذه الدراسة هو الاسمنت العراقي البورتلاندي الاعتيادي والاسمنت البورتلاندي المقاوم للاملاح بموجب المواصفة العراقية رقم (5) لسنة 1984 المنتج من قبل معمل القائم (AL-Qaim plant) يوضح الجدول رقم (1) شهادة فحص السمنت المنتج.
- **Fly ash** : الرماد المتطاير يتكون من الجزء غير المحترق (غير المستهلك) عند حرق الفحم الحجري في افران انتاج الطاقة حيث يتم استهلاك الكربون وتبقى حبيبات معدنية ناعمة غنية بالسليكا ، الالومينا والكالسيوم تتصلب على شكل كرات زجاجية دقيقة جدا لا يمتلك خواص إسمنتية لكن في وجود الماء يتفاعل مع هيدروكسيد الكالسيوم في درجة الحرارة العادية لتعطي مركبات تمتلك الخواص الاسمنتية [8]. عند عملية اماهة الاسمنت يتكون هيدروكسيد الكالسيوم بنسبة 20% من وزن الاسمنت الذي لا يكسب الخرسانة صفة المقاومة ، عند اضافة مادة الرماد المتطاير يتفاعل مع هيدروكسيد الكالسيوم ليكون مركب اسمنتي (كالسيوم سيليكات هايدرات). تم احضاره من السوق المحلية:

Portland cement(PC) +water(H_2O) =
Calcium Silicate Hydrate (Durable binder)+Free lime (CaOH)(Non durable)
PC+Water+Fly ash= Calcium Silicate Hydrate

من خلال المعادلات اعلاه نجد ان الرماد المتطاير يتفاعل مع الجير ليعطي نفس المركب الاسمنتي الناتج من عملية اماهة الاسمنت.
- **توب فلو SP 703,SP603** : توب فلو SP703 SP603 عبارة عن مضاف خرساني عالي الاداء جاهز للاستعمال خالي من الكلوريدات يتكون اساسا من مادة السولفينيت نفثالين مع مضافات اخرى لانتاج خرسانة عالية المقاومة .مواصفات المنتج حسب المواصفة الامريكية ASTM C494 :

خواص توب فلو SP 703

المظهر	سائل بني غامق او اسود
الكثافة النوعية	1.235 عند 25^0 C
محتوى الكلوريد	لاشى
التجمد المفاجئ	غير متوقع

خواص توب فلو SP 603

المظهر	سائل بني غامق او اسود
الكثافة النوعية	1.21عند 25^0 C
محتوى الكلوريد	لاشى
التجمد المفاجئ	غير متوقع

- **الماء المقطر :** تم تحضيره في المختبر باستخدام جهاز تقطير .

الاجهزة المستخدمة :

- جهاز قياس مقاومة الانضغاط (Compression Machine, Humboldt,2000KN) الشكل رقم (1).
- خلاط اسمنتي ميكانيكي سعة 5 لتر، الشكل رقم (2).
- قوالب فولاذية لصب النماذج ، الشكل رقم (3).
- جهاز طرد الفقاعات الهوائية (Vibrator).

تحضير النماذج :

اولا - تم خلط المزيج (اسمنت + ماء مقطر) باستخدام خلاط ميكانيكي لغرض الحصول على مزيج متجانس لفترة زمنية 30 دقيقة وبنسبة اضافة (W/C ratio : 0.62 0.5 ,0.44) ، يلي ذلك صب المزيج في قوالب بشكل مكعبات ذات طول ضلع (50 mm) ثم توضع على جهاز طرد الفقاعات الهوائية فترة 10 دقائق وتترك في القوالب لمدة 24 ساعة بعد ذلك تتم عملية تجفيف النماذج بالظروف الاعتيادية درجة حرارة الغرفة لمدة 28 يوم . تم استخدام السمنت البورتلاندي الاعتيادي والسمنت المقاوم للاملاح بالتجربة الاولى .

ثانيا- خلط المزيج (اسمنت +ماء مقطر + رماد متطاير) باستخدام الخلاط الميكانيكي لفترة زمنية 30 دقيقة وبنسب اضافة :

(W/C ratio : 0.62 0.5 ,0.44)

(Fly ash/C ratio : 0.2 , 0.3 ,0.5)

يصب المزيج في نفس القوالب وتوضع على جهاز طرد الفقاعات الهوائية وتترك لفترة 24 ساعة ثم تجفف تحت الظروف الاعتيادية درجة حرارة الغرفة لمدة 28 يوم.

ثالثا- خلط المزيج (اسمنت +ماء+ توب فلو703 SP) في الخلاط الميكانيكي لفترة زمنية 30 دقيقة وبنسب اضافة :

(W/C ratio : 0.62 0.5 ,0.44)

(1 Liter SP 703/100Kg cement)

تصب المزيج في نفس القوالب وتوضع على جهاز طرد الفقاعات الهوائية وتترك لفترة 24 ساعة ثم تجفف تحت الظروف الاعتيادية درجة حرارة الغرفة لمدة 28 يوم.

رابعا- خلط المزيج (اسمنت +ماء+ توب فلو603 SP) في الخلاط الميكانيكي لفترة زمنية 30 دقيقة وبنسب اضافة :

(W/C ratio : 0.62 0.5 ,0.44)

(1 Liter SP 603/100Kg cement)

يصب المزيج في نفس القوالب وتوضع على جهاز طرد الفقاعات الهوائية وتترك لفترة 24 ساعة ثم تجفف تحت الظروف الاعتيادية درجة حرارة الغرفة لمدة 28 يوم . الشكل رقم (4) يوضح بعض النماذج المحضرة .

النتائج والمناقشة :

اجريت فحوصات مقاومة الانضغاط في وزارة الاعمار والاسكان/ مركز بحوث البناء للنماذج المحضرة بشكل مكعبات ذات طول ضلع (50 mm) كما في الجدول رقم (2) ، (3) ، تعتبر مقاومة الانضغاط من اهم الخواص الاسمنتية ولهذه الصفة ارتباط وثيق بالبنية المجهرية للاسمنت ولها تاثير على الخواص الاخرى كالمرونة والنفاذية. وتبين من خلال الفحوصات ان مقاومة الانضغاط تزداد كلما قلت نسبة (Water/ cement) من (0.62 -0.44) هذا بالنسبة للسمنت البورتلاندي الاعتيادي والسمنت المقاوم للاملاح ، الشكل رقم (5) يبين بان مقاومة الانضغاط للسمنت البورتلاندي الاعتيادي (OPC) اعلى مما هو عليه في حالة استخدام السمنت المقاوم للاملاح وهذه النماذج حضرت بدون استخدام محسنات كيمياوية .الشكل رقم (6) تم استخدام نفس نسب الاضافة (W/C) لكلا النوعين من الاسمنت لكن تم اضافة مواد محسنه هي (fly ash) بنسبة اضافة (fly ash/cement ratio =0.3) نجد ان مقاومة الانضغاط تزداد لكلا النوعين من الاسمنت الا انه تبقى مقاومة الانضغاط للسمنت البورتلاندي الاعتيادي اعلى من السمنت المقاوم للاملاح .الشكل رقم (7) تم استخدام مواد محسنه اخرى هي توب فلو SP703 ونلاحظ نفس النتائج التي ظهرت في الحالة السابقة وهو زيادة مقاومة الانضغاط للسمنت البورتلاندي الاعتيادي اعلى من السمنت المقاوم للاملاح .وكذلك الشكل رقم (8) يبين نفس النتائج اعلاه باستخدام المحسن الكيمياوي توب فلو SP603.من النتائج اعلاه نلاحظ بان اعلى مقاومة انضغاط نحصل عليها في حالة استخدام السمنت البورتلاندي الاعتيادي واستخدام المحسن الكيمياوي نوع توب فلو SP703.بما ان المادة المحسنه الشائعة الاستخدام في تحسين مقاومة الانضغاط هي fly ash ، تم اختبار استخدامه بنسب مختلفة مع السمنت البورتلاندي الاعتيادي (fly ash / cement ratio =0.2,0.3,0.5) ولنفس نسب اضافة الماء الى السمنت ، نلاحظ ان مقاومة الانضغاط تزداد بزيادة نسبة الاضافة للمادة المحسنة كما في الشكل رقم(9).

الاستنتاجات والتوصيات :

- تم مقارنة نتائج البحث مع نتائج عالمية [6] وكانت متقاربة ، حيث ان مقاومة الانضغاط عند استخدام نسبة الماء الى السمنت (0.62, 0.5, 0.44) كانت (22,15, 30) على التوالي وعند استخدام الرماد المتطاير بنسبة 0.3 كانت مقاومة الانضغاط (20.9, 33.4, 33.8) وهي قريبة من نتائج البحث كما في الجدول رقم (2) .
- في حالة استخدام السمنت البورتلاندي الاعتيادي كمادة مصلدة للنفايات المشعة بدون استخدام المحسنات الكيمياوية نوصي باستخدام نسبة الماء الى السمنت (W/C ratio = 0.5) وذلك لسهولة تشكيل وانسيابية الخلطة وكذلك تعطينا مقاومة انضغاط ملائمة ومعتمدة
- في حال استخدام مواد محسنه نوصي باستخدام مادة fly ash كونها معتمدة عالميا وبنسبة اضافة (fly ash /cement ratio = 0.3) لنسبة الماء الى السمنت 0.5 حيث تعطي مقاومة انضغاط ملائمة جدا.

المصادر :

1- Treatment Center for Radoactive Waste (NUKEM Technology GmbH 2007) .
2- http://www.energy savingtrust.org.uk/ Help-and support/green-homes-service.
3- Cementation of Radioactive Waste (NUKEM Technology GmbH 2007).
4- Treatment and Conditioning of radioactive organic liquids (IAEA-TECDOC-656).
5- M.I.El-Dessouky ,E.,H.El -Masry,A.M.El-Kamash and M.F.El-shahat (2012) "Leaching and mechanical properties of cement-polyacrylamide composite developed as matrices for immobilization of Cs^{137} and Co^{60} radionuclides.New York Science Journal ;5(12) (114-119).
6- G.Abramenkova ,M.Klavins (2009) "Radioactive waste cementation during decommissioning of salaspils research reactor-9188"WM2009 Conference,March
1- 5,2009,phoenix,AZ (1-8).
7- M.S.Sayed and Magdy M.Khattab (2010)"Immobilization of liquid radioactive wastes by hardened blended cement-white sand pastes"Journal of American Science ;6(7);334-341.
8- Herry Poernomo (2011) "Preliminary study of the utilization plant for immobilization of radioactive waste" Indo.J.Chem.;11(3); 258-

Table (1) produce cement certificate

Chemical requirements				
	unit	I.O.S.NO.5/1984	Ordinary	Sulphate rrsisting
L.I.O	%	Max. 4	1.4	0.8
Ins.resd.	%	Max. 1.5	0.36	0.32
SO_3 *	%	Max..		
		Ordinary 2.8	2.49	
		S.R 2.5		2.15
MgO	%	Max. 5	2.75	1.35
C3A **	%	Max. 3.5		2.3
A/F	%	Min. 8		
L.S.F		0.66 - 1.02	0.87	0.88
Physical requirements				
Blane		Min		
	M^2/Kg	Ordinary 230	325	
		S.R 250		300
I.S.T	Min	Min. 45	160	155
F.S.T	HR	Max. 10	3.25	3.5
Comp.ST.	MN/m^2			
3d		Min. 15	22	23.5
7d		Min. 23	31.5	23.5
Aut.	%	Max. 0.8	0.1	0.09
Whitenss	%	Min. 78		

* 2.8 when C3A > 5%

* 2.5 when C3A <5%

** For S.R.Cement

شهادة فحص السمنت المنتج ماخوذة من الشركة العامة للسمنت العراقية .

الشكل (1) جهاز قياس الانضغاط

(2) خلاط الاسمنت

الشكل رقم (4) النماذج المحضرة

الشكل (3) قوالب الصب

Table (2) Density and compressive strength of samples

(Ordinary Portland cement)

Exp. No.	Water/ Cement ratio	Flay ash/ Cement ratio	Top flow SP 703 1Liter/100Kg Cement	Top flow SP 603 1Liter/100Kg Cement	Density g/Cm^3	Compressive strength N/mm^2
1	0.62				1.536	13
2	0.5				1.571	14
3	0.44				1.769	23
4	0.62	0.2			1.540	15
5	0.5	0.2			1.652	16
6	0.44	0.2			1.811	28
7	0.62	0.3			1.617	21
8	0.5	0.3			1.675	22
9	0.44	0.3			1.812	29
10	0.62	0.5			1.675	29
11	0.5	0.5			1.731	31
12	0.44	0.5			1.870	40
13	0.62		√		1.759	20
14	0.5		√		1.795	34
15	0.44		√		1.860	42
16	0.62			√	1.702	20
17	0.5			√	1.640	22
18	0.44			√	1.910	39

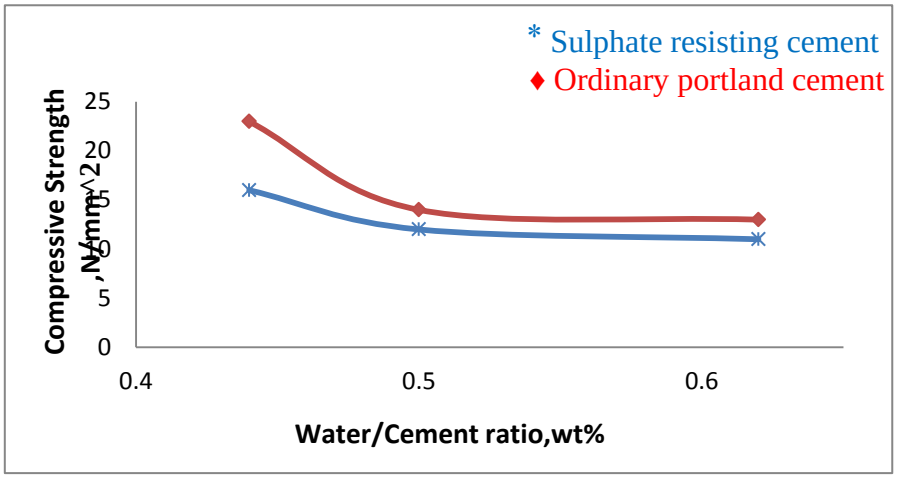
samples with size 5cm x5cm x 5cm after 28 days solidification

Table (3) Density and compressive strength of samples

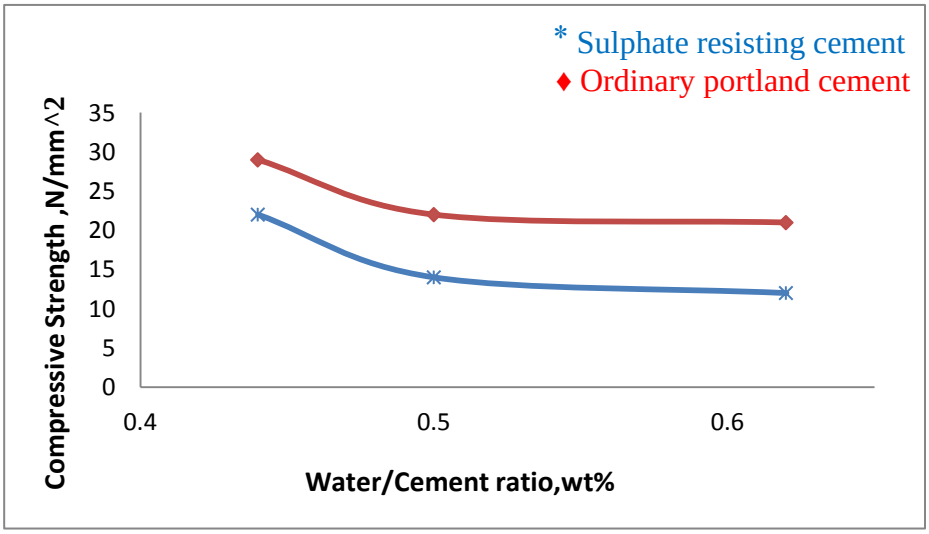
(Sulphate resisting cement)

Exp. No.	Water/ Cement ratio	Flay ash/ Cement ratio	Top flow SP 703 1Liter/100Kg Cement	Top flow SP 603 1Liter/100Kg Cement	Density g/Cm^3	Compressive strength N/mm^2
1	0.62				1.41	11
2	0.5				1.443	12
3	0.44				1.489	16
4	0.62	0.3			1.496	12
5	0.5	0.3			1.538	14
6	0.44	0.3			1.718	22
7	0.62		√		1.561	8
8	0.5		√		1.623	16
9	0.44		√		1.693	19
10	0.62			√	1.603	18
11	0.5			√	1.641	20
12	0.44			√	1.843	28

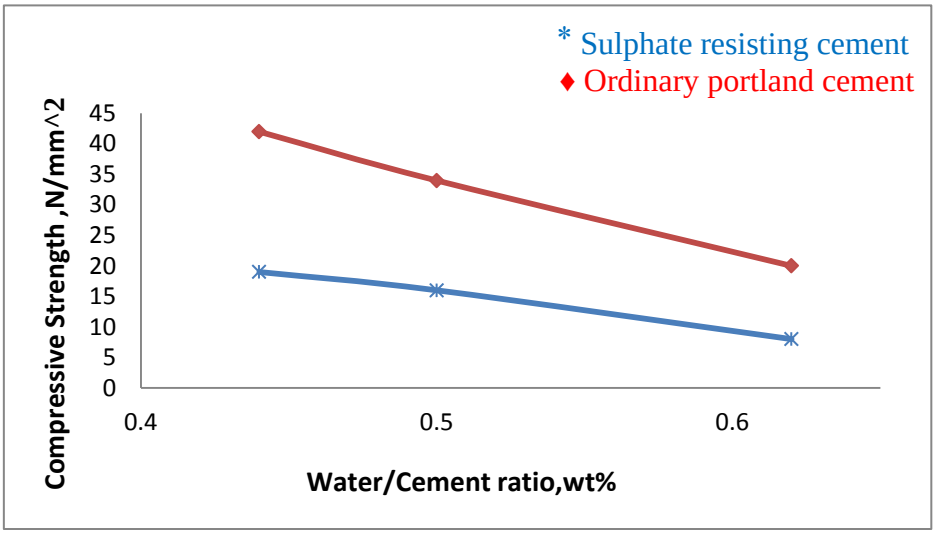
samples with size 5cm x5cm x 5cm after 28 days solidification



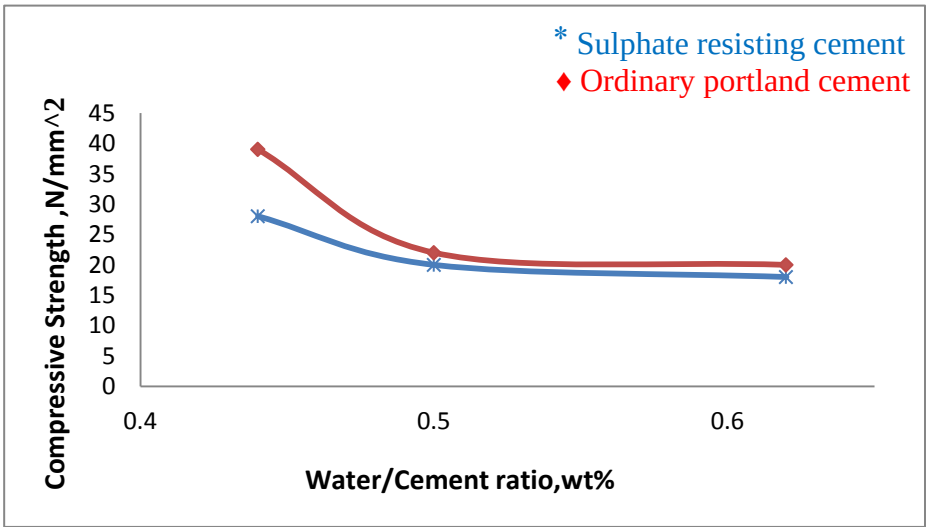
Fig(5) effect of W/C ratio against compressive strength of the solidified samples (without additives)



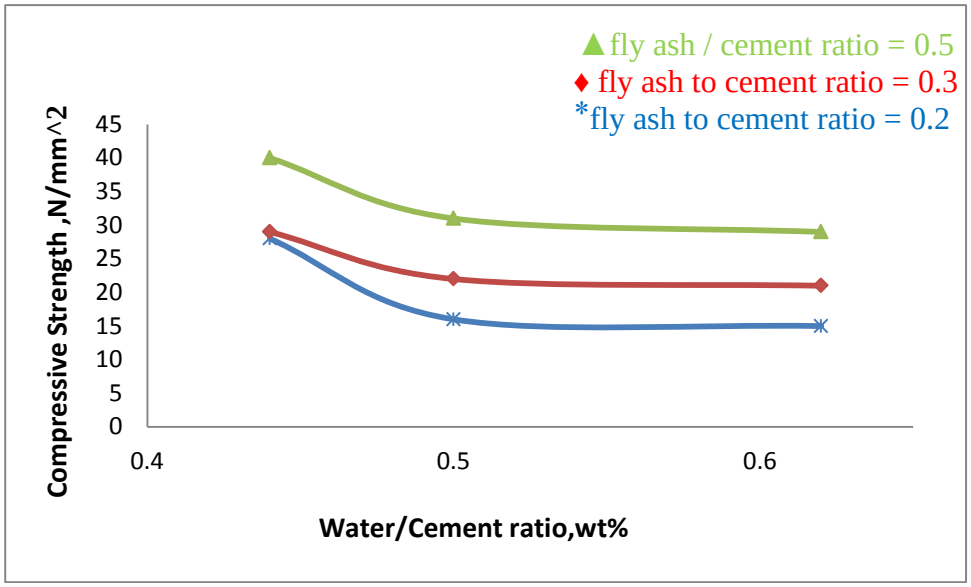
Fig(6) effect of W/C ratio against compressive strength of the solidified samples (with fly ash/cement ratio =0.3)



Fig(7) effect of W/C ratio against compressive strength of the solidified samples (with Top flow SP703)



Fig(8) effect of W/C ratio against compressive strength of the solidified samples (with Top flow SP603)



Fig(9) effect of W/C ratio against compressive strength of the solidified samples

(Ordinary Portland cement)