Study of Leaching and Mechanical Properties for Immobilization of Radioactive Waste
دراسة التسرب والخواص الميكانيكية للنفايات المشعة المصلدة

عامرموسى جبر محسن عباس مشاي علي عباس حبيب
جمال رحيم علوان جاسم محمد حسن
وزارة العلوم والتكنولوجيا / مديرية معاملة وادارة النفايات المشعة

الخلاصة

في هذا البحث تم دراسة التسرب والخواص الميكانيكية لعينات النفايات المشعة المصلدة باستخدام الاسمنت البورتلاندي الاعتيادي انتاج الشركة العامة للسمنت العراقية المضاف اليه الرماد المتطاير (fly ash/cement ratio =0.3) وبنسب تحميل وزنية (5% ,10% , 15% ,20% ,25%) من النفايات المشعة الصلبة (الرزن) والراسب (sludge) الناتج من اجراء المعاملة بالترسيب الكيميائي للنفايات السائلة .
واظهرت النتائج ان مقاومة الانضغاط للنماذج تزداد كلما قلت نسبة تحميل الملوثات وتكون اعلى في النماذج الحاوية على النفايات المشعة الصلبة (الرزن) من المحملة بالراسب .وتم مقارنة التسرب للنويدات المشعة من النماذج اعتمادا على نسب التحميل الوزنية من النفايات المشعة وكذلك لنفس النموذج لفترات زمنية متباعدة.
الكلمات الدالة: السمنتة ، النفايات المشعة، التصليد، التسرب

Abstract

the present work is a study of leaching and mechanical properties of radioactive waste solidified by cementation using ordinary Portland cement produced by Iraqi cement state company with fly ash (fly ash/cement ratio :0.3) , using different radioactive waste loading capacity (5% ,10% ,15% ,20% ,25% solid and sludge wt%) .

The results showed that the compressive strength increases as the waste loading capacity decreases .a comparison was made between leaching of radioactive nuclides from specimens of different loading capacity for the same period of time apart for readings. It was found that leaching proportional with loading capacity.
Keywords: Cementation; radioactive waste; immobilization ;leaching test

المقدمة

يعتبر الاسمنت من اكثر المواد المستخدمة لتصليد النفايات المشعة ذات المستوى الاشعاعي الواطئ والمتوسط ،وينبغي ان تكون النفايات المصلدة (solidified block) تمتلك خصائص ملائمة لتتحمل ظروف الخزن والنقل والطمر،ولتحقيق ذلك تضاف بعض المواد الكيمياوية الى الخلطة الاسمنتية لضمان متطلبات السلامة.التخلص من النفايات المشعة ذات النشاط الاشعاعي الواطئ والمتوسط في الارض وباعماق ضحلة يعتمد على احتواء وتصليد هذه النفايات بالاسمنت والمواد المحسنة مع ذلك يمكن للنويدات المشعة التسرب من العبوات عند ملامستها للمياه وبالتالي هناك اهتمام كبير لفهم انتشار النويدات المشعة من خلال النفايات المشعة المصلدة بالاسمنت اوالتي يتم احتوائها .هناك العديد من الباحثين الذين درسوا ظاهرة التسرب للنويدات المشعة باستخدام طرق مختلفة [1,2]. Pescatore درس ظاهرة التسرب للنويدات المشعة لنماذج مصلدة بشكل (cylindrical and cubical) [3] الباحث M.Abdel Geleel[8] قام بتحسين مقاومة الانضغاط للنفايات المشعة المصلدة بالاسمنت والحاوية على البنتونايت الذي يعتبر ذو سعة امتصاص عالية للكوبلت والسيزيوم بطلاءه بحامض الاكريليك او الستايرين وخلطة مع الاسمنت ولوحظ ان مقاومة الانضغاط للسمنت البورتلاندي المخلوط بنسبة وزنية (10%) بنتونايت هي (67MPa) بينما البنتونايت المطلي بالحامض يصل الى (138Mpa) ولتقييم امان طمر النفايات المشعة المصلدة بالاسمنت تم دراسة التسرب للكوبلت ^{60}CO والسيزيوم ^{137}Cs . الطريقة القياسية العملية المعتمدة لدى الوكالة الدولية للطاقة الذرية لدراسة التسرب اقترحها الباحث Hespe [4] وهنالك العديد من الموديلات الرياضية التي تدرس ظاهرة الانتشار للنويدات المشعة خلال النفايات المصلدة بالاسمنت .ومن المتغيرات المهمة في السمنتة اختبار مقاومة الانضغاط (compressive strength) للنفايات المشعة المصلدة لتاكيد السلامة ، لذلك تم عمل عينات مكعبة الشكل بابعاد (7*7*7cm) واجراء فحوصات الانضغاط لها وحسب معيار مقاومة الانضغاط للنفايات المصلدة بالاسمنت التي يوصى بها من قبل الهيئة النووية الامريكية (NRC) [5] بالاضافة الى فحوصات التسرب .بينما تم تحضير نماذج بشكل اسطواني (hight/diameter :2:0) في بعض البحوث وتم خزنها في المختبر تحت ظروف درجة الحرارة ($25\pm3\ ^{\circ}C$) لمدة 28 يوم، غمر لكل نموذج في بيكر سعة (50ml) ممتلئ بماء بئر ليمثل المياه الجوفية وتم اخذ نماذج من الماء لفترات زمنية مختلفة

لحساب النشاط الاشعاعي لها ،وكان قياس النشاط الاشعاعي يتم باستخدام جهاز (gamma spectrometer) ومن ثم حساب (cumulative leach) من المعادلة التالية [6] :

$$\text{Cumulative leach fraction} = \left(\frac{\Sigma A(t)}{A_0}\right)\left(\frac{V}{S}\right)$$

where, $\Sigma A(t)$ = Cumulative radioactivity leached
A_0 = Initial radioactivity present in specimen
V = Volume of specimen, cm^3
S = Exposed surface area of specimen, cm^2

الباحث M.I.EI.Desouky درس التسرب والخواص الميكانيكية للمركبات (polyacrylamide-zeolite) و(polyacrylamide-bentonite) المحملة بالنويدات المشعة للسيزيوم والكوبلت و تصليدها باستخدام السمنت البورتلاندي الاعتيادي ، النتائج المستحصلة بينت ان المركبات اعلاه تحسن من الخصائص الميكانيكية للخلطة الاسمنتية وتقلل من معدل التسرب للنويدات المشعة[7] .
الباحثين [9] درسوا ظاهرة التسرب لنويدات السيزيوم والكوبلت في خلطة (زيولايت سمنت +الرماد المتطاير) ، وتبين ان هذه الخلطة ملائمة جدا وتقلل من معدل التسرب حيث يكون معدل انطلاق النويدات عالي في البداية بسبب تراكمها على السطح ويبدأ بالتناقص مع مرور الوقت .
في البحث الحالي تم دراسة التسرب والخواص الميكانيكية للنفايات المصلدة باستخدام السمنت البورتلاندي الاعتيادي والرماد المتطاير كمادة محسنة واخذ بنظر الاعتبار النسب الوزنية المختلفة المحملة من النفايات المشعة الى الخلطة الاسمنتية .

الجزء العملي

المواد المستخدمة في البحث

- **مادة الاسمنت** :الاسمنت المستخدم في هذه الدراسة هو الاسمنت العراقي البورتلاندي الاعتيادي 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 بوجود الماء يتفاعل مع هيدروكسيد الكالسيوم في درجة الحرارة العادية (الغرفة) لتعطي مركبات تمتلك الخواص الاسمنتية [8]. عند عملية اماهة الاسمنت يتكون هيدروكسيد الكالسيوم بنسبة 20% من وزن الاسمنت الذي لا يكسب الخرسانة صفة المقاومة ، ولكن عند اضافة مادة الرماد المتطاير يتفاعل مع هيدروكسيد الكالسيوم ليكون مركب اسمنتي (كالسيوم سيليكات هايدرات) يعمل على تحسين مقاومة الانضغاط علما ان مادة الرماد المتطاير متوفرة في 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 الأسمنتي الناتج من عملية اماهة الاسمنت.
- **الماء المقطر :** تم تحضيره في المختبر باستخدام جهاز تقطير .
- النفايات المشعة الصلبة (الرزن) والرواسب المشعة الناتجة من معاملة النفايات المشعة السائلة بالترسيب الكيميائي.

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 بابعاد (50*50*50mm) ، الشكل رقم (3).
- جهاز طرد الفقاعات الهوائية (Vibrator). - منظومة الجرمانيوم الشكل رقم (5).

تحضير النماذج :

اولا - تم خلط المزيج (اسمنت + ماء مقطر + رماد متطاير) باستخدام خلاط ميكانيكي لغرض الحصول على مزيج متجانس وبنسبة اضافة :

(W/C ratio : 0.5)
(Fly ash/C ratio : 0.3)

واضافة النفايات المشعة الصلبة (الرزن) والراسب الناتج من معاملة النفايات المشعة السائلة بالترسيب الكيميائي بنسب اضافة وزنية:
(25% , 20% , 15% , 10% , 5%) يخلط المزيج لمدة (30) دقيقة ويصب في قوالب بشكل مكعب طول ضلعة (50mm) وتوضع على جهاز طرد الفقاعات الهوائية وتترك لفترة 24 ساعة ثم تجفف تحت الظروف الاعتيادية درجة حرارة الغرفة لمدة 28 يوم وبذلك تم الحصول على نماذج عدد (20) استخدم قسم منها في فحص مقاومة الانضغاط بينما غمرت النماذج
في عبوة تحتوي على ماء مقطر بحجم (100ml) الشكل رقم (4) وتسحب نماذج من الماء بفترات زمنية متباعدة كل 20 يوم لغرض اجراء الفحوصات الاشعاعية باستخدام جهاز (gamma specrometer) .

النتائج والمناقشة :

اجريت فحوصات مقاومة الانضغاط باستخدام جهاز فحص الانضغاط في وزارة العلوم والتكنولوجيا /مديرية معاملة وادارة النفايات المشعة/ محطة معاملة النفايات للنماذج المحضرة بشكل مكعبات ذات طول ضلع (50mm) بعد مرور 28 يوم من تاريخ صب النماذج 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. وكذلك قياس النشاط الاشعاعي (initial activity) .

وتبين من خلال الفحوصات ان النشاط الاشعاعي الابتدائي للنماذج المحضرة باستخدام النفايات المشعة الصلبة (الزيولايت المحمل بالنويدات المشعة) اقل مما هو علية للنماذج المحضرة باستخدام راسب النفايات المشعة السائلة الناتج من عملية الترسيب الكيميائي، ويزداد النشاط الاشعاعي كلما زادت نسبة التحميل من الملوثات وكما هو مبين في الشكل رقم (6) . الشكل رقم (7) يبين ان مقاومة الانضغاط للنفايات المصلدة باستخدام الرزن المحمل بالنويدات هي اعلى من النفايات المصلدة باستخدام الراسب الناتج من معاملة النفايات المشعة السائلة بالترسيب وان مقاومة الانضغاط في كلتا الحالتين تزداد كلما قلت نسبة التحميل الوزنية للنفايات من 25% الى 5% .الشكل رقم (8) يبين العلاقة بين الزمن (الفترات الزمنية المتباعدة التي تم سحب النماذج بها) والتي مقدارها (20) يوم لكل فترة والنشاط الاشعاعي للنموذج المسحوب (10ml) من الماء ولوحظ ان النشاط الاشعاعي للنماذج (الماء) يزداد كلما زادت نسبة التحميل الوزنية من النفايات وبالنسبة لنفس النموذج يبدأ بالزيادة اولا ثم تبدأ بالاستقرار اي ان معدل تسرب النويدات يكون عالي بالبداية ثم يبدأ بالاستقرار تقريبا بعد مرور فترة زمنية.

الاستنتاجات والتوصيات :

- في هذا البحث تم تصليد النفايات المشعة الصلبة (الزيولايت المحمل بالنويدات المشعة) والراسب الناتج من معاملة النفايات المشعة السائلة بالترسيب الكيميائي باستخدام السمنت البورتلاندي الاعتيادي مع الرماد المتطاير. النتائج بينت ان مقاومة الانضغاط تكون عالية في حالة تصليد النفايات الصلبة اكثر مما هو علية في حالة تصليد الراسب وكذلك معدل التسرب يكون اقل ايضا لذا نوصي باستخدام الزيولايت لفصل النويدات المشعة من النفايات المشعة السائلة.
- بالنسبة لمقبولية التسرب هناك مؤشر معتمد من قبل الوكالة الدولية للطاقة الذرية يسمى (Leaching index) ومقداره (6) يعتمد على عدة عوامل ويستخرج بمعادلات تعتمد على مقدار التسرب الاشعاعي والفترة الزمنية ، ومن خلال اطلاعنا على الابحاث في هذا المجال تبين ان مقدار هذا المؤشر المقبول لدى الوكالة الدولية للطاقة الذرية هو (6) كحد ادنى بلغ في احد الابحاث (8.21) ويعتبر مقبول بهذه الحدود وكانت نسبة حيودة عن المؤشر المعتمد (36%) [9] .في البحث الحالي تم تقييم مقدار التسرب من خلال مقارنة مقدار التسرب الاشعاعي الكلي في نهاية فترات الفحص مع مقدار النشاط الاشعاعي للعينات قبل التغطيس وقد بلغت نسبتها حوالي (30%) اي اقل من الحيود المذكور اعلاه لمؤشر التسرب والذي يعتبر مقبولا لدى الوكالة الدولية للطاقة الذرية .
- يعتبر هذا البحث تأكيد للجهات الرقابية المختصة على كفاءة عملية السمنتة في معاملة وتكييف النفايات المشعة.
- نوصي بأجراء دراسة باستخدام ماء الآبار للموقع المقترح لطمر النفايات المشعة مستقبلا لكونه يمثل الحالة الطبيعية بديلا عن الماء المقطر والذي سوف يعطي معدل تسرب اقل حتما.
- نوصي بالعمل على توفير معدات وأجهزة بحثية ذات حساسية ودقة عالية لتأكيد رصانة البحوث العلمية وتوفير الدعم المالي لها .

المصادر :

1- S.B.Oblath,Leaching from solidified waste forms under saturated and unsaturated conditions,Environ,Sci.Technol.23,(1989),1098.

2-A.Atkinson,K.Nelson,and T.M.valentine,Leach test characterization of cement-based nuclear waste forms,Nucl.chem.waste manage.,6,241,1986.

3- C.Pescatore,Leach rate expression for performance assessment of solidified low level radioactive waste,waste manage.,23,(1991),223.

4- E.D.Hespe,Leach test of immobilized radioactive waste solids:Aproposal for standard method,At.Energy Rev.,,9(1),(1971),195.

5- H.M.Johnston,and D.J.Wilmot,sorption and diffusion studies in cementation grouts,waste manage.,12,pp.289-296,1992.

6- A.M.El-Dakroury,Assessment of some additives to cement used for radioactive waste immobilization,Ph,D,Thesis,Cairo univ.,Egypt,(1998).

7- M.I.EI-Dessouky,E.H.El-Masry "Leaching and mechanical properties of cement-polyacrylamide composite developed as matrices for immobilization of ^{137}Cs and ^{60}Co radionuclides.New York Science journal 2012;5(12).

8- M.Abdel Gleel "New trend incorporation of cobalt and cesium radionuclides in natural and thermal bentonite cement blends ;Nature and Science 2010;8(10).

9- M.I.El-Dessouky,N.M.Sami,B.H.El-Gammal and S.S.Abd El-Rehim "Leaching study in immobilization of Cesium and Cobalt radionuclides in Fly Ash- Zeolite cement"Arab journal of nuclear science and application,46(3),(52-62) 2013.

Table (1) produce cement certificate

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

الشكل (2) خلاط الاسمنت

الشكل (3) قوالب الصب

الشكل رقم (4) غمر النماذج بالماء المقطر

الشكل رقم (5) منظومة الجرمانيوم /شركة اورتك

Table (2) Activity and compressive strength of samples

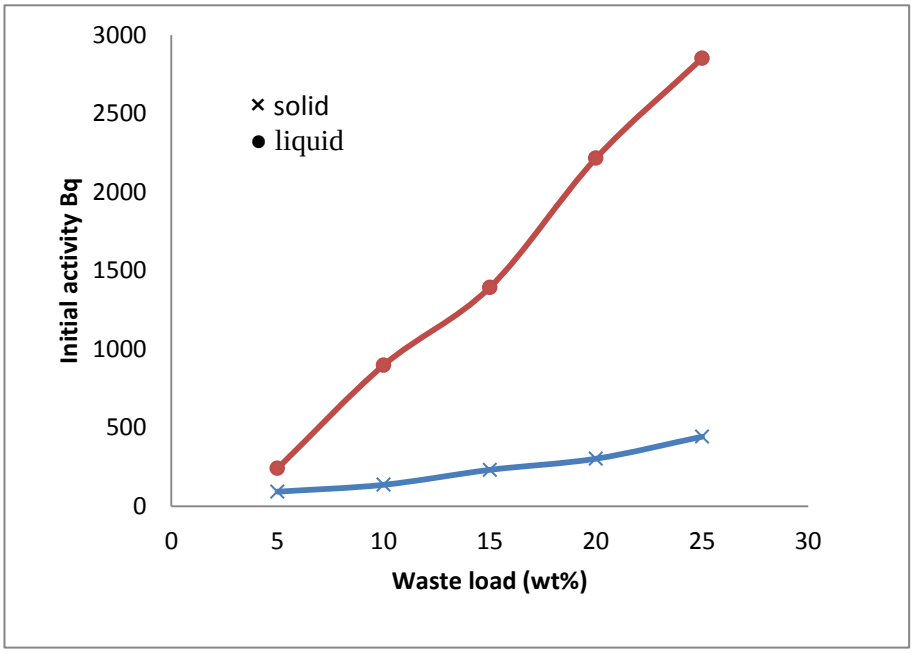
(Solid waste)

Exp. No.	Waste load Wt%	Activity Bq/Kg	Compressive Strength N/mm^2
1	5	93	35.25
2	10	137	31.16
3	15	232	30.13
4	20	303	24.26
5	25	443	15.341

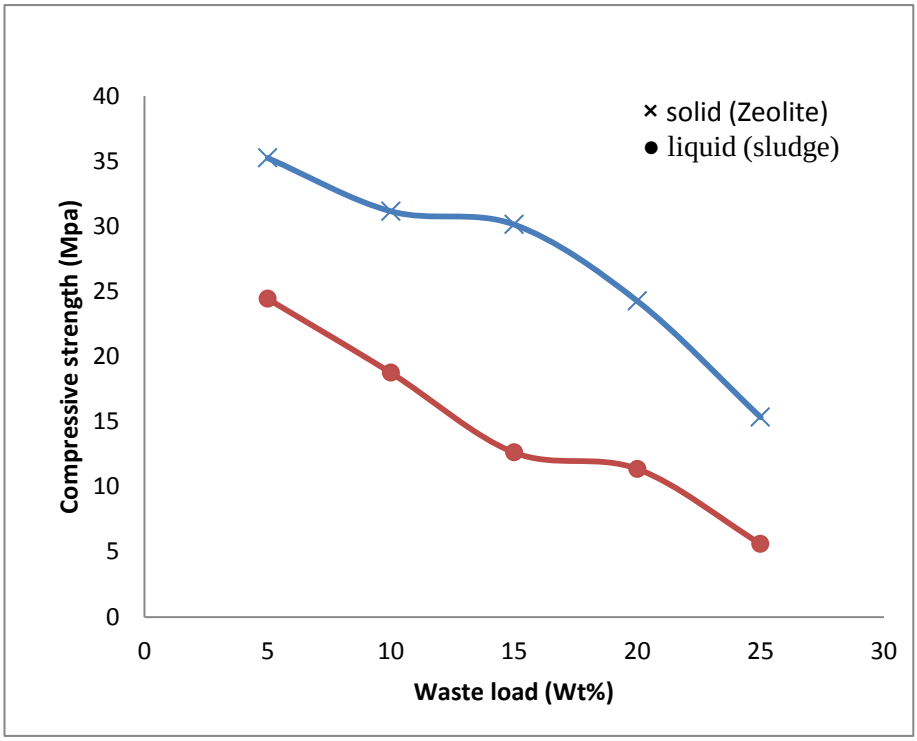
Table (3) Activity and compressive strength of samples

(sludge)

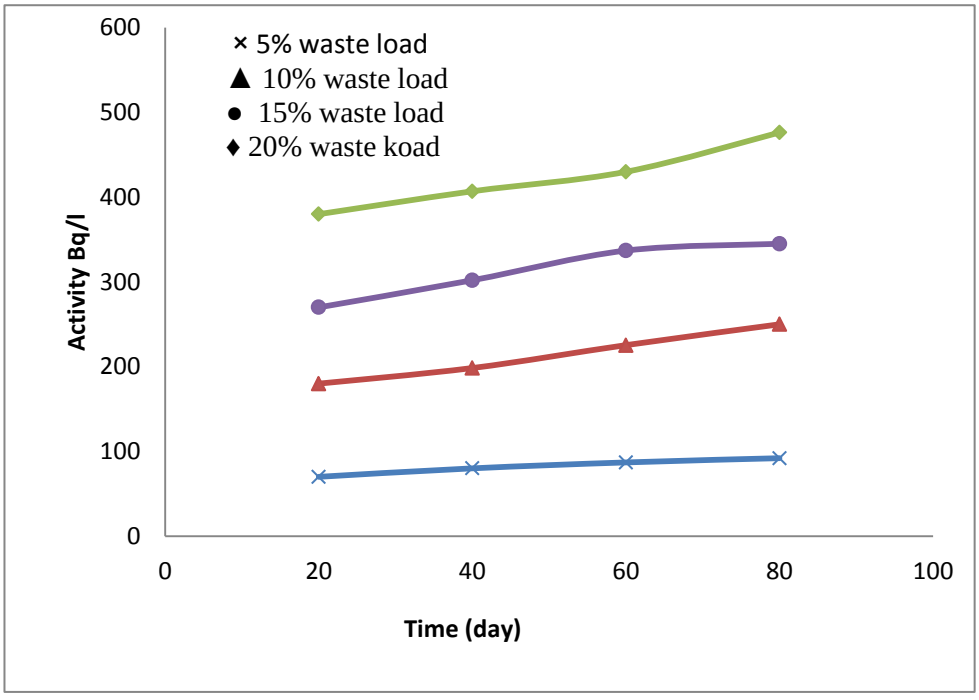
Exp. No.	Waste load Wt%	Activity Bq/Kg	Compressive Strength N/mm^2
1	5	241	27.43
2	10	898	18.75
3	15	1393	12.63
4	20	2215	11.37
5	25	2851	5.61



Fig(6) effect of radioactive waste load (weight percent) on the initial activity



Fig(7) effect of radioactive waste load (weight percent) on the compressive strength



Fig(8) Radiation activity of nuclides from solidified waste forms.