

УНИВЕРЗИТЕТ У БЕОГРАДУ  
ЕЛЕКТРОТЕХНИЧКИ ФАКУЛТЕТ

Милан М. Вујовић

**РАДИЈАЦИОНА СТАБИЛНОСТ ПОЛИМЕРНИХ,  
ГЕОПОЛИМЕРНИХ И КОМПОЗИТНИХ МАТЕРИЈАЛА  
ЗА ПРИМЕНЕ У УПРАВЉАЊУ РАДИОАКТИВНИМ  
ОТПАДОМ**

докторска дисертација

Београд, 2022

UNIVERSITY OF BELGRADE  
SCHOOL OF ELECTRICAL ENGINEERING

Milan M. Vujović

**RADIATION STABILITY OF POLYMER, GEOPOLYMER  
AND COMPOSITE MATERIALS FOR APPLICATIONS IN  
RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT**

Doctoral Dissertation

Belgrade, 2022

**Ментор:**

др Милош Вујисић, ванредни професор, Универзитет у Београду,  
Електротехнички факултет

**Чланови ко мисије:**

др Јован Цветић, редовни професор, Универзитет у Београду, Електротехнички  
факултет

др Жељко Ђуришић, ванредни професор, Универзитет у Београду,  
Електротехнички факултет

др Ивица Вујичић, научни сарадник, Институт за нуклеарне науке "Винча",  
Институт од националног значаја за Републику Србију, Универзитет у Београду

**Датум одбране:**

## Наслов докторске дисертације:

Радијациона стабилност полимерних, геополимерних и композитних материјала за примене у управљању радиоактивним отпадом

## Сажетак:

Радиоактивни материјали користе се у бројним гранама медицине, привреде, за производњу електричне енергије и у научно-истраживачком раду. Радиоактивни материјали чија се даља употреба не планира проглашавају се радиоактивним отпадом. Радиоактивни отпад који садржи довољно активности или има време полураспада довољно дуго да се не може одмах испустити у животну средину мора се на адекватан начин сакупити а потом складиштити, обрађивати и коначно, ако се не може ослободити у животну средину, одложити.

Сигурност управљања радиоактивним отпадом, у значајној мери заснива се на поузданости контејнера у које је радиоактивни отпад смештен. Правилан избор типа и материјала контејнера и његових елемената као што је испуна одредиће његово понашање у условима дугорочног излагања јонизујућем зрачењу и другим условима током складиштења и одлагања радиоактивног отпада како у нормалним условима тако и у случају потенцијалног акцидента.

У овој дисертацији анализирано је неколико полимерних, геополимерних и композитних материјала као потенцијални кандидати за испуну у различитим типовима контејнера за складиштење и одлагање исслужених радиоактивних извора и радиоактивног отпада, са становишта утицаја јонизујућег зрачења.

Погодност испитиваних материјала за наведене примене испитивана је Монте Карло симулацијама које дају вредности апсорбоване енергије у испунама контејнера различитих састава и димензија. Радиоактивни извори који се користе у симулационим моделима укључују најчешће исслужене радиоактивне изворе као и најчешће радионуклиде који се налазе у ниско, средње и високо активном радиоактивном отпаду. У симулационим моделима примењени су тачни геометријски модели испитиваних ситуација а такође је узет у обзир утицај слагања контејнера, било у складишту или у одлагалишту, на дозу у испуни.

Резултати симулација коришћени су за израчунавање натпритиска унутар контејнера, узрокованог гасом који се ствара у унутрашњој испуни услед радиолизе. За сваки од испитиваних материјала одређују се и две врсте граница активности отпада: једна испод које се натпритисак смањује након почетног скока изазваног топлотом и друга која резултира натпритиском који остаје испод максимално дозвољене вредности. Промене молекуларне масе полимерних и композитних материјала услед излагања јонизујућем зрачењу су такође израчунате, како би се проверило да ли се може очекивати деградација механичких карактеристика оклопа изазвана радијацијом.

Добијени резултати показују да су, у погледу ефеката изазваних излагањем јонизујућем зрачењу, испитивани материјали компатибилни са предложеном употребом као унутрашња испуна у контејнерима за складиштење и одлагање исслужених радиоактивних извора, ниско, средње и високо активног радиоактивног отпада.

**Кључне речи:**

Радиоактивни отпад, складиштење радиоактивног отпада, одлагање радиоактивног отпада, полимерни материјали, геополимерни материјали, композитни материјали, радијациона стабилност, нумеричко моделовање, Монте Карло симулације, радијациони ефекти

**Научна област:**

Електротехника и рачунарство

**Ужа научна област:**

Нуклеарна техника

## **Title of Doctoral Dissertation:**

Radiation Stability of Polymer, Geopolymer and Composite Materials for Applications in Radioactive Waste Management

## **Abstract:**

Radioactive materials have various applications in medicine, industry, for electricity production and in scientific and research applications. Radioactive materials whose further use is not planned are declared as radioactive waste. Radioactive waste that contains activity high enough or has a half-life long enough that it cannot be immediately released into the environment must be adequately collected and then stored, processed and finally, if it cannot be released into the environment, disposed of.

The safety of radioactive waste management is largely based on the reliability of the containers in which the radioactive waste is stored. Proper choice of container type and material and its elements such as inner shielding will determine its behavior under conditions of long-term exposure to ionizing radiation and other conditions during storage and disposal of radioactive waste both under normal conditions and in the case of a potential accident.

In this dissertation, several polymeric, geopolymeric and composite materials are analyzed as potential candidates for inner shielding in different types of containers for storage and disposal of disused sealed radioactive sources and radioactive waste, from the point of view of ionizing radiation.

The suitability of the investigated materials for these applications was tested by Monte Carlo simulations that give the values of the absorbed dose in the inner shielding of containers of different compositions and dimensions. Radioactive sources used in simulation models include the most commonly used sealed radioactive sources as well as the most common radionuclides found in low-, intermediate- and high-level radioactive waste. Accurate geometric models of the tested situations were applied in the simulation models, and the influence of stacking of containers, either in the storage or in the disposal facility, on the dose to inner shielding was also taken into account.

The simulation results were used to calculate the overpressure inside the container, caused by the gas generated in the inner shielding due to radiolysis. For each of the investigated materials, two types of waste activity limits are determined: one below which the overpressure decreases after the initial increase caused by heat and the other which results in an overpressure that remains below the maximum allowable value. Changes in the molecular weight of polymeric and composite materials due to exposure to ionizing radiation were also calculated, in order to check whether degradation of the mechanical characteristics of the inner shielding caused by exposure to radiation can be expected.

The obtained results show that, in terms of the effects caused by exposure to ionizing radiation, the investigated materials are compatible with the proposed use as internal shielding in containers for storage and disposal of spent radioactive sources, low-, medium- and high-level radioactive waste.

**Keywords:**

Radioactive Waste, Radioactive Waste Storage, Radioactive Waste Disposal, Polymeric materials, Geopolymer materials, Composite materials, Radiation Hardness, Numerical Modeling, Monte Carlo Simulations, Radiation Effects

**Scientific Field:**

Electrical Engineering and Computer Science

**Scientific Subfield:**

Nuclear Engineering

*Посебну захвалност дугујем мом ментору проф. др Милошу Вујисићу не само за сву помоћ и савете у вези израде ове докторске дисертације већ и за све друге теме и пројекте којих смо се дотакли током докторских студија и израде дисертације.*

*Неизмерну захвалност дугујем мојој супрузи Ани за све године подршке и стрпљења, Исидори и Андрији што су давали снагу и мотив, Милети, Стојанки, Милицы и Саву што су били подршка током свих ових година.*



*Ани,*

*Исидори и Андрији,*

*Милети, Стојанки и Милице,*

*Саву*

# Садржај

1. Увод.....	1
2. Интеракција јонизујућег зрачења са материјалом.....	4
2.1. Алфа честице .....	4
2.2. Бета честице.....	5
2.3. Гама и X зраци .....	6
2.4. Неутрони .....	6
2.5. Микроскопски пресек .....	7
2.6. Линеарни пренос енергије.....	8
2.7. Интеракција јонизујућег зрачења са материјом.....	9
2.7.1. Интеракција алфа честица.....	10
2.7.2. Интеракција бета честица .....	11
2.7.3. Интеракција гама зрака .....	12
2.7.3.1. Фотоелектрични ефекат .....	13
2.7.3.2. Расејање фотона на слободном или везаном електрону .....	13
2.7.3.3. Производња пара .....	15
2.7.3.4. Фотодезинтеграција.....	15
2.7.3.5. Атенуација гама зрака .....	16
2.7.4. Интеракција неутрона .....	18
2.8. Губитак енергије зрачења при проласку кроз материјал .....	20
2.8.1. Губитак енергије директно јонизујућег зрачења .....	20
2.8.1.1. Електронска зауставна моћ.....	20
2.8.1.2. Нуклеарна зауставна моћ.....	22
2.8.1.3. Радијативна зауставна моћ .....	22
2.8.2. Губитак енергије индиректно јонизујућег зрачења .....	22
3. Утицај јонизујућег зрачења на полимерне, геополимерне и композитне материјале .....	24
3.1. Полимерни материјали .....	24
3.1.1. Подела полимерних материјала.....	26
3.1.1.1. Синтетички полимерни материјали .....	28
3.1.1.2. Пластомери.....	29
3.1.1.3. Дуромери .....	30
3.1.1.4. Еластомери .....	30
3.1.1.5. Еластопластомери.....	30
3.1.2. Утицај зрачења на полимерне материјале .....	30
3.1.2.1. G-вредности .....	33

3.1.2.2.	Утицај излагања јонизујућем зрачењу на механичка, термичка и електрична својства полимерних материјала .....	34
3.1.2.3.	Генерисање гаса .....	35
3.1.2.3.1.	Утицај линеарног преноса енергије .....	35
3.1.2.3.2.	Утицај температуре .....	35
3.1.2.3.3.	Утицај притиска .....	36
3.1.2.3.4.	Утицај осталих особина окружења .....	36
3.1.2.3.5.	Утицај апсорбоване дозе .....	37
3.1.2.3.6.	Утицај јачине дозе .....	37
3.1.2.3.7.	Утицај састава материјала .....	38
3.1.2.3.8.	Утицај енергије апсорбоване у материјалу и транспорта енергије .....	38
3.2.	Геополимерни материјали .....	38
3.2.1.	Својства геополимерних материјала .....	39
3.2.2.	Формулација геополимерних материјала .....	41
3.2.3.	Утицај јонизујућег зрачења на геополимерне материјале .....	41
3.2.3.1.	Радиолиза воде .....	42
3.2.3.2.	Утицај параметара излагања зрачењу на количину генерисаног гаса .....	46
3.2.3.3.	G - вредности .....	47
3.2.3.4.	Утицај својстава материјала на количину генерисаног гаса .....	48
3.2.4.	Утицај јонизујућег зрачења на својства геополимерних материјала .....	50
3.2.4.1.	Промена расподеле величине пора .....	50
3.2.4.2.	Кристализација .....	51
3.2.4.3.	Измештање атома .....	51
3.3.	Композитни материјали .....	51
3.3.1.	Састав композитних материјала .....	52
3.3.2.	Подела композитних материјала .....	52
3.3.2.1.	Композитни материјали ојачани честицама .....	53
3.3.2.2.	Композитни материјали са влакнима .....	54
3.3.2.3.	Структурни композитни материјали .....	57
3.3.3.	Утицај зрачења на композитне материјале .....	59
4.	Управљање радиоактивним отпадом .....	60
4.1.	Класификација радиоактивног отпада .....	62
4.1.1.	Класификација радиоактивног отпада на основу опција за дугорочно управљање	63
4.2.	Фазе управљања радиоактивним отпадом .....	66
4.2.1.	Предтретман .....	70
4.2.2.	Третман .....	71

4.2.2.1.	Методе третмана.....	71
4.2.3.	Кондиционирање.....	75
4.2.4.	Кондиционирање затворених извора јонизујућег зрачења.....	76
4.2.5.	Складиштење радиоактивног отпада.....	77
4.2.5.1.	Елементи складишта радиоактивног отпада.....	78
4.2.5.2.	Фаза складиштења радиоактивног отпада.....	80
4.2.5.3.	Контејнери за складиштење радиоактивног отпада.....	81
4.2.5.4.	Постројења за складиштење радиоактивног отпада.....	85
4.2.5.5.	Сигурност складиштења радиоактивног отпада.....	87
4.2.5.6.	Складиштење исслуженог нуклеарног горива.....	88
4.2.6.	Одлагање радиоактивног отпада.....	89
4.2.6.1.	Опције за одлагање радиоактивног отпада.....	90
4.2.6.2.	Систем вишеструких баријера.....	90
4.2.6.3.	Инжењерске баријере.....	92
4.2.6.3.1.	Облик радиоактивног отпада.....	92
4.2.6.3.2.	Контејнери за одлагање.....	93
4.2.6.3.3.	Изолациони слој од природних материјала.....	93
4.2.6.4.	Природне баријере.....	94
4.2.6.4.1.	Биосфера.....	94
4.2.6.5.	Типови одлагалишта за одлагање радиоактивног отпада.....	94
4.2.6.5.1.	Површинска и плитка одлагалишта.....	95
4.2.6.5.2.	Дубока геолошка одлагалишта.....	96
4.2.6.6.	Методе за одлагање радиоактивног отпада.....	97
4.2.6.7.	Концепт бушотине за одлагање извора зрачења.....	98
4.2.6.8.	Оцена перформанси одлагалишта.....	98
4.3.	Захтеви за контејнере за складиштење и одлагање радиоактивног отпада.....	100
4.3.1.	Захтеви током појединих фаза управљања радиоактивним отпадом.....	100
4.3.1.1.	Захтеви током обраде.....	100
4.3.1.2.	Захтеви током складиштења.....	101
4.3.1.3.	Захтеви током транспорта.....	102
4.3.1.4.	Захтеви током одлагања.....	102
4.3.2.	Захтеви за пројектовање контејнера.....	103
4.3.2.1.	Утицај облика радиоактивног отпада.....	103
4.3.2.2.	Облик контејнера.....	104
4.3.2.3.	Димензије контејнера.....	104
4.3.2.4.	Начини манипулације.....	105
4.3.2.5.	Начин пуњења.....	105

4.3.2.6.	Слагање.....	106
4.3.2.7.	Отпорност на ударе .....	106
4.3.2.8.	Системи за сакупљање и одвођење гаса.....	107
4.3.2.9.	Површинска контаминација .....	108
4.3.2.10.	Захтеви које поставља дизајн одлагалишта .....	108
4.3.2.11.	Материјали контејнера и начин затварања .....	108
5.	Резултати и дискусија.....	110
5.1.	Испитивани материјали .....	112
5.2.	Методe и прорачуни.....	113
5.2.1.	Напритисак у контејнеру услед радиолитичког генерисања гаса .....	114
5.2.2.	Промена средњих молекулских маса .....	117
5.3.	Одлагање радиоактивних извора у бушотине .....	118
5.3.1.	Опис симулације .....	118
5.3.1.1.	Геометријски модел.....	119
5.3.1.2.	Извори зрачења .....	121
5.3.2.	Резултати симулације и анализа .....	123
5.4.	Складиштење и одлагање радиоактивног отпада у бурадима запремине 55 галона..	130
5.4.1.	Опис симулације .....	130
5.4.1.1.	Геометријски модел.....	130
5.4.1.2.	Извори зрачења .....	133
5.4.2.	Резултати симулације и анализа .....	133
5.5.	Одлагање високо активног радиоактивног отпада .....	141
5.5.1.	Опис симулације .....	141
5.5.1.1.	Геометријски модел.....	141
5.5.1.2.	Извори зрачења .....	144
5.5.2.	Резултати симулације и анализа .....	145
6.	Закључак .....	154

# 1. Увод

Примена радиоактивних материјала у индустрији, медицини, научно-истраживачком раду, као и производња електричне енергије у нуклеарним електранама, поред користи за човечанство имају за последицу стварање радиоактивног отпада. Као и сви други радиоактивни материјали, радиоактивни отпад емитује јонизујуће зрачење, које потенцијално представља опасност по здравље људи и животну средину.

Радиоактивни отпад је радиоактивни материјал за који се не планира даља употреба. Сваки радиоактивни материјал, независно од првобитне примене, може да постане радиоактивни отпад, ако му пре тога радиоактивним распадом активност не опадне испод нивоа при којим се може ослободити у животну средину. Радиоактивни отпад може бити у гасовитом, течном или чврстом агрегатном стању. Специфична активност радиоактивног отпада креће се од вредности блиских нивоима при којим се материјал може ослободити у животну средину до веома великих вредности које захтевају примену значајних мера заштите од зрачења.

Управљање радиоактивним отпадом представља скуп делатности које се односе на руковање радиоактивним отпадом, од сакупљања, преко обраде и складиштења, до коначног одлагања. Управљање радиоактивним отпадом односи се на различите временске оквире, који се могу мерити и деценијама, колико може трајати складиштење, или вековима, па и миленијумима, колико траје период у ком одређене врсте радиоактивног отпада, после смештања у одговарајућа одлагалишта, имају активности такве да уколико доспеју у животну средину могу довести до нежељених последица по здравље људи или животну средину.. Основни циљ управљања радиоактивним отпадом јесте поступање са њим на начин којим се спречавају негативни ефекти јонизујућег зрачења по здравље људи и животну средину, како данас тако и у будућности.

Од значаја је обезбеђивање сигурности током свих фаза управљања радиоактивним отпадом, а посебно током обраде, када се над радиоактивним отпадом спроводе различити физички и хемијски процеси, као и током складиштења и одлагања, када се велика количина радиоактивног отпада налази на једном месту. Ово захтева да структуре, системи и компоненте које обезбеђују да радиоактивни материјали не доспеју

у животну средину као и материјали до којих су оне начињене могу да одговоре сигурносним захтевима током веома дугог периода.

Од нарочите важности у управљању радиоактивним отпадом, а посебно при транспорту, складиштењу и одлагању, су контејнери у којима се налази отпад и њихови елементи као што је испуна која обезбеђује додатну заштиту, спречава померање отпада унутар контејнера и имобилизује радиоактивни отпад у овим контејнерима у циљу спречавања његовог ширења у радну и животну средину. Контејнери и њихови елементи праве се од материјала који својим физичким и конструкционим својствима омогућавају дугорочни интегритет ускладиштеног или одложеног радиоактивног отпада.

Стандардна пракса у већини држава данас је да се за складиштење и одлагање радиоактивног отпада и ислужених радиоактивних извора користе челични или бетонски контејнери, док се као испуна обично користи портланд цементни бетон без додатног агрегата. Истраживања која се врше у циљу припреме одлагалишта високо активног отпада и ислуженог нуклеарног горива актуелизовала су испитивања алтернативних материјала као потенцијалних кандидата за замену материјала који се стандардно користе у управљању радиоактивним отпадом. Међу овим материјалима су и неки полимерни, геополимерни и композитни материјали, који би својим својствима могли значајно да допринесу ефикаснијој имобилизацији и изолацији радиоактивног отпада.

Изазов са којим се сусрећу сви материјали за имобилизацију и паковање радиоактивног отпада је њихова непрекидна изложеност јонизујућем зрачењу током дугих временских периода. Ефекти јонизујућег зрачења на материјале могу довести до промене и деградације њихових физичких и хемијских својстава. На тај начин ови материјали могу да изгубе својства која су их првенствено кандидовала за наведене примене и не могу више одговорити постављеним захтевима. Промене које настану излагањем јонизујућем зрачењу могу резултовати губитком интегритета паковања радиоактивног отпада, што може довести до његовог ослобађања у животну средину.

Један од проблема у избору одговарајућих материјала је и непознаница како се одређене класе материјала понашају после веома дугог периода излагања јонизујућем зрачењу у температурним и амбијенталним условима какви владају у складиштима и одлагалиштима радиоактивног отпада. У фазама управљања радиоактивним отпадом пре његовог одлагања, а посебно током складиштења и транспорта, оштећење контејнера у који је смештен радиоактивни отпад или његове испуне могу довести до нежељеног излагања лица која рукују контејнером. Такође, сваки губитак интегритета паковања на местима где је ускладиштена велика количина радиоактивног отпада не само што омогућава излазак радиоактивног отпада у околну средину већ и повећава дозу зрачења коју примају остали контејнери. Посебна пажња мора се посветити складиштењу и каснијем одлагању високо активног отпада и ислуженог нуклеарног горива, будући да они поред велике активности генеришу и значајне температуре.

Циљ истраживања урађеног за потребе ове дисертације био је да се утврди радијациона стабилност полимерних, геополимерних и композитних материјала који би могли да нађу примену у складиштењу и одлагању радиоактивног отпада, узимајући посебно у обзир дуг временски период током ког би били изложени зрачењу. Постављени циљ је посебно значајан у светлу све веће примене извора зрачења, изградње нових нуклеарних електрана и све веће количине радиоактивног отпада који настаје у процесу декомисије нуклеарних и радијационих постројења. Додатни циљ истраживања био је да се утврди сигурност складиштења и одлагања у испуне од полимерних, геополимерних и композитних материјала током дугог временског периода.

Значај овог истраживања је у унапређењу метода испитивања нових и алтернативних материјала који могу да учине управљање радиоактивним отпадом сигурнијим. Сprovedено испитивање дугорочне стабилности полимерних, геополимерних и композитних материјала у условима непрекидне изложености различитим врстама и дозама јонизујућег зрачења указује на критеријуме за правилан избор и инжењеринг ових материјала. Коначно, што је можда најважније, резултати истраживања спроведеног за потребе дисертације допринеће напорима да се управљање радиоактивним отпадом учини поузданијим, а одлагање овог отпада дугорочно сигурним за животну средину, што нам налаже осећање одговорности пред будућим генерацијама.

При изради ове дисертације пошло се од претпоставки да су класе испитиваних материјала потенцијални кандидати за замену материјала који се стандардно користе у управљању радиоактивним отпадом. Радијациона стабилност анализираних материјала испитивана је симулацијом дејства зрачења на средину кроз коју пролази. Могућност да се у симулацијама задају широке варијације параметара који се односе на особине материјала (састав, структура и геометрија), као и различити услови њиховог излагања зрачењу (облик извора, присутни радионуклиди, њихова активност, карактер поља зрачења, трајање излагања), обезбеђује оптималан избор материјала који би пружили дугорочно задржавање радиоактивног отпада, спречавајући његово ширење у животну средину.

За потребе ове дисертације, теоријски су анализирани специфичности дејства јонизујућег зрачења на полимерне, геополимерне и композитне материјале. На основу тога формиран су физички модели за симулацију дејства зрачења на испитиване материјале, који детаљно описују особине материјала, њихову геометрију, облик и радијационе карактеристике извора, као и интеракције зрачења са средином. Формирани модели потом су искоришћени да се кроз варијацију параметара упореди радијациона осетљивост испитиваних материјала. На тај начин извршена је анализа специфичности утицаја јонизујућег зрачења на полимерне, геополимерне и композитне материјале, развијени су симулациони модели дејства зрачења на наведене материјале и извршене анализе понашања испитиваних материјала у условима дуготрајне изложености зрачењу, као и процена ризика од доспевања радиоактивног отпада у радну или животну средину у зависности од избора материјала и конструкције одговарајућих контејнера.

Ова дисертација састоји се од 6 поглавља. После првог, уводног поглавља, друго поглавље даје преглед интеракција јонизујућег зрачења са материјалом. Треће поглавље бави се утицајем јонизујућег зрачења на посматране класе материјала, док четврто поглавље садржи преглед управљања радиоактивним отпадом. Пето поглавље даје опис и резултате симулација, са анализом и дискусијом. У завршном, шестом поглављу изнети су закључци до којих се дошло истраживањем.



## 2. Интеракција јонизујућег зрачења са материјалом

Јонизујуће зрачење је електромагнетно или честично зрачење таласне дужине 100 nm или мање, које има довољно високу енергију да може да јонизује материју кроз коју пролази [1, 2, 3]. Честично зрачење обично је у форми алфа честица, бета честица односно електрона и позитрона, протона, неутрона и тешких честица, док електромагнетно зрачење може бити у форми X-зрака или гама зрака.

Радиоактивни распад је спонтани процес путем кога нестабилна језгра прелази у стабилније или стабилно стање при чему долази до емисије радиоактивне честице или електромагнетног зрачења.

Активност је својство радиоактивне супстанце и представља број распада по јединици времена односно, другим речима, активност представља брзину распада.

### 2.1. Алфа честице

Алфа честице су високоенергетске, позитивно наелектрисане честице које се састоје од два протона и два неутрона. Идентичне су језгру атома хелијума и често се означавају са  ${}^4_2\text{He}^{2+}$ . Алфа честица представља најстабилнији систем нуклеона у природи [4, 5]. Алфа честице се емитују из језара атома код којих је однос неутрона и протона мали. Резултат емисије алфа честице је језгро потомак које има атомски број за 2 мањи од атомског броја језгра родитеља и масени број за 4 мањи од атомског броја језгра родитеља:



Маса алфа честице износи  $4u$  ( $6,6447 \cdot 10^{-27}$  kg) ( $u$  представља јединицу атомске масе и износи  $1,66 \cdot 10^{-27}$  kg) [6]. Енергија алфа честице може бити у опсегу до 1,8 до 11,6 MeV али типично износи између 3 и 7 MeV [7, 8]. Брзина алфа честице износи око  $0,05c$  односно око  $1,5 \cdot 10^7$  m/s. Алфа честице су моноенергетске и имају дискретан енергетски спектар.

Алфа честице емитују углавном велики атоми са атомским бројем већим од 82 осим неколико изузетака. Од алфа емитера због своје примене или ефеката до којих могу да доведу најзначајнији су  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{222}\text{Ra}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ . Алфа емитери имају време полураспада између  $10^{-7}$  s и  $10^{15}$  година [8]. Алфа честица након што потроши сву своју кинетичку енергију веже слободне електроне и постане, електрично неутралан, атом хелијума.

## 2.2. Бета честице

Бета честице су високоенергетски електрони ( $e^-$ ) или позитрони ( $e^+$ ) који настају бета распадом. Бета распад може бити бета–минус распад при коме настају протон, електрон и антинеутрино и бета–плус распад код кога настају неутрон, позитрон и неутрино. Поред бета–плус и бета–минус распада, трећи вид бета распада до ког може доћи је захват електрона код ког протон захвата електрон из омотача, што резултује претварањем једног протона у неутрон и емисијом неутрина из језгра. Електронски захват може бити праћен и емисијом Ожеових електрона из електронског омотача атома.

Три врсте бета распада приказане су следећим једначинама:



где је:

$X$  – језгро родитељ

$Y$  – језгро потомак

$\nu_e$  – електронски неутрино

$\bar{\nu}_e$  – електронски антинеутрино

Маса бета честице је  $5,4858 \cdot 10^{-4}$  u ( $9,1094 \cdot 10^{-31}$  kg) што је 1836 пута мање од масе протона или односно 1838 пута мање од масе неутрона [5, 9]. Брзина бета честице зависи од њене енергије те стога њена вредност варира у широком опсегу.

Бета честице имају континуалан енергетски спектар. Континуални енергетски спектар јавља се због расподеле енергије између електрона и антинеутрина односно позитрона и неутрина. Максималне енергије бета честица за све три врсте бета распада дате су следећим изразима:

$$Q_{\beta^-} = (M_X - M_Y)c^2 \quad (2.5)$$

$$Q_{\beta^+} = (M_X - M_Y)c^2 - 2m_e c^2 \quad (2.6)$$

$$Q_{EC} = (M_X - M_Y)c^2 \quad (2.7)$$

где је:

$M_X$  – маса језгра родитеља

$M_Y$  – маса језгра потомка

$m_e$  – маса електрона

Максималне енергије бета честица обично износе за бета–минус распад између 0,5 и 2 MeV, за бета–плус распад између 2 и 4 MeV и за захват електрона између 0,2 и 2

MeV [10]. Вредност средње енергије енергетског спектра бета честица износи  $0,3E_{max}$  до  $0,4E_{max}$  [5].

Након бета распада, језгро може остати у неком од побуђених стања, после чега долази до деекситације емисијом конверзионог електрона. Упражњено место у унутрашњости омотача може се попунити електроном из суседне или неке блиске љуске, при чему се емитује карактеристични X зрак, а упражњено место се сели ка периферији. X-зрак може да преда своју енергију неком од електрона са виших нивоа који бива избачен из атома са кинетичком енергијом једнакој разлици енергије X зрака и енергије везе нивоа. Овакви електрони се називају Ожеови електрони. Овај процес је карактеристичан за лаке елементе, док је конкурентан процес емисије X-зрака карактеристичан код тежих елемената. С обзиром да бета честице слабије јонизују материју од алфа честица, у материјалу зато имају већи домет [11].

Радионуклиди који емитују само бета честице називају се чисти бета емитери.

### 2.3. Гама и X зраци

Гама зрак је квант електромагнетне енергије односно фотон који има високу енергију. Гама зраци немају масу и наелектрисање али имају високу енергију и крећу се брзином светлости. Енергија гама зрака обично се креће у опсегу од неколико keV до око 9 MeV [7]. Због високе енергије и велике брзине гама зраци у ваздуху могу прећи стотине километара пер него што потроше своју енергију. X-зраци представљају фотоне који, за разлику од гама зрака које настају у језгру, настају у електронском омотачу атома.

У наставку дисертације ће фотонско јонизујуће зрачење, због једноставности, бити називано *гама зрацима*.

Гама емитери су, по правилу, побуђена језгра, која настају као продукт алфа или бета распада [4]. Емисијом гама зрака, побуђена језгра се ослобађају вишка енергије без утицаја на атомски број или масу атома. Временски период током којег је језгро у побуђеном стању варира али типично износи око  $10^{-10}$  s те стога до емисије гама зрака долази веома брзо после побуђивања језгра распадом [12].

### 2.4. Неутрони

Неутрони се класификују према енергији јер тип реакције која се дешава веома зависи од њихове енергије. Неутрони енергија већих од око 0,1 MeV се називају брзи неутрони. Термални неутрони имају расподелу кинетичке енергије као молекули гаса у њиховом окружењу. Зато се они не могу разликовати од молекула гаса на истој температури. За неутроне на температури 293K највероватнија је енергија од 0,025 eV и она се најчешће приписује као енергија термалних неутрона. Ово је енергији одговара брзина  $v = 2,2 \cdot 10^3$  m/s. Просечна брзина неутрона у снопу је:

$$\bar{v} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} v_0 = 1.13 v_0 \quad (2.8)$$

Неутрони енергија између енергија брзих и термалних називају се средњи, спори или резонантни али ни један од ових назива није јединствено прихваћен.

Неутронска активација је производња радионуклида апсорпцијом неутрона. Пример је  $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  – реакција којом настаје  $^{14}\text{C}$ . Услед активације сваки материјал озрачен неутронима може постати радиоактиван. Из овог разлога опасност може постојати и после престанка неутронског зрачења. У случају акцидента са критичности,

мерењем индуковане активности може се одредити доза услед излагања неутронима. С обзиром да се радионуклид који се ствара активацијом истовремено и распада важи:

$$\frac{dN}{dt} = \phi\sigma n - \lambda N \quad (2.9)$$

где је:

$\phi$  – флуks неутрона [ $\text{cm}^2/\text{s}$ ],  
 $\sigma$  – пресек за активацију [ $\text{cm}^2$ ],  
 $\lambda$  – константа радиоактивног распада,  
 $N$  – број радиоактивних атома,  
 $n$  – број атома мете (сматра се да остаје константан током излагања зрачењу).

Из претходне једначине следи:

$$\lambda N = \phi\sigma n(1 - e^{-\lambda t}) \quad (2.10)$$

Сви неутрони су у тренутку њиховог стварања брзи. Брзи неутрони губе енергију и успоравају у еластичним сударима са атомима око њих. Када се они успоре до, или близу, термалних енергија они бивају захваћени језгрима атома изложеног материјала.

## 2.5. Микроскопски пресек

Микроскопски ( $\sigma$ ) пресек представља вероватноћу да једна упадна честица или фотон доживи интеракцију на једној честици мете падајући на јединичну површину. У општем случају микроскопски пресек зависи од карактера међусобног дејства упадне честице и честице мете и њиме се на најопштији начин може описати интеракцију јонизујућег зрачења са материјом за сваку врсту јонизујућег зрачења, сваки материјал кроз који зрачење пролази и за сваки тип интеракције. Јединица за микроскопски пресек се назива барн [b] ( $1 \text{ b} = 10^{-28} \text{ m}^2$ ).

До израза за микроскопски пресек може се доћи ако посматрамо танак слој материјала дебљине  $dx$  и површине  $A$  на који пада сноп честица или фотона. Део флуенса упадних честица  $d\Phi/\Phi$ , који доживљава интеракцију унутар овог слоја може да се изрази као:

$$\frac{d\Phi}{\Phi} = \frac{dA}{A} = \frac{(N_m A dx)\sigma}{A} = N_m \sigma dx \quad (2.11)$$

где је  $dA$  укупна ефективна површина за одвијање интеракције а  $N_m$  концентрација честица мете односно њихов број по  $\text{cm}^3$ . Микроскопски пресек се према овој једначини може тумачити као вероватноћа интеракције по упадној честици подељена бројем мета по јединици површине.

Из претходне једначине микроскопски пресек је могуће изразити као:

$$\sigma = \frac{\frac{d\Phi}{\Phi}}{N_m dx} = \frac{d\Phi}{(N_m dx)\Phi} \quad (2.12)$$

Према ово једначини макроскопски пресек се може тумачити као вероватноћа интеркације по честици мете подељена бројем упадних честица по јединици површине.

Ако се уместо флуенса упадних честица микроскопски пресек представи преко њиховог броја, односно ако је  $dN$  број упадних честица који доживи интеракцију, а  $N$  укупан број упадних честица тада се макроскопски пресек може представити као:

$$\sigma = \frac{\frac{dN}{N}}{N_m dx} \quad (2.13)$$

## 2.6. Линеарни пренос енергије

Ефекти до којих долази услед излагања материјала јонизујућем зрачењу зависе од просторне расподеле енергије депоноване дуж путање наелектрисане честице при њеном проласку кроз материјал. *Линеарни пренос енергије* (енг. *LET – Linear Energy Transfer*) у тачки путање наелектрисане честице представља средњу енергију коју честица изгуби у интеракцијама са електронима на јединичном пређеном путу:

$$L_\Delta = \frac{dE_\Delta}{dx} \quad (2.14)$$

при чему се у обзир узимају само судари који производе секундарне електроне кинетичке енергије ниже од  $\Delta$ . Овим изразом приказана је разлика енергије коју примарна наелектрисана честица изгуби кроз интеракције са електронима и енергије коју односе високоенергетски секундарни електрони почетних кинетичких енергија већих од  $\Delta$  по јединици пређеног пута. Другим речима, линеарним преносом енергије се изражава енергија која се депонује непосредно уз примарну путању.

Иако се LET дефинише само за наелектрисане честице, може се применити и на индиректно јонизујуће зрачење, у ком случају се односи на секундарно наелектрисано зрачење. Типичне вредности LET за разне врсте јонизујућег зрачења дате су у табели 2.1.

Табела 2.1. Вредности LET за разне врсте директно и индиректно јонизујућег зрачења.

Зрачење	LET [keV/μm]
Х зраци	0,2 - 3
Гама зраци	
Електрони	
Протони	15 - 27
Неутрони	20 - 80
Алфа честице, Фисиони фрагменти	60 - 200

Делта зраци су секундарни електрони енергија већих од неколико стотина eV. Делта зраци имају дуге властите путање и своју енергију депонују далеко од примарне

путање. Не постоји прецизна граница којом би се секундарни електрони поделили на делта зраке и оне који то нису.

За прорачунавање енергије пренете некој локализованој регији уведен је концепт ограниченог LET чиме се увођењем енергетског прага  $\Delta$  за енергију која се преноси секундарним електронима, омогућава да високоенергетски секундарни електрони умакну из посматране регије. Код неограниченог LET ( $L_\infty$ ) не постоји ограничење за енергију предату електронима ( $\Delta \rightarrow \infty$ ). Неограничени LET једнак је електронској зауставној моћи ( $L_\infty = S_e$ ).

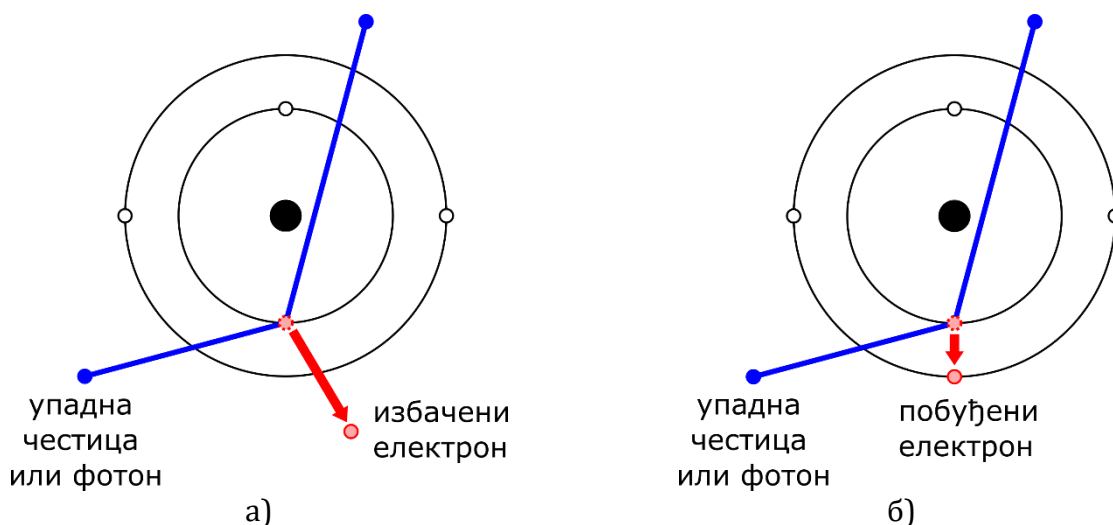
LET се изражава у [J/m] или [keV/ $\mu\text{m}$ ].

## 2.7. Интеракција јонизујућег зрачења са материјом

При проласку кроз материју јонизујуће зрачење може доживети интеракцију и са атомским језгром и са електронским омотачем атома од којих се материјал састоји.

Интеракције зрачења са језгром атома могу бити еластична и нееластична расејања. Интеракције зрачења на електронима у електронском омотачу атома или молекула су увек нееластичне, јер се при њима део енергије троши на промену стања или везаности електрона. Расејања на атомским електронима која се третирају као еластична представљају апроксимације стварних интеракција и важе само под специфичним условима. Еластична расејања фотона на електронима у атому – томсоново и рејлијево расејање представљају моделе расејања који важе само при ниским енергијама фотона, када је довољно разматрати само таласну, а не и честичну природу електромагнетног зрачења. Такође, судар тешке наелектрисане честице са атомским електроном може да се сматра еластичним ако је енергија коју честица преда електрону знатно већа од енергије везе електрона у атому.

Услед интеракције јонизујућег зрачења са материјом долази до јонизације – одвајања електрона од атома или молекула или до екситације – побуђивања електрона у више енергетско стање у омотачу. До јонизације долази када упадна честица или фотон предају орбиталном електрону енергију већу од његове енергије везе чиме он бива избачен из атома. Позитивно наелектрисани атом који овако настаје и избачени електрон чине јонски пар. До екситације долази када енергија упадне честице или фотона није већа од енергије везе орбиталног електрона те га из тог разлога, уместо да га избаци из атома, само побуђује у више енергетско стање. Јонизација и екситација шематски су приказани на слици 2.1.



Слика 2.1. Шематски приказ а) јонизације и б) екситације.

### 2.7.1. Интеракција алфа честица

Алфа честице имају најмањи домет. У ваздуху, алфа честице највеће енергије могу да пређу највише неколико центиметара. Алфа честице су моноенергетске што за последицу има то да оне имају равну апсорпциону криву.

Проласком алфа честица кроз изложени материјал смањује се енергија њихова док њихов број остаје сталан све док не дођу до одређене дубине на којој долази до наглог смањења броја алфа честица. Средњи домет се дефинише као средња дубина читавог снопа идентичних моноенергетских алфа честица а максимални домет као домет до ког су све алфа честице заустављене. За алфа честице енергија 2 – 3 MeV домет ( $R_a$ ) се, за ваздух, може апроксимирати као:

$$R_a = 0.322E^{3/2} \quad (2.15)$$

Домет у било ком другом материјалу се може апроксимирати као:

$$R_a \cdot \rho_a \cdot (A_m)^{0.5} = R_m \cdot \rho_m \cdot (A_a)^{0.5} \quad (2.16)$$

где је:

- $R_a$  – домет алфа честице у ваздуху,
- $\rho_a$  – густина ваздуха,
- $R_m$  – домет алфа честице у посматраном материјалу,
- $\rho_m$  – густина посматраног материјала,
- $A_a$  – молекулска маса ваздуха,
- $A_m$  – молекулска маса посматраног материјала,

Најзначајнији механизам губитка енергије алфа честице је кроз сударе са електронима у изложеном материјалу при чему је енергија коју алфа честица преда електрону:

$$\Delta E = \frac{2(9 \cdot 10^2 \cdot Q \cdot q)}{ma^2v^2} \quad (2.17)$$

где је:

- $Q$  – наелектрисање упадне честице,
- $q$  – наелектрисање електрона,
- $m$  – маса електрона,
- $a$  – најмање растојање између упадне честице и електрона (ударни параметар).

Специфична јонизација алфа честице је веома висока и реда је  $10^4$  јонских парова по центиметру ваздуха. Велика специфичну јонизација последица је великог наелектрисања и мале брзине алфа честице која је узрокована њеном великом масом. Мала брзина алфа честице узрокује дуже време интеракције електричног поља алфа честице и електрона и омогућава пренос енергије довољне за јонизацију. Што алфа честица губи више енергије и успорава, њена специфична јонизација се повећава због дужег времена интеракције. Последица овог успоравања је појава максималне вредности специфичне јонизације при крају домета алфа честице. Овај максимум назива се брагов пик. Због инерције која је последица велике масе алфа честице она веома мало скреће са своје првобитне питање и практично путује по правој линији. Просечна брзина губитка енергије алфа честице дата је изразом:

$$\frac{d\bar{E}}{dR} = \frac{\text{Кинетичка енергија}}{\text{Дошет}} \quad (2.18)$$

## 2.7.2. Интеракција бета честица

Интеракцијом бета честице са орбиталним електронима долази до електронске екситације и јонизације. Бета честица губи своју енергију на савлађивање електричне силе којом је електрон везан у атому а с обзиром да електрична сила делује на великим раздаљинама до интеракције долази без контакта бета честице и електрона. Енергија коју бета честица изгуби зависи од удаљености електрона и његове кинетичке енергије. Кинетичка енергија избаченог електрона дата је изразом:

$$E_k = E_t - \phi \quad (2.19)$$

Упадни електрон може у неким случајевима довести до производње само једног јонског пара док у другим може имати довољно енергије да створи неколико јонизација. Избачени електрон, у малом броју случајева, може имати довољну кинетичку енергију да пређе велик пут и за собом остави траг јонизација (већ поменути делта зрак). С обзиром да бета честице имају једнаку масу као и електрони у омотачу лако их је скренути при интеракцији. Из овог разлога њихова путања при проласку кроз материјал није праволинијска. Просечна енергија која се потроши на производњу јонског пара је 2 до 3 пута већа од јонизационог потенцијала. Разлика између енергије потрошене у јонизацији и укупне енергије коју изгуби јонизујућа честица приписује се електронској екситацији.

Специфична јонизација представља број јонских парова формираних по јединици раздаљине коју пређе бета честица. Специфична јонизација је релативно висока за бета честице ниских енергија и опада брзо са порастом њихових енергија. Линеарна брзина губитка енергије може се израчунати као:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{2\pi q^4 NZ \cdot (3 \cdot 10^9)^4}{E_m \beta^2 \cdot (1,6 \cdot 10^{-6})^2} \left\{ \ln \left[ \frac{E_m E_k \beta^2}{I^2 (1 - \beta^2)} \right] - \beta^2 \right\} \quad (2.20)$$

где је:

- $q$  – наелектрисање електрона ( $1,6 \cdot 10^{-9}$  C),
- $N$  – број атома изложеног материјала по  $\text{cm}^3$ ,
- $Z$  – атомски број изложеног материјала,
- $NZ$  – број електрона изложеног материјала по  $\text{cm}^3$ ,
- $E_m$  – енергија мировања електрона (0,51 MeV),
- $E_k$  – кинетичка енергија бета честице (MeV),
- $\beta = v/c$  – однос брзине бета честице и брзине светлости,
- $I$  – средња енергија јонизације и екситације (MeV) која за ваздух износи  $8,6 \cdot 10^{-5}$  MeV док се за остале материјале рачуна као  $I = 1,35 \cdot 10^{-5} Z$ .

Специфична јонизација се даље може изразити као:

$$SI = \frac{dE}{dx} \quad (2.21)$$

где је:  $w$  – средња енергија потребна за производњу једног јонског пара.



Масена зауставна моћ дефинише се као однос линеарне зауставне моћи и густине материјала који зауставља зрачење и изражава у  $[\text{MeV}/(\text{g}/\text{cm}^2)]$ :

$$S = \frac{dE/dx}{\rho} \quad (2.22)$$

Домет бета честица је дебљина материјала која зауставља све бета честице. У заштити од јонизујућег зрачења се користи правило да је полудебљина (дебљина која зауставља половину бета честица) једнака  $1/8$  домета бета честица [5]. Дебљина изложеног материјала потребна да заустави бета честице мања је што је густина изложеног материјала већа. Способност материјала да заустави бета честица највише зависи од броја електрона на путу бета честице односно од просторне густине електрона у изложеном материјалу а не од његовог атомског броја. Просторна густина електрона је приближно пропорционална производу густине и дебљине изложеног материјала:

$$t_d = \rho \cdot t \quad (2.23)$$

где је:

$t_d$  - просторна густина

$\rho$  - густина изложеног материјала

$t$  - дебљина изложеног материјала

Закочно зрачење (нем. *Bremsstrahlung*) се састоји од  $x$ -зрака који настају кад наелектрисане честице доживе велику промену брзине односно када се брзо убрзају. Тако и када бета честица или електрон прођу близу језгра, снажна, привлачна кулонова сила узрокује да оштро скрену у односу на своју првобитну путању. Ово скретање је радијално убрзање и бета честица губи енергију електромагнетним зрачењем брзином пропорционалном квадрату убрзања (синхротронско зрачење). С обзиром да електрони и бета честице успоравају различитим брзинама током интеракције са материјом, закочно зрачење има континуалну енергетску расподелу.

Енергетска расподела закочног зрачења иде од максималне вредности која је једнака кинетичкој енергији бета честице највеће енергије и веома је искривљена ка ниским енергијама. Ово је последица тога што је број бета честица близу максималне енергије веома мали и што већина бета честица брзину губи кроз више судара од којих сваки носи одређени део енергије.

Закочно зрачење је последица интеракција бета зрачења са материјалом који га окружује. Вероватноћа појаве закочног зрачења расте са порастом енергије бета честице и повећањем атомског броја изложеног материјала. Из овог разлога се контејнери и заштита за бета емитере израђују од материјала са малим атомским бројем. У пракси се ретко користе материјали са атомским бројем већим од 13 (алуминијум).

### 2.7.3. Интеракција гама зрака

Четири основна механизма интеракције гама зрака са материјалом су:

- фотоелектрични ефекат,
- расејање фотона на слободном или везаном електрону:
  - Томсоново (*Thomson*) расејање
  - Рејлијево (*Rayleigh*) расејање
  - Комптоново (*Compton*) расејање,
- производња пара,
- фотонуклеарне реакције

Фотоелектрични ефекат и комптоново расејање укључују интеракције само са орбиталним електронима апсорбера и преовлађују у случајевима где енергија фотона није пуно већа од 1,02 MeV (што је енергија мировања два електрона). За фотоне веће енергије дешава се производња пара која је директна последица претварања енергије у масу. Ова три механизма интеракције резултују емисијом електрона из апсорбера. Фотони високе енергије ( $E \gg 2mc^2$ ) могу бити апсорбовани у језгро и они тада започињу фотонуклеарне реакције које резултују емисијом других типова зрачења из језгра.

### 2.7.3.1. Фотоелектрични ефекат

Фотоелектрични ефекат је интеракција између фотона и чврсто везаног електрона чија енергија везе је једнака или мања од енергије фотона. Примарна честица која настаје овом интеракцијом је фотоелектрон енергије:

$$E_{pe} = h\nu - E_v \quad (2.24)$$

где је:

$h\nu$  – енергија упадног фотона,  
 $E_v$  – енергија везе електрона.

Фотоелектрон предаје своју енергију изложеном материјалу екситацијом и јонизацијом и бива апсорбован електронима у спољним љускама или у другим фотоелектричним интеракцијама близу места настанка. До фотоелектричног ефекта долази већином код фотона ниских енергија при излагању материјала високог атомског броја. За материјале малог атомског броја фотоелектрични ефекат није од значаја. Пресек за ову реакцију може се апроксимирати изразом:

$$\sigma_{pe} \propto \frac{Z^4}{E^3} \quad (2.25)$$

Велика зависност фотоелектричног ефекта од атомског броја  $Z$  чини олово добрим материјалом за заштиту од гама зрака.

### 2.7.3.2. Расејање фотона на слободном или везаном електрону

За разлику од фотоелектричног ефекта до ког долази искључиво код везаних електрона, у процесима еластичног расејања гама зрака, електрон може слободан или везан. Томсоново расејање и Комптонов ефекат се јављају на слободном, док се Рејлијево расејање јавља на везаном електрону.

Томсоново расејање је еластично расејање нискоенергетског фотона на слободном електрону. У случају томсоновог расејања квант електромагнетног зрачења побуђује на осциловање слободни електрон који осцилујући емитује електромагнетно зрачење исте таласне дужине као и упадно а чији је правац емитовања за мали угао померен у односу на упадно зрачење. Пресек за томсоново расејање је:

$$\sigma_{Th} = \frac{8}{3} \pi \left( \frac{e^2}{m_e c^2} \right)^2 = \frac{8}{3} \pi r_0^2 \quad (2.26)$$

Из израза за пресек томсоновог расејања види се да је оно директно пропорционално квадрату полупречника електрона  $r_0$ , као и да ово расејање није зависно од енергије упадног зрачења.

Рејлијево кохерентно расејање је еластично расејање нискоенергетског фотона на електронима везаним у атому. Код рејлијевог расејања не долази до напуштања атома или преласка електрона на виши енергетски ниво, већ се електронски омотач вибрационо побуђује као јединствен систем. Рејлијево расејање се назива кохерентним јер се фотон као електромагнетни талас расејава на свим електронима у омотачу.

Електрони у омотачу побуђени на овај начин емитују ново зрачење које је исте таласне дужине као и упадно електромагнетно зрачење. Крајњи исход је да се фотон расејава под малим углом у односу на упадни правац, при чему је кинетичка енергија коју стекне атом због велике масе занемарљиво мала, због чега се може сматрати да енергија фотона остаје непромењена.

Пресек за рејлијево расејање опада брзо са енергијом упадног зрачења и за енергију упадног зрачења од  $h\nu = m_0c^2$ , износи скоро нула. Углови под којима долази до рејлијевог расејања имају мале вредности односно правац емитованог зрачења углавном је у правцу упадног снопа.

Комптоново расејање је еластични судар фотона са слободним електроном. је Енергија везе слободног електрона је много мања од енергије фотона. С обзиром да фотон у судару не може пренети сву своју енергију електрону он се мора расејати и при том имати или мању енергију или већу таласну дужину него упадни фотон.

Код комптоновог расејања електрону се предаје само разлика упадног и расејаног фотона. Количина пренете енергије може се одредити из закона одржања импулса и енергије одакле се прво рачуна повећање таласне дужине:

$$\Delta\lambda = \lambda' - \lambda = \frac{h}{m_0c}(1 - \cos\theta) \quad (2.27)$$

где је:

$m_0$  – маса мировања слободног електрона,  
 $\theta$  – угао под којим се фотон расеје.

и енергија:

$$E' = \frac{E}{1 + (E/m_0c^2)(1 - \cos\theta)} \quad (2.28)$$

где је:

$E$  – енергија слободног електрона пре расејања,  
 $E'$  – енергија слободног електрона после расејања.

Из једначине (2.27) следи да  $\Delta\lambda$  зависи само од угла под којим се фотон расеје а не од енергије упадног фотона или својстава материјала. Из овога следи да фотон мале енергије и веће таласне дужине при расејању губи мање енергије од фотона веће енергије и мале таласне дужине. Расејани електрон (комптонов електрон) не може се расејати под углом већим од  $90^\circ$  и он представља механизам којим фотон преноси енергију материјалу. Комптонов електрон своју енергију преноси на исти начин као и бета честица.

Вероватноћа да дође до комптоновог расејања повећава се са повећањем енергије упадног фотона. Ова вероватноћа не зависи од атомског броја материјала. С обзиром да за комптоново расејање до расејања може доћи на сваком електрону, то вероватноћа

комптоновог ефекта зависи од електронске густине материјала. У случају расејања у просторни угао  $d\Omega$  под углом  $\Theta$  у односу на упадни угао тотални коефицијент за расејање дат је као:

$$\frac{d\sigma_t}{d\Omega} = \frac{e^4}{2m_0^2c^4} \left[ \frac{1}{1 + a(1 - \cos\theta)} \right]^2 \left[ \frac{1 + \cos^2\theta + a^2(1 - \cos\theta)^2}{1 + a(1 - \cos\theta)} \right] \quad (2.29)$$

где је:  $a = hf/m_0c^2$

### 2.7.3.3. Производња пара

Производња пара електрон-позитрон је нееластична интеракција фотона са језгром. Фотон енергије веће од 1,02 MeV који пролази близу језгра спонтано нестаје а његова енергија се претвара у један позитрон и један електрон. Свака од ове две честице има енергију од 0,511 MeV ( $m_0c^2$ ) а укупна енергија реакције је приближно  $E_{\text{фотона}} - 2m_0c^2$ . До овакве реакције мора доћи у близини језгра или неке друге честице због закона о одржању импулса. С обзиром да је кинетичка енергија језгра веома мала сва кинетичка енергија фотона преко енергије потребне за производњу пара постаје кинетичка енергија пара електрон-позитрон. До производње пара може доћи и у близини електрона али је вероватноћа за тако нешто веома мала а енергетски праг за производњу пара у близини електрона је  $4m_0c^2$ . Ово повећање енергетског прага последица је интеракције са електроном јер да би се одржао импулс он мора бити избачен уназад великом брзином с обзиром да му је маса једнака маси произведеног пара.

Попречни пресек који представља вероватноћу за производњу пара електрон-позитрон је приближно пропорционалан  $Z^2 + Z$ . Пресек споро расте у опсегу од 1,02 MeV до 5 MeV док изнад те вредности расте логаритамски са повећањем енергије. После производње пара електрон и позитрон се избацују унапред у односу на смер упадног фотона и сваки од њих даље губи енергију екситацијом, јонизацијом или заковним зрачењем. Када позитрон изгуби сву своју енергију он се рекомбинује са електроном и њихове масе се претварају у енергију у форми два кванта анихилационог зрачења енергија по 0,511 MeV.

### 2.7.3.4. Фотодезинтеграција

Фотодезинтеграција је фотонуклеарна реакција код које језгро атома материјала изложеног зрачењу захвата фотон високе енергије и, у већини случајева, емитује неутрон или, ако је енергија довољно велика нуклеон из језгра. Ова реакција има праг који зависи од језгра атома изложеног материјала а који треба да буде превазиђен да би дошло до реакције. Фотодезинтеграција је високоенергетска реакција и није типична реакција за фотоне а од значаја је јер је праћена производњом неутрона услед којих може доћи до неутронске активације.

Пресек за фотодезинтеграцију много је мањи од укупног пресека за друге реакције фотона те се стога овај ефекат, осим за фотоне енергија већих од 10 MeV не узима у обзир при процени заштитних баријера.

Фотодезинтеграција има праг који мора бити једнак најмање енергији везе нуклеона. Праг је нижи за неутроне јер нема кулонске силе која би их везивала у језгру те је стога емитовање неутрона вероватније. Праг енергије за овај ефекат креће се од 1,67 MeV до приближно 8 MeV.

Разлика енергија упадног фотона и енергетског прага постаје кинетичка енергија емитованог неутрона или, у ретком случају, нуклеона.

### 2.7.3.5. Атенуација гама зрака

Атенуација гама зрака разликује се од атенуације алфа и бета честица јер за разлику од ових честица које се потпуно могу зауставити, интензитет гама зрака се може смањити али они не могу бити потпуно апсорбовани. Интензитет снопа гама зрака после проласка кроз материјал дебљине  $t$  дат је изразом:

$$I = I_0 e^{-\mu t} \quad (2.30)$$

где је:

$I$  – интензитет снопа гама зрака после проласка кроз материјал дебљине  $t$ ,  
 $I_0$  – интензитет снопа гама зрака пре проласка кроз материјал,  
 $t$  – дебљина изложеног материјала,  
 $\mu$  – коефицијент атенуације (слабљења).

Ако се коефицијент атенуације  $\mu$  изражава у  $[1/\text{cm}]$  онда се назива линеарни коефицијент атенуације и обележава са  $\mu$ . Ако се  $\mu$  изражава у  $[\text{g}/\text{cm}^2]$  онда се назива масени коефицијент атенуације и обележава са  $\mu_m$ . Веза између линеарног и масеног коефицијента атенуације дата је изразом:

$$\mu_l = \mu_m \cdot \rho \quad (2.31)$$

Коефицијент атенуације је дефинисан као слабљење интензитета снопа гама зрака по јединици дебљине изложеног материјала:

$$\lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{\Delta I / I}{\Delta t} = -\mu \quad (2.32)$$

где је:  $\Delta I / I$  – удео снопа гама зрака који ослаби материјал дебљине  $\Delta t$ .

Може се дефинисати и атомски коефицијент атенуације  $\mu_a$  који представља део упадног снопа гама зрака који је ослабљен једним атомом. Атомски коефицијент атенуације представља вероватноћу за интеракцију једног фотона са једним атомом изложеног материјала:

$$\mu_a = \frac{\mu_l}{N} \quad (2.33)$$

где је:  $N$  – број атома изложеног материјала по  $\text{cm}^3$ .

Да би се додатно разликовали,  $\mu_a$  се назива микроскопски а  $\mu_l$  макроскопски пресек. Тако се и  $\mu_a$  обележава са  $\sigma$  а  $\mu_l$  са  $\Sigma$ .

Линеарни коефицијент атенуације за смеше елемената је дефинисан као:

$$\mu_l = \mu_{a1} \cdot N_1 + \mu_{a2} \cdot N_2 + \dots = \sum_{n=1}^n \mu_{an} \cdot N_n \quad (2.34)$$

где је:

$\mu_n$  – микроскопски пресек  $n$ -тог елемента смеше,  
 $N_n$  – број атома  $n$ -тог елемента смеше изложеног материјала по  $\text{cm}^3$ .

Атенуациона својства материјала зависе од атомског броја изложеног материјала и енергије гама зрака иако у делу енергије где је комптонов ефекат доминантан готово да нема зависности од атомског броја.

За енергије фотона између 0,75 и 5 MeV скоро сви материјали имају иста атенуациона својства. Из овог разлога, као апроксимацију можемо усвојити да су у овом енергетском опсегу особине материјала који се користе за заштитне баријере пропорционалне његовој густини. За мање и веће енергије, изложени материјали већег атомског броја су ефикаснији од оних са мањим атомским бројем.

Полудебљина (енг. *half value layer* - *HVL*) је дефинисана као дебљина заштитне баријере која смањује интензитет зрачења на половину:

$$\frac{I}{I_0} = \frac{1}{2} = e^{-\mu t} \quad (2.35)$$

$$\ln \frac{1}{2} = -0,693 = -\mu t_{1/2} \quad (2.36)$$

$$t_{1/2} = \frac{0,693}{\mu} = HVL \quad (2.37)$$

У општем случају број полудебљина потребан да се интензитет спусти на одређену вредност одређен је као:

$$\frac{I}{I_0} = \frac{1}{2^n} \quad (2.38)$$

Заштитна баријера која спушта ниво интензитета зрачења на 10% његове почетне вредности назива се *tenth value layer* - *TVL*:

$$\frac{I}{I_0} = \frac{1}{10} = \frac{1}{2^n} \quad (2.39)$$

$$n = 3,3 \cdot HVL \quad (2.40)$$

Коефицијенти атенуације или попречни пресеци представљају вероватноће да се фотон уклони из снопа. Укупни коефицијент атенуације је стога збир коефицијената атенуације за наведене интеракције:

$$\mu_T = \mu_{pe} + \mu_{Cs} + \mu_{pp} \quad (2.41)$$

где је:

$\mu_{pe}$  – пресек за фотоелектрични ефекат,

$\mu_{Cs}$  – пресек за комптоново расејање,

$\mu_{pp}$  – пресек за производњу пара.

Овом једначином дат је део енергије који се уклони из снопа по јединици дебљине изложеног материјала. Овде је укључена енергија коју сноп депонује у изложеном материјалу фотоелектроном, комптоновим електроном или паром електрон-позитрон. Енергија коју расејани фотон однесе у комптоновом расејању и коју анихилационо зрачење однесе у производњи пара није укључена у ову формулу.

Коефицијент апсорпције енергије назива се и стварни коефицијент апсорпције, користи се за прорачун дозе и дат је следећим изразом:

$$\mu_e = \mu_{pe} + \mu_{Cs} + \mu_{pp} \left( \frac{hf - 1,02}{hf} \right) \quad (2.42)$$

#### 2.7.4. Интеракција неутрона

Најзначајнији механизми интеракције неутрона су еластично расејање и захват праћени емисијом фотона или друге честице из изложеног материјала.

За квантификовање способности материјала да неутроне уклони из снопа, обично се, уместо линеарног или масеног коефицијента атенуације, користи само микроскопски пресек  $\sigma$ . Пресеци за неутроне веома зависе од енергије.

Уклањање неутрона из снопа описано је изразом:

$$I = I_0 e^{-\sigma N t} \quad (2.43)$$

где је:

$I$  – интензитет снопа неутрона после проласка кроз материјал дебљине  $t$ ,

$I_0$  – интензитет снопа неутрона пре проласка кроз материјал,

$t$  – дебљина изложеног материјала,

$\sigma N$  – макроскопски пресек  $\Sigma$ .

Неутрони у судару са језгром могу доживети еластично или нееластично расејање. У случају нееластичног, они могу део енергије пренети на језгро и побудити га. Побуђено језгро се потом враћа у основно стање емисијом гама зрака. Да би до ове реакције дошло потребно је да се пређе енергетски праг. Пресек за нееластично расејање је мањи за неутроне ниских енергија и расте са порастом енергије.

Еластично расејање је најчешћи тип интеракције између брзих неутрона и материјала мањег атомског броја при чему важе закони одржања импулса и енергије. Енергија расејаног неутрона после судара је:

$$E = E_0 \cdot \left( \frac{M - m}{M + m} \right)^2 \quad (2.44)$$

где је:

$E_0$  – енергија упадног неутрона

$m$  – маса упадног неутрона

$M$  – маса расејаног језгра

Енергија пренета на мету је дата изразом:

$$E_0 - E = E_0 \cdot \left[ 1 - \left( \frac{M - m}{M + m} \right)^2 \right] \quad (2.45)$$

Неутрон, у судару са водоником може атому водоника пренети сву своју енергију док код судара са тежим језгрима ово није могуће. Језгра са мањим масеним бројем ефикасније успоравају неутроне. С обзиром да већина судара није, по правцу, директна предата енергија је скоро увек мања од енергије дате горњим једначинама.

Брзи неутрони док пролазе кроз материјал енергију губе кроз узастопне сударе. Средње логаритамско опадање енергије по судару остаје константно, независно је од енергије и зависи само од масе расејаног језгра а дефинише се као:

$$\xi = \overline{\Delta \ln E} = \overline{\ln E_0 - \ln E} = \overline{\ln \frac{E_0}{E}} = -\overline{\ln \frac{E}{E_0}} \quad (2.46)$$

Овај израз може се написати и као:

$$\xi = 1 + \frac{\alpha \ln \alpha}{1 - \alpha} \quad (2.47)$$

где је:  $\alpha = [(M-m) / (M+m)]$

Медијана енергије упадног неутрона која се преда језгру мете током судара је:

$$f = 1 - \frac{E}{E_0} = 1 - e^{-\xi} \quad (2.48)$$

Погођено језгро постаје јонизујућа честица и ослобађа своју кинетичку енергију у материјал екситацијом и јонизацијом.

Раздаљина коју неутрон пређе у материјалу зависи од броја и удаљености судара. Раздаљина коју термални неутрон пређе до апсорпције мери се дужином термалне дифузије која је дефинисана као дебљина материјала који успорава неутроне фактором  $e$ :

$$n = n_0 e^{-t/L} \quad (2.49)$$

где је:

$n$  – интензитет снопа термалних неутрона после проласка кроз материјал,

$n_0$  – интензитет снопа термалних неутрона пре проласка кроз материјал,

$t$  – дебљина изложеног материјала

$L$  – дужина термалне дифузије

Као што је претходно речено, брзи неутрони брзо губе енергију у еластичним сударима ако интерагују са материјалом малог атомског броја. Вероватноћа за захват неутрона се повећава како њихова енергија опада до термалних нивоа или близу њих.

Пресек за апсорпцију многих језгара пропорционалан је квадратном корену кинетичке енергије и обрнуто је сразмеран брзини:

$$\sigma \propto \frac{1}{\sqrt{E}} \propto \frac{1}{v} \quad (2.50)$$

Пресек за термалне неутроне обично се изражава преко енергије као:

$$\frac{\sigma}{\sigma_0} = \frac{v_0}{v} = \sqrt{\frac{E_0}{E}} \quad (2.51)$$



Битно је напоменути да је енергија неутрона директно сразмерна температури:

$$\frac{\sigma}{\sigma_0} = \frac{v_0}{v} = \sqrt{\frac{T_0}{T}} \quad (2.52)$$

Интеракције неутрона са водоником и кадмијумом (веома присутним у нуклеарним реакторима) резултују емисијом  $x$ -зрака високе енергије док захват термалних неутрона језгром  $^{10}\text{B}$  ослобађа ниско енергетске гама зраке. Захват неутрона језгром  $^{14}\text{N}$  резултује емисијом протона.

## 2.8. Губитак енергије зрачења при проласку кроз материјал

### 2.8.1. Губитак енергије директно јонизујућег зрачења

Губитак енергије директно јонизујућег зрачења (наелектрисаних честица) током проласка кроз материјал описује се зауставном моћи материјала –  $S$ . Зауставна моћ представља специфични губитак енергије честица, односно средњи губитак енергије наелектрисаних честица одређеног типа и енергије по јединици пређеног пута и зависи од типа и енергије наелектрисаних честица. Зауставна моћ може се изразити као:

$$S = -\frac{dE}{dx} \quad (2.53)$$

где је:

$dE$  – средња вредност енергије коју наелектрисане честице изгубе прелазећи пут  $dx$  – унутар посматраног материјала.

Зауставна моћ представља збир три зауставне моћи – електронске ( $S_e$ ), нуклеарне ( $S_n$ ) и радијативне ( $S_r$ ):

$$S = S_e + S_n + S_r \quad (2.54)$$

Свака од ове три компоненте описује посебан вид губитка енергије наелектрисаних честица.

#### 2.8.1.1. Електронска зауставна моћ

Електронска зауставна моћ ( $S_e$ ) представља губитак енергије наелектрисаних честица кроз интеракције са електронима.

С обзиром да се губитак енергије тешких и лаких наелектрисаних честица путем кроз интеракције са електронима одвија се на различите начине изрази за електронску зауставну моћ за тешке и лаке наелектрисане честице су различити.

Електронска зауставна моћ материјала за тешке наелектрисане честице, позната као Бетеова формула дата је изразом:

$$S_e = 2\pi Z_1^2 r_0^2 \frac{m_0 c^2}{\beta^2} \frac{\rho N_A Z_2}{M_m} \left[ \ln \frac{2m_0 c^2 \beta^2 (E_{kme})_{max}}{I^2 (1 - \beta^2)} - 2\beta^2 \right] \quad (2.55)$$

где је:

$Z_2$  – атомски број изложеног материјала  
 $\rho$  – густина изложеног материјала  
 $M_m$  – моларна маса изложеног материјала  
 $r_0 = e^2/(4\pi\epsilon_0 m_e c^2)$  – класични радијус електрона  
 $Z_1$  – атомски број тешке наелектрисане честице  
 $v$  – брзина тешке наелектрисане честице,  
 $m_0$  – маса мировања електрона,  
 $N_A$  – Авогадров број,  
 $I$  – средња енергија екситације,  
 $c$  – брзина светлости у вакууму,  
 $\beta = v/c$  – однос брзине тешке наелектрисане честице и брзине светлости,  
 $M$  – маса мировања честице,  
 $(E_{k m_e})_{max}$  – максимална енергија која може да се пренесе са честице на електрон у једном судару.

Средња енергија екситације  $I$  изражена је емпиријским изразом:

$$I = \begin{cases} 19 \text{ eV} & Z_2 = 1 \text{ (водоник)} \\ 11,2 + 11,7 \cdot Z_2 \text{ [eV]} & 2 \leq Z_2 \leq 13 \\ 52,8 + 8,71 \cdot Z_2 \text{ [eV]} & Z_2 \geq 13 \end{cases} \quad (2.56)$$

Промена вредности средње енергије екситације се за неки хемијски елемент не зависи од агрегатног стања материјала у чији састав елемент улази и занемарљива је када се атом тог елемента нађе у једињењу.

Максимална енергија која може да се пренесе са честице на електрон у једном судару је за случај тешких честица дата изразом:

$$(E_{k m_e})_{max} = 2m_e \gamma^2 \beta^2 c^2 \quad (2.57)$$

Електронска зауставна моћ за лаке наелектрисане честице (електроне и позитроне) дата је изразом:

$$S_e^\pm = 4\pi r_0^2 m_0 c^2 \frac{\rho N_A Z}{M_m} \frac{1}{\beta^2} \left[ \ln \frac{m_e c^2 \tau \sqrt{\tau + 2}}{\sqrt{2} I} + F^\pm(\tau) \right] \quad (2.58)$$

где је:

$\tau = E_k/m_e c^2$  – кинетичка енергија упадне лаке честице,  
 $Z$  – атомски број изложеног материјала,  
 $\beta = v/c$  – однос брзине лаке наелектрисане честице и брзине светлости.

$F(\tau)$  се разликује за електроне и позитроне:

$$F^-(\tau) = \frac{1 - \beta^2}{2} \left[ 1 + \frac{\tau^2}{8} - (2\tau + 1) \ln 2 \right] \quad (2.59)$$

$$F^+(\tau) = \ln 2 - \frac{\beta^2}{24} \left[ 23 + \frac{14}{\tau + 2} + \frac{10}{(\tau + 2)^2} + \frac{4}{(\tau + 2)^3} \right] \quad (2.60)$$

Изрази за електронску зауставну моћ и за тешке и за лаке наелектрисане честице није применљив на веома ниским енергијама, јер не предвиђа опадање електронске зауставне моћи.

#### 2.8.1.2. Нуклеарна зауставна моћ

Нуклеарна зауставна моћ ( $S_n$ ) представља губитак енергије наелектрисаних честица у еластичним расејањима на језгрима. Овај вид губитка енергије значајан је за тешке јоне ( $Z \geq 3$ ). Еластични судари осталих наелектрисаних честица са језгром могу да доприносе само скретању, док је губитак енергије занемарљив.

Нуклеарна зауставна моћ је већа што је јон масивнији. Нуклеарна зауставна моћ за алфа честице достиже значајније вредности при енергијама мањим од 100 keV док за тешке јоне постаје значајна тек на енергијама нижим од 1 MeV.

Током проласка кроз материјал брзи јони већином губе енергију путем електронских судара а ређе расејањем на језгру. Успоравањем јона долази до опадања нуклеарне зауставне моћи због смањења ефективног наелектрисања јона. У том случају губици у сударима са језгрима постају значајни. На још нижим енергијама јона, до изражаја долази екранирање језгара јона и атома електронским омотачима, због чега нуклеарна зауставна моћ достиже свој максимум након ког опада.

#### 2.8.1.3. Радијативна зауставна моћ

Радијативна зауставна моћ ( $S_r$ ) описује губитак енергије наелектрисаних честица путем емисије закочног зрачења. У већини материјала, радијативни губици су доминантни само на енергијама електрона и позитрона већим од неколико десетина MeV. На овако високим енергијама, радијативна зауставна има приближно линеаран пораст са порастом енергије електрона. Истовремено електронска зауставна моћ за електроне благо логаритамски расте.

Однос радијативне и електронске зауставне моћи за електроне може се приближно дати као:

$$\frac{S_r^-}{S_e^-} \approx \frac{ZE}{800} \quad (2.61)$$

где је

$Z$  – атомски број материјала,

$E$  – укупна енергија електрона.

#### 2.8.2. Губитак енергије индиректно јонизујућег зрачења

Губитак енергије неутрона и фотона током проласка кроз материјал је двостепени процес. Прво долази до преноса енергије са фотона или неутрона на секундарне наелектрисане честице које потом губе овако стечену кинетичку енергију.

Енергија фотона се у материјалу првенствено претвара у кинетичку енергију фотоелектрона, комптонових електрона, и електрона и позитрона који настају производњом пара. У случају неутрона, секундарне честице су протони који узмичу у еластичним сударима у срединама богатим водоником, алфа честице, резидуални јони настали у ( $n, \alpha$ ) нуклеарним реакцијама и терцијарни електрони (тзв. епсилон зраци) које произведу секундарни гама зраци из ( $n, \gamma$ ) реакција или при релаксацији резидуалних језгара из других неутронских нуклеарних реакција.

Секундарне наелектрисане честице могу да однесу и депонују енергију коју стекну у интеракцијама фотона или неутрона даље од места примарне интеракције. До метом секундарних наелектрисаних честица одређено је растојање од места примарне интеракције фотона или неутрона до места на коме секундарне наелектрисане честице губе енергију.

## 3. Утицај јонизујућег зрачења на полимерне, геополимерне и композитне материјале

### 3.1. Полимерни материјали

Полимерни материјали су технички употребљиве полимерне супстанце, односно полимери који се могу прерађивати и од којих може бити сачињен готов производ. Полимерни материјали могу бити природни, модификовани природни или синтетички.

Међународна унија за чисту и примењену хемију (енг. *International Union for Pure and Applied Chemistry – IUPAC*) дефинише полимер као супстанцу сачињену од макромолекула. Макромолекул је молекул велике релативне молекулске масе чија се структура састоји од вишеструко поновљених јединица изведених, стварно (практично) или концептуално, из молекула ниске релативне молекулске масе тзв. мономера. [13] Појам полимер изведен је из грчких речи „поли“ (полу) која значи „много“ и „мер“ (μέρος) која значи „део“.

Структурне јединице полимера су основни мотив и сегмент. Основни мотив је структурна јединица у полимеру односно конститутивна јединица која се понавља дуж ланца. Сегмент такође представља структурну или кинетичку јединицу и користи се при анализи веза структуре и понашања макромолекула. Ланац је читав макромолекул или део макромолекула који се састоји од линеарних или разгранатих секвенци поновљених основних мотива.

У табели 3.1 дат је преглед наведених појмова у вези полимера и њихових хемијских ознака на примеру полиетилена.

Полимерни материјали састоје се из полимерне основе која је чист производ хемијске реакције полимеризације и додатака који се додају ради побољшавања својстава полимерних материјала значајних за њихову прераду или каснију употребу [14, 15]. Према функцији додаци се могу поделити на:

- Додатке за прераду, као што су топлотни стабилизатори, спољашња и унутрашња мазива, раздљивачи, регулатори вискозности, додаци за умрежавање (умреживачи, иницијатори, активатори)
- Додатке за промену механичких својстава, као што су пластификатори, додаци за повећање жилавости, пунила, ојачивачи и приањала
- Додатке за промену површинских својстава, као што су регулатори адхезивности, унутрашњи и спољашњи антистатистици, додаци за смањење блокирања
- Додатке за промену оптичких својстава, као што су боје, пигменти и структуризатори
- Додатке за повећање трајности, као што су УВ стабилизатори, антиоксиданси и биоциди
- Додатке за смањење горивости
- Пенила

Табела 3.1. преглед појмова у вези полимера и њихових хемијских ознака на примеру полиетилена.

Појам	Хемијска ознака
полимер (полиетилен):	- (CH <sub>2</sub> - CH <sub>2</sub> ) <sub>n</sub> -
сегмент:	- CH <sub>2</sub> - CH <sub>2</sub> - CH <sub>2</sub> - CH <sub>2</sub> - CH <sub>2</sub> -
мономер (етилен):	H <sub>2</sub> C = CH <sub>2</sub>
основни мотив:	- CH <sub>2</sub> -

Такође, полимерни материјал може бити израђен од више различитих полимера помешаних у хомоген материјал тзв. полимерну бленду [14].

Везе које постоје између мономера унутар полимерног ланца су примарне (по карактеру су то ковалентне везе), док су везе које постоје између ланаца полимера секундарне (Ван дер Валсове или водоничне везе). Секундарне везе су знатно слабије од примарних. У умреженом полимеру везе између ланаца су такође примарне.

Механичка својства полимерних материјала зависе од степена кристаличности и то тако да са повећањем кристаличности расту тврдоћа и густина, док растегљивост, гумасте карактеристике и отпорност на раствараче и топлоту опадају. С обзиром да је индекс преламања светлости пропорционалан густини материјала, кристаличност утиче и на оптичка својства. Што је већи удео кристалне фазе, која има већу густину, већа је и непрозирност. Потпуно аморфни полимери, као поликарбонати или акрили, могу бити прозирни. Најраширенија група полимерних материјала су пластомери, који се међусобно разликују по степену уређености структуре:

- Аморфни пластомери – прозирни (немодификовани)
- Кристални пластомери – мутни и непрозирни (немодификовани)
- 

Полимерни материјали су у општем случају вискоеластични материјали. Они се, у зависности од спољашњих услова којима су изложени, као што су притисак, температура и силе које делују на материјал, могу понашати као еластична тела или вискозне течности. Најважнији фактори који одређују механичка својства полимерних материјала су: просечне молекулске масе, расподела молекулске масе, степен уређености аморфних полимера и степен кристаличности. Поред тога, механичка својства полимерног материјала који садржи разне адитиве зависи, између осталог, од врсте адитива, величине честица адитива и њихове расподеле.

### 3.1.1. Подела полимерних материјала

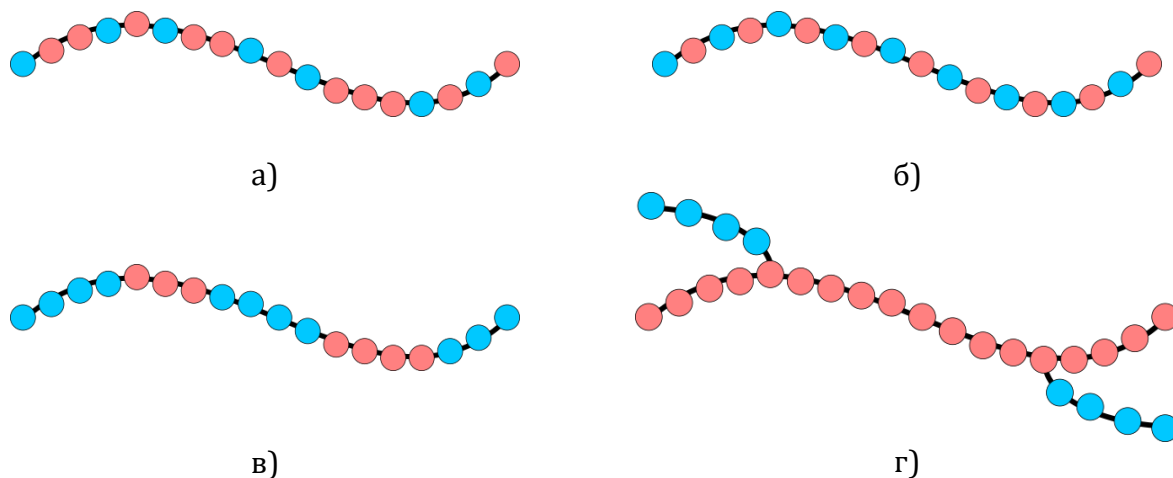
Основна подела полимерних материјала је према њиховом настанку, где се они деле на:

1. природне полимерне материјале
2. модификоване природне полимерне материјале
3. синтетичке полимерне материјале

Поред поделе према настанку, они се могу поделити и на друге начине:

- Према броју типова мера у макромолекулу полимери се деле на:
  1. хомополимере, који су изграђени од једног типа мономера и
  2. кополимере, који су изграђени од два или више типова мономера
- Постоје четири важна типа кополимера и то су:
  1. статистички (случајан) кополимер, кога чине два различита мономера, чији редослед везивања у ланцу је случајан.
  2. алтернирајући (измењујући) кополимер, који има грађу у којој се наизменично смењују два мономера.
  3. блок кополимер, код кога у ланцу постоје блокови састављени од истог мономера.
  4. калемљени (енг. *graft*) кополимер, који настаје хемијском модификацијом полимерног ланца, тако што се на основни ланац везују (калеме) молекули мономера или читави ланци одједном.

Типови кополимера приказани су на слици 3.1.



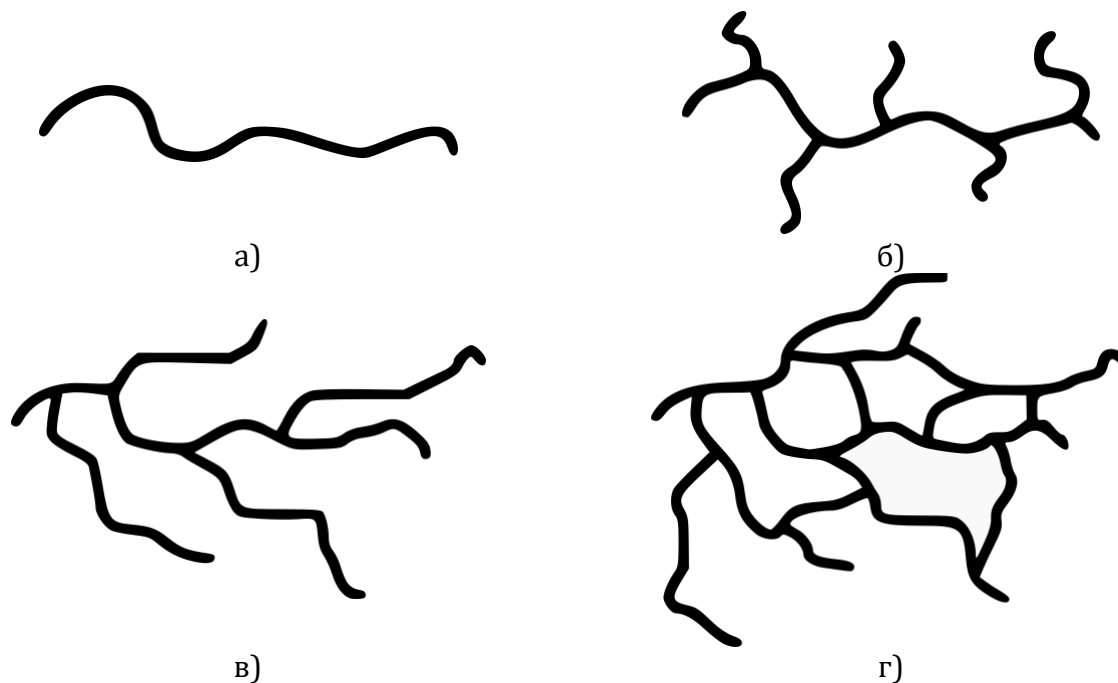
Слика 3.1. Типови кополимера: а) статистички кополимер, б) измењујући кополимер, в) блок кополимер г) калемљени кополимер.

Полимери се на основу структуре молекула деле на линеарне, разгранате и умрежене полимере [16]. На слици 3.2 приказана је подела полимера на основу структуре молекула.

Линеарни полимери обично немају бочних грана везаних за главни ланац, а и ако их имају, мало их је и занемарљиве су дужине. Оваква структура линеарних полимера омогућава њихову кристализацију. Пример линеарног полимера је полиетилен високе густине (енг. *High Density Poly Ethylene – HDPE*).

Код разгранатих полимера, за неке од понављајућих јединица главног ланца везани су бочни ланци који су обично мањег степена полимеризације. Пример разгранатог полимера је полиетилен ниске густине (енг. *Low Density Poly Ethylene – LDPE*). Разгранати полимери су због своје структуре делимично аморфни.

Умрежени полимери састоје се од линеарних или разгранатих ланаца који су међусобно повезани у дводимензионалне или тродимензионалне мреже преко ковалентних или јонских веза. Код ове врсте полимера нема главног ланца, већ су све понављајуће јединице спојене у тродимензионалну мрежу. Ова врста полимера се по својствима знатно разликује од линеарних полимера. Умрежени полимери су нетопљиви и термостабилни. Лествичастии полимери су посебна врста умрежених полимера код којих долази до умрежавања само два ланца.



Слика 3.2. Подела полимера на основу структуре молекула: а) линеаран, б) разгранат (кратке гране), в) разгранат (дуге гране), г) умрежен.

Према супрамолекулској структури, полимерни материјали се деле на аморфне и кристалне. [15] Код аморфних полимерних материјала, полимерни ланци су испреплетани без уређености структуре. За разлику од аморфних, код кристалних полимера структура понављајућих јединица омогућава правилан распоред макромолекулских сегмената и тродимензионалну уређеност. Полимерни материјали углавном садрже како подручја кристалних структура тако и подручја неуређених, аморфних структура, па се сматрају семикристалним материјалима. Полимерни материјали могу бити потпуно аморфни, али не и потпуно кристалинични. Што је већи удео кристалне фазе у материјалу, то су веће чврстоћа, тврдоћа и густина материјала. Већи удео аморфне структуре доприноси већој еластичности и дуктилности. [15]

Полимерни материјали настају полимеризацијом. Полимеризација је хемијска реакција којом из мономера или смеше мономера настаје полимер. [13, 17] Степен полимеризације (енг. *degree of polymerization*,  $DP$ ) представља број мономерних јединица у једном макромолекулу, односно полимерном ланцу [13]. Степен полимеризације директно је пропорционалан молекулској маси полимера и дат је изразом:

$$DP = \frac{M_n}{M_0} \quad (3.1)$$

где је:

$M_n$  – молекулска маса макромолекула

$M_0$  – молекулска маса мономерне јединице



Реакције полимеризације деле се на *ланчане* и *постепене*. Ланчане реакције полимеризације одвијају се кроз три фазе: иницијацију, пропацију и терминацију. У фази иницијације се помоћу иницијатора производи примарни активни центар. Иницијатор је извор било које хемијске врсте која реагује са мономером и прави једињење које се потом сукцесивно везује са великим бројем других мономера у полимер. Примарни активни центар потом реагује са молекулом мономера при чему настаје нови активни центар. У фази пропације, активни центар наставља да реагује са новим молекулом мономера, стварајући поново нови активни центар. Молекули мономера се на овај начин додају све до фазе терминације, у којој долази до деактивације активних центара, односно прекидања раста мономера. Макромолекули настали ланчаним реакцијама имају идентичан хемијски састав као и молекули мономера. На основу типа активних центара који иницирају или пропацирају процес полимеризације, ланчане реакције полимеризације могу бити слободно радикалске, катјонске, анјонске и координационе.

Код постепенних реакција полимеризације, за разлику од ланчаних реакција, не постоје фазе иницијације, пропације и терминације, већ полимеризација зависи искључиво од реакција функционалних група мономера. Реакције се одвијају кроз насумичну кондензацију или адицију свих молекула присутних у реакционој смеси. Моларна маса молекула код постепенних реакција полимеризације споро и континуално расте са временом, па је за добијање полимерних ланаца великих молекулских маса потребно дуго време.

Постепене реакције полимеризације могу бити кондензационе (поликондензација) или адиционе (полиадиција). Кондензационе полимеризације се одвијају кроз међумолекулску кондензацију две различите функционалне групе, при чему настају нове групе уз издвајање споредних производа у виду малих молекула (нпр. воде). Адиционе полимеризације се одвијају кроз адицију једне функционалне групе на другу, али без издвајања споредних производа у виду малих молекула као што је то случај код кондензационе полимеризације.

### 3.1.1.1. Синтетички полимерни материјали

Синтетички полимерни материјали се према структури, својствима, врсти веза између молекула, понашању при загревању, као и према умрежености деле на *пластомере*, *еластомере* и *дуромере*. Подела синтетичких полимерних материјала и карактеристике њихове структуре дате су на слици 3.3.

Врсте полимера	Пластомери			Еластомери		Дуромери
	аморфни		кристални	еласто-пластомери	умрежени	
Структура	линеарна	разграната	линеарна	растресито умрежена		просторно умрежена
Структурна уређеност	аморфна		делимично кристална	аморфна слабо сређена		аморфна

Слика 3.3. Подела синтетичких полимерних материјала и карактеристике њихове структуре.

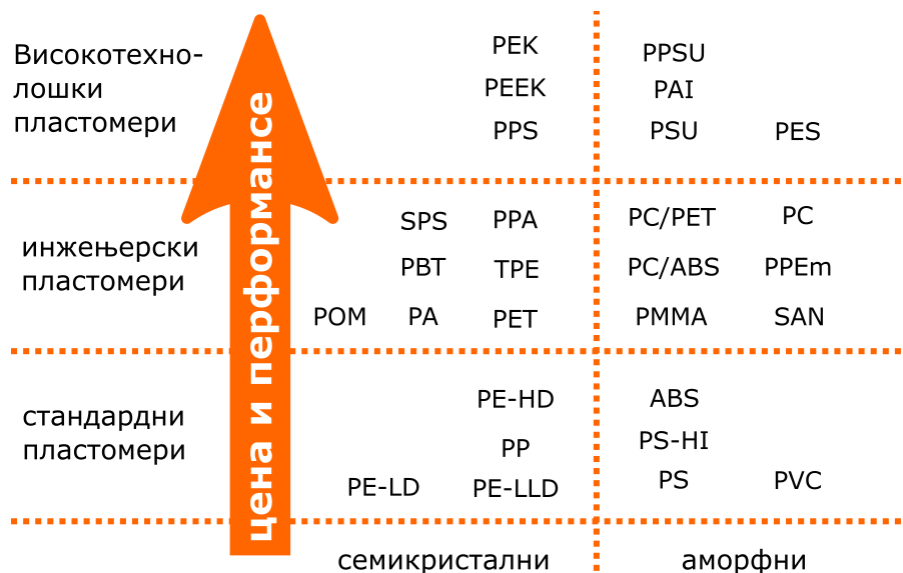
### 3.1.1.2. Пластомери

Пластомери или термопласти су аморфни или семикристални синтетички полимерни материјали код којих су макромолекули међусобно повезани искључиво секундарним везама. Већина пластомера настаје адиционом полимеризацијом. Пластомери имају линеарне и разгранате макромолекуле, топљиви су и у растварачима бубре.

Због високог степена полимеризације код пластомера, број секундарних веза је веома велики. Управо из тог разлога ове везе, иако слабе, имају довољно велику укупну енергију да пластомери показују својства каква су пожељна у многим применама. Загревањем полимерног материјала долази до постепеног слабљења и раскидања секундарних веза које повезују макромолекуле. Како је број секундарних веза веома велик, последице њиховог раскидања не примећују се одмах. На местима где је дошло до раскидања секундарних веза између макромолекула долази до повећане покретљивости њихових сегмената. Како са порастом температуре долази до раскидања све више секундарних веза, то покретљивост сегмената макромолекула постаје све већа. Последица повећане покретљивости макромолекула је омекшавање пластомера. Даљим повећањем температуре може доћи до потпуног нестанка секундарних веза, чиме долази до потпуно слободног кретања макромолекула, а полимер прелази у растоп. Хлађењем пластомера, секундарне везе се постепено успостављају и полимер поново прелази у чврсто стање. С обзиром да се овакав циклус омекшавања и очвршћавања пластомера, може понављати, они могу да се рециклирају.

У најчешће коришћене пластомере спадају: полиетилен (*PE*), полипропилен (*PP*), полистирен (*PS*), поливинил хлорид (*PVC*), политетрафлуоретилен (*PTFE*, тефлон), полиоксиметилен (*POM*), полиметилметакрилат (*PMMA*), линеарни полиуретан (*PUR*). Неки пластомери добијају се кондензационом полимеризацијом и то су поликарбонати (*PC*), полиамиди (*PA*) и полиетилен терафталат (*PET*).

Пластомери се према примени могу поделити на стандардне, инжењерске и високотехнолошке. На слици 3.4 приказани су пластомери који спадају у ове три групе.



Слика 3.4. Стандардни, инжењерски и високотехнолошки пластомери.

### 3.1.1.3. Дуромери

Дуромери или дурупласти су синтетички полимерни материјали који имају потпуно умрежену структуру. Код дууромера, макромолекули су међусобно повезани примарним везама и у потпуно умреженом дууромеру нема секундарних веза. Управо због карактера примарних веза дууромери се, када поприме коначни структурни облик, загревањем не могу омекшати нити растопити. Дууромери се могу растопити једино помоћу одговарајућих хемикалија, због чега се тешко рециклирају. Дууромери се могу обликовати у фази добијања, односно док не очврсну. Дууромери су чвршћи и крући од пластомера и не подлежу бубрењу. Најпознатији дууромери су фенол-формалдехидне смоле (PF), меламин-формалдехидне смоле (MF), уреа-формалдехидне смоле (UF), епоксидне смоле (ES), и умрежени полиуретани (PUR).

### 3.1.1.4. Еластомери

Еластомери су аморфни синтетички полимерни материјали чији су макромолекули међусобно повезани и секундарним и примарним везама. То значи да дууромери имају делимично умрежену структуру. Еластомери су нетопљиви, али бубре у растварачима. Секундарне везе присутне у еластомеру слабе и раскидају се при загревању, што узрокује омекшавање еластомера. С друге стране, примарне везе присутне у еластомеру спречавају да еластомер даљим загревањем пређе у растоп. Степен до којег ће неки еластомер омекшати зависи од односа примарних и секундарних веза. Како би се њихова својства изменила и тиме еластомери учинили применљивим, умрежавањем им се додају примарне везе.

### 3.1.1.5. Еластопластомери

Еластопластомери или термопластични еластомери су еластомери који садрже термореверзибилну мрежу [18]. Еластопластомери су група синтетичких полимерних материјала који се при собној температури понашају као еластомери, а при повишеним температурама као пластомери. Еластопластомери задржавају флексибилност, еластичност и савитљивост вулканизиране гуме, али се производе и прерађују у условима који важе за пластомерне материјале. Вулканизација је поступак хемијског умрежавања линеарних или разгранатих полимера високе молекулске масе у полимерну мрежу. [13] Механичка својства еластопластомера одређена су њиховом морфолошком грађом [19, 20].

Синтетичка влакна и помоћни полимерни материјали, који се обично употребљавају у облику раствора или дисперзија у производњи лепкова, лакова и премаза, такође спадају у синтетичке полимерне материјале, али су код њих посебним начином прераде постигнута карактеристична својства по којима се разликују од осталих синтетичких полимерних материјала.

## 3.1.2. Утицај зрачења на полимерне материјале

Интеракција јонизујућег зрачења довољне енергије са материјалом, кроз механизме описане у преходном одељку, може довести до раскидања хемијских веза, услед чега долази до формирања веома реактивних хемијских врста, као што су слободни радикали, јони и побуђени молекули. Ове реактивне врсте могу значајно изменити молекуларну структуру материјала изложеног јонизујућем зрачењу. Врсте које производи јонизујуће зрачење ће у општем случају бити исте у одређеном материјалу,

без обзира на тип или енергију јонизујућег зрачења. Енергија коју јонизујуће зрачење преда изложеном материјалу обично је много већа од било које енергије везе електрона у полимеру и у том смислу се јонизујуће зрачење разликује од других типова зрачења, као што је на пример ултраљубичасто зрачење [21]. Излагање полимера јонизујућем зрачењу може довести до појаве ефеката као што су умрежавање полимерних ланаца (енг. *crosslinking*), деградација односно раскидање полимерног ланца (енг. *scission*), полимеризација, гранање дугих ланаца (енг. *long-chain branching*) и калемљење (енг. *grafting*). Од свих наведених ефеката, са становишта инжењерске употребе полимерних материјала најзначајнији су умрежавање и деградација. Излагање готово свих полимера јонизујућем зрачењу такође доводи до генерисања гаса. У већини случајева долази до генерисања водоника, а такође може доћи и до генерисања метана, угљен-моноксида, угљен-диоксида и других гасова [22].

Излагање јонизујућем зрачењу доводи до промене средње молекулске масе полимера, што је последица раскидања веза у главном ланцу полимера и тако омогућеног формирања унакрсних веза [23, 24, 25]. Умрежавањем полимерних ланаца повећава се средња молекулска маса полимера, што води формирању нерастворљиве тродимензионалне мреже полимера, док деградација узрокује смањење средње молекулске масе полимера [26, 27]. Реакције између побуђених врста и између побуђене врсте и других околних материјала могу, такође, произвести молекуле, укључујући и гасове, који у почетку нису били присутни у полимеру или околним материјалима. Управо је количина и брзина настајања гаса, а посебно количина и брзина настајања водоника и других запаљивих гасова, од посебног интереса за анализу сигурности паковања радиоактивног отпада.

Током излагања полимера јонизујућем зрачењу, све претходно наведене појаве јављају се упоредо, а која од њих преовлађује зависи од неколико фактора, као што су почетна молекуларна структура и морфологија полимера, као и средина у којој долази до излагања зрачењу. Ако је полимер изложен зрачењу у ваздуху, ефекти излагања се разликују у односу на ефекте у вакууму или у присуству инертног гаса. Током излагања полимерног материјала јонизујућем зрачењу у ваздуху, слободни радикали настали интеракцијом јонизујућег зрачења и полимерног материјала реагују и са кисеоником присутним у ваздуху, што доводи до оксидативне деградације.

Излагање полимерних материјала јонизујућем зрачењу може довести до промене њихових термичких, механичких и електричних својстава. Ове промене својстава последица су промена у структури полимерног материјала које настају услед [28]:

1. преноса енергије материјалу, који узрокује раскидање веза и стварање слободних радикала
2. комбиновања слободних радикала, услед чега долази до умрежавања и деградације полимера
3. генерисања гаса, које је последица деградације или директног формирања молекула гаса

Механизам умрежавања укључује раскидање C–H везе у једном полимерном ланцу чиме се формира атом водоника, што је праћено одвајањем другог атома водоника из суседног ланца. Два атома водоника формирају молекул H<sub>2</sub>, а затим се два суседна полимерна радикала комбинују, чиме се формира унакрсна веза, што доводи до разгранатих ланаца све док се на крају не формира тродимензионална полимерна мрежа, у којој је сваки полимерни ланац повезан са другим полимерним ланцем. [22]

Насупрот умрежавању, деградација је процес у којем долази до раскидања C–C везе. Уколико је енергија зрачења довољно велика, деградација настаје као директан резултат раскидања C–C везе. У окружењу у ком је присутан кисеоник, деградација се одвија индиректно тако што се додавањем кисеоника слободним радикалима насталим

излагањем полимера јонизујућем зрачењу формирају пероксидне врсте чијим распадом долази до формирања краћих ланаца.

Деградација се битно разликује од процеса деполимеризације. Код деградације која настаје услед излагања јонизујућем зрачењу или не долази до настајања мономера или долази до настајања веома малог броја мономера чак и након великог броја раскидања веза у главном ланцу полимера. Деполимеризација је процес раздвајања полимера на саставне мономере или на полимере ниже молекулске масе [13]. Деполимеризација је ланчана реакција, која укључује многе везе присутне у молекулу полимера, док деградација утиче само на атоме у близини места на ком је дошло до раскидања ланца [22].

Полимере је према ефектима који најчешће прате излагање јонизујућем зрачењу могуће поделити на оне код којих је доминантан ефекат умрежавања и оне код којих је доминантан ефекат деградација. Примери полимера код којих доминира једна од ове две појаве дати су у табели 3.2 [22].

Табела 3.2. Примери полимера код којих је доминантан радијациони ефекат умрежавања или деградација.

<b>Полимери код којих је доминантан ефекат умрежавања</b>	<b>Полимери код којих је доминантан ефекат деградација</b>
Полиетилен (PE)	Политетрафлуоретилен (PTFE, тефлон)
Полипропилен (PP)	Полиалфаметилстирен (PAMS)
Полистирен (PS)	Поливинилиден хлорид (PVDC)
Поливинил хлорид (PVC)	Поливинил флуорид (PVF)
Поливинил алкохол (PVOH)	Полихлоротрифлуоретилен (PCTFE)
Поливинил ацетат (PVA)	Полиакрилонитрил (PAN)
Поливинил метил етер (PVME)	Поливинил бутирал (PVB)
Полиетер етер кетон (PEЕК)	Полиметилметакрилат (PMMA)
Полибутадиен (BR)	Полиметакрилонитрил (PMAN)
Полихлоропрен (PCP, неопрен)	Полиоксиметилен (POM)
Стирен – акрилонитрил кополимер (SAN)	Полипропилен сулфид
Природна гума	Полиетилен сулфид
Хлорисани полиетилен (CPE)	Целулоза
Хлоросулфовани полиетилен (CSPE)	Полиаланин (PAla)
Полиамиди (PA)	Полилизин
Полиестри (нпр. Полиетилен терефтхалат (PET), поликарбонат (PC), полиетилен нафталат (PEN))	Полиизобутилен (PIB)
Полиуретани (PU)	
Полисулфони (PSU)	
Полиакрилати	
Полиакриламиди (PAM)	
Полидиметилсилоксан (PDMS)	
Полидиметилфенилсилоксан	
Фенол-формалдехидне смоле (PF)	
Уреа-формалдехидне смоле (UF)	
Меламин-формалдехидне смоле (MF)	

Независно од врсте промена које могу настати услед излагања јонизујућем зрачењу, полимере је, према отпорности на јонизујуће зрачење могуће поделити у три категорије [29]:

1. Полимере високо-отпорне на јонизујуће зрачење, које карактерише скоро неизмењена молекулска структура све до излагања укупним дозама у опсегу од 250 до 1000 kGy у ваздуху. Овакви полимери у својој молекулској структури садрже ароматичне групе. У ову класу полимера спадају полиимиди, полифенил етри, полифенил кетони, ароматични полиамиди, полисулфони, полиетеримиди, епоксидне смоле, полифенилен сулфид, полиетилен терефталат, полиетерсулфони, полифенилен оксиди.
2. Полимере средње-отпорне на јонизујуће зрачење, као што су полиолефини, полиамиди и алифатични полиестри.
3. Полимере веома осетљиве на јонизујуће зрачење, чије молекулске структуре доживљавају значајне промене након апсорпције дозе од само неколико десетина Gy у ваздуху. У ову класу полимера спадају алифатични полиетри, алифатични полисулфони и полимери који садрже C-Cl везе у макромолекуларној структури.

### 3.1.2.1. G-вредности

Будући да код различитих полимера долази до појаве различитих ефеката који су последица излагања јонизујућем зрачењу, са практичног становишта је корисно квантификовати ове ефекте. Ово је од посебног значаја за ефекте који доводе до молекуларних промена које утичу на механичка или друга значајна својства полимерних материјала, као што су умрежавање, деградација или генерисање гаса. У ту сврху уведен је параметар назван G-вредност, који представља хемијски принос промена насталих услед излагања јонизујућем зрачењу, као што су број унакрсних веза, број раскинутих веза у полимерном ланцу или број генерисаних молекула гаса који су последица излагања зрачењу. G-вредност представља број насталих или промењених молекула на 100 eV енергије депоноване у материјалу. Овај параметар се изражава као број молекула на 100 eV (изражен као #/100 eV) или као број молова по јединици апсорбоване енергије (у јединицама  $\mu\text{mol}/\text{J}$ ). G-вредности за умрежавање, деградацију и генерисање гаса за неке полимере дате су у табели 3.3. [22, 29 – 36]

Табела 3.3. G-вредности за умрежавање, деградацију и генерисање гаса за одабране полимерне материјале.

Полимерни материјали	G-вредности					
	G(X)		G(S)		G(gas)	
	$\left[\frac{\mu\text{mol}}{\text{J}}\right]$	$\left[\frac{\text{молекула}}{100\text{eV}}\right]$	$\left[\frac{\mu\text{mol}}{\text{J}}\right]$	$\left[\frac{\text{молекула}}{100\text{eV}}\right]$	$\left[\frac{\mu\text{mol}}{\text{J}}\right]$	$\left[\frac{\text{молекула}}{100\text{eV}}\right]$
Полиетилен високе густине (HDPE)	0,0995	0,96	0,0197	0,19	0,3626	3,5
Полистирен (PS)	0,0024	0,023	~0	~0	0,0006	0,0054
Полиетеретеркетон (PEEK)	0,0053	0,051	0,0020	0,019	0,0104	0,1
Полиетеримид (PEI)	0,0019	0,018	0,0013	0,013	0,0017	0,016
Полисулфон (PSU)	0,0053	0,051	0,0012	0,012	0,0104	0,1

G-вредност за умрежавање носи ознаку G(X) и представља број унакрсних веза формираних на 100 eV депонованих у полимеру. G-вредност за деградацију се обележава

са G(S) и представља број раскинутих веза у полимерном ланцу на 100 eV апсорбоване енергије, док се G-вредност за генерисање гаса означава са G(gas) и представља број генерисаних молекула гаса на 100 eV апсорбоване енергије [22].

G-вредности су у већини случајева добијене експерименталним путем, излагањем чистих или комерцијалних полимерних материјала јонизујућем зрачењу. При анализи утицаја јонизујућег зрачења на полимерне материјале у обзир се узимају G-вредности које су повезане са особинама материјала релевантним за конкретну примену.

### 3.1.2.2. Утицај излагања јонизујућем зрачењу на механичка, термичка и електрична својства полимерних материјала

Промене молекуларне структуре полимера узроковане јонизујућим зрачењем доводе до промене термичких, механичких и електричних својстава полимерних материјала.

Температура топљења полимерног материјала зависи од његове кристаличности. Регуларност кристалита у полимерном материјалу може утицати на температуру топљења. С обзиром да се ефекти који настају у материјалу услед излагања јонизујућем зрачењу јављају углавном у аморфним регијама, излагање ниским дозама јонизујућег зрачења само неприметно модификује кристаличност полимерног материјала. Излагање већим дозама јонизујућег зрачења доводи до појаве неправилности у кристалитима, како услед унакрсног повезивања, тако и услед деградације поспешене оксидацијом. Ове неправилности могу довести до смањења температуре топљења [37].

Механичка својства полимерних материјала зависе од молекулске масе и од степена кристаличности. Умрежавање полимерног материјала као последица излагања јонизујућем зрачењу доводи до повећања молекулске масе и степена кристаличности, што даље узрокује повећање Јанговог модула еластичности и повећање затезне чврстоће полимерног материјала. Издужење при прекиду расте са повећањем молекулске масе, а смањује се са умрежавањем и повећањем степена кристаличности. Повећање модула еластичности повећава и затезну чврстоћу, а смањује издужење при прекиду и почетну кртост.

Излагање јонизујућем зрачењу, у опсегу до умерених апсорбованих доза, углавном има утицаја на својства полимера на молекуларном нивоу и не доводи до значајних промена кристаличности. Промене механичких својстава полимерних материјала изложених јонизујућем зрачењу највише зависе од ефеката као што су гранање ланца, деградација и умрежавање. [38 – 40].

Промена механичких својстава полимерних материјала услед деградације (односно раскидања полимерних ланаца) посебно је изражена у случају оксидативне деградације [29]. Издужење при прекиду може бити значајно смањено услед промене молекуларне структуре. На тај начин се особине полимерног материјала мењају из дуктилних у крте. Ово је од значаја у случајевима када се полимерни материјали користе у пољима јонизујућег зрачења, а истовремено се захтева да задрже добра механичка својства.

Експериментално је показано да су промене механичких својстава полимерних материјала услед излагања јонизујућем зрачењу у ваздуху неуједначене по дубини изложеног узорка [38]. Код полимерних материјала који нису изложени јонизујућем зрачењу модул еластичности је једнак у свакој тачки по дубини материјала, док се код полимерних материјала изложених јонизујућем зрачењу модул еластичности мења по дубини посматраног узорка, тако што се смањује у спољним слојевима, док се у унутрашњости повећава. Ово је објашњено неуједначеним ефектима који настају излагањем јонизујућем зрачењу у ваздуху. У спољним слојевима материјала долази до

оксидативне деградације док у унутрашњим слојевима долази до гранања ланца и умрежавања. Смањивањем јачине дозе, промена модула еластичности по дубини постаје уједначенија. Узимајући у обзир описане разлике у утицају јонизујућег зрачења на спољашње и унутрашње слојеве узорка полимерног материјала изложеног у ваздуху, јасно је да затезна чврстоћа зависи и од дебљине посматраног узорка: дебљи узорци имају већу затезну чврстоћу од тањих при истим условима. [29]

При анализи утицаја зрачења на механичка својства полимерних материјала треба узети у обзир и ефекте који се јављају у периоду после излагања зрачењу, који могу узроковати даље промене ових својстава. [38]

Иако промене механичких својстава полимерних материјала у великом броју случајева негативно утичу на њихове перформансе и примену, у одређеним применама оне су пожељне. Побољшање механичких својстава излагањем зрачењу значајно је у обради полимера зрачењем, као што је излагање полиетилена ултра високе молекуларне масе зрачењу за потребе израде медицинских протеза. [41]

### 3.1.2.3. Генерисање гаса

На настајање гаса услед интеракције јонизујућег зрачења са материјалом утичу [42]:

1. линеарни пренос енергије (LET),
2. особине окружења у ком долази до интеракције јонизујућег зрачења са материјалом, као што су притисак, температура, рН вредност и присутни гасови
3. апсорбована доза,
4. јачина дозе,
5. састав материјала,
6. енергија апсорбована у материјалу
7. положај извора зрачења у односу на материјал који се излаже зрачењу, и
8. транспорт енергије унутар материјала.

#### 3.1.2.3.1. Утицај линеарног преноса енергије

Ефекти излагања материјала јонизујућем зрачењу, као што је већ речено, зависе од просторне расподеле енергије депоноване дуж путање наелектрисане честице. Иако постоје разлике у ефектима који настају услед излагања материјала различитим типовима јонизујућег зрачења, ове разлике су релативно мале. Разлике у G-вредностима за материјал изложен различитим врстама зрачења последица су начина на који честица губи енергију у материјалу, односно разлика у вредностима LET за разне врсте зрачења. У највећем броју случајева, радиолита материјала алфа честицама ће дати гранично високе G-вредности за генерисање гаса [42].

#### 3.1.2.3.2. Утицај температуре

Већина хемијских реакција зависи од температуре. Константа брзине хемијске реакције може се изразити коришћењем Аренијусовог закона:

$$k = A \cdot e^{-E_a/RT} \quad (3.2)$$

где је:

- $E_a$  – енергија активације, најмања енерг. потребна да би дошло до реакције [J/mol],
- $A$  – фактор који представља вероватноћу да дође до реакције,
- $R$  – универзална гасна константа ( $R = 8,314 \text{ J}/(\text{K mol})$ ),
- $T$  – температура [K].



Енергија активације за генерисање гаса услед радиолизе у већини полимерних материјала је мања или једнака 13 kJ/mol [43 – 45], што резултира слабом температурном зависношћу. На пример, енергија активације за полиетилен (PE) и полистирен (PS) износи око 3,35 kJ/mol [43 – 45].

Однос између константи брзине хемијске реакције,  $k_1$  и  $k_2$  на две различите температуре  $T_1$  и  $T_2$  дат је формулом [42]:

$$\ln\left(\frac{k_2}{k_1}\right) = \left(\frac{E_a}{R}\right) \cdot \left(\frac{T_2 - T_1}{T_2 \cdot T_1}\right) \quad (3.3)$$

G-вредност на температури  $T_2$  може се израчунати из познате G-вредности на температури  $T_1$  помоћу израза:

$$G_{T_2} = G_{T_1} e^{\left[\left(\frac{E_a}{R}\right) \cdot \left(\frac{T_2 - T_1}{T_2 \cdot T_1}\right)\right]} \quad (3.4)$$

На пример, код материјала са енергијом активације од 3,35 kJ/mol, однос G-вредности за радиолитичко генерисање гаса на температурама од 55°C (328 K) и 25°C (298 K) износи:

$$G_{55} = G_{25} e^{\left[\left(\frac{3,35 \cdot 10^3 \text{ J/mol}}{8,314 \text{ J/Kmol}}\right) \cdot \left(\frac{328 - 298}{328 \cdot 298}\right)\right]} = G_{25} \cdot 1,13 \quad (3.5)$$

односно G-вредност за радиолитичко генерисање гаса на температури од 55°C (328 K) је приближно 1,13 пута већа вредности на температури од 25°C (298 K). На исти начин, ако се усвоји да је енергија активације за генерисање гаса услед радиолизе у већини полимерних материјала  $\leq 13$  kJ/mol добија се:

$$G_{55} = G_{25} e^{\left[\left(\frac{13 \cdot 10^3 \text{ J/mol}}{8,314 \text{ J/Kmol}}\right) \cdot \left(\frac{328 - 298}{328 \cdot 298}\right)\right]} = G_{25} \cdot 1,59 \quad (3.6)$$

Из овога се може закључити да се G-вредности за радиолитичко генерисање гаса при повећању температуре за 30 °C код већине полимера не повећавају више од 1,6 пута.

### 3.1.2.3.3. Утицај притиска

У затвореним судовима и контејнерима, у које спадају и паковања радиоактивног отпада у којима долази до генерисања гаса услед излагања полимерних материјала јонизујућем зрачењу, поред повећања притиска унутар паковања долази и до радиолитичких реакција у којим осим полимерних материјала учествују и производи радиолизе, односно генерисани гас. Са повећањем притиска повећава се и вероватноћа да до оваквих реакција дође. Смањење G-вредности при повећању притиска је занемарљиво. [42]

### 3.1.2.3.4. Утицај осталих особина окружења

G-вредности за генерисање гаса често зависе од окружења у ком долази до излагања зрачењу, а посебно од присуства или одсуства кисеоника. Код неких полимера приликом излагања јонизујућем зрачењу у присуству кисеоника уместо умрежавања долази до оксидације. [15] Услед ове зрачењем поспешене оксидације може доћи до смањења количине кисеоника унутар паковања радиоактивног отпада. Осим оксидације која је последица излагања зрачењу, до смањења количине кисеоника у отпаду, материјалима од којих је сачињено паковање или самом контејнеру може доћи и услед

оксидације изазване топлотом или хемијским реакцијама. Поред тога, унутар паковања радиоактивног отпада могу бити присутна и друга испарења органских испарљивих једињења са којима такође може доћи до реакције, али и до реакција између тих једињења и паковања или контејнера. Све наведено доводи до одређеног смањења G-вредности за генерисање гаса. Из овог разлога, иако окружење унутар паковања радиоактивног отпада може променити количину и, у мањој мери, тип производа радиолитичких гасова је највећи када до излагања долази у вакууму. С обзиром да се у анализама сигурности управљања радиоактивним отпадом за прорачуне узимају конзервативне вредности, то се за овакве потребе усвајају G-вредности за генерисање гаса добијене експериментима у вакууму.

#### 3.1.2.3.5. Утицај апсорбоване дозе

Са повећањем апсорбоване дозе долази до смањења G-вредности. Ово је последица појаве продуката радиолитичке реакције који су отпорнији на излагање јонизујућем зрачењу од самих полимерних материјала. С друге стране, излагање зрачењу полимерних материјала којим су додати адитиви за повећање стабилности може довести до раста G-вредности са повећањем апсорбоване дозе.

Излагање јонизујућем зрачењу великог броја полимерних материјала доводи до ослобађања водоника из засићених C-C веза, чиме се повећава број незасићених C=C и C≡C веза. Будући да незасићени угљоводоници имају много ниже G-вредности за генерисање H<sub>2</sub> него сродни засићени угљоводоници, те како долази до радиолитичке реакције засићених угљоводоника и до формирања више незасићених C=C и C≡C веза, G-вредност за генерисање H<sub>2</sub> се смањује са повећањем апсорбоване дозе [22, 29, 46, 47].

За потребе анализе сигурности управљања радиоактивним отпадом, где је потребно у обзир узети конзервативне вредности, G-вредности за одређени материјал се усвајају као почетне G-вредности, односно G-вредности пре излагања јонизујућем зрачењу.

#### 3.1.2.3.6. Утицај јачине дозе

Ефекти директно повезани са јачином дозе су ефекти који настају услед повећања температуре полимерног материјала изложеног јонизујућем зрачењу. С обзиром да се највећи део енергије коју зрачење преда полимерном материјалу претвара у топлоту, при високим јачинама дозе температура материјала може значајно да порасте. На високим локализованим температурама путеви реакција се разликују од оних који се јављају при ниским дозама [48].

Утицај јачине дозе на ефекте који у материјалу настају услед излагања јонизујућем зрачењу зависе од врсте материјала, његовог старења (свака промена у молекулској, надмолекулској или фазној структури полимерних материјала која доводи до промене њихових физичких и хемијских својстава током обраде, производње, складиштења или употребе), геометрије узорка и параметра деградације који се прати. У општем случају, што је јачина дозе мања за дату апсорбовану дозу, ефекти који настају услед излагања материјала јонизујућем зрачењу су већи. Показано је да су узрок оваквих ефеката оксидациони процеси ограничени дифузијом [29]. Када услед оксидационих процеса у материјалу долази до брже потрошње раствореног кисеоника него што се он дифузијом може допунити из атмосфере која окружује материјал, у близини површине посматраног узорка се ствара високо оксидовани слој материјала, а такође може доћи и до смањења количине кисеоника присутног у унутрашњости узорка. С друге стране, смањењем јачине дозе, оксидација у унутрашњости узорка се повећава због повећања времена током ког може доћи до дифузије кисеоника у унутрашњост.

Утицај јачине дозе који доводи до оксидације узорка зависи од домета зрачења. За алфа зрачење, реакција не зависи од јачине дозе ако кисеоник може лако дифузијом доспети до дубине једнаке домету алфа честица.

Најизраженија механичка деградација јавља се када до излагања зрачењу долази у комбинацији са повишеном температуром, што је комбинација утицаја која може настати при излагању већим јачинама дозе [49]. Штета која настаје у полимерном материјалу у оваквом случају много је већа од укупне штете проузроковане одвојеним излагањем јонизујућем зрачењу и повишеној температури. Овај ефекат се приписује механизму оксидације, у ком се разлажу пероксиди настали услед излагања зрачењу. Размера ових ефеката може се смањити уклањањем свог кисеоника пре загревања материјала изложених зрачењу.

#### *3.1.2.3.7. Утицај састава материјала*

Комерцијални полимерни материјали се од чистих полимерних материјала разликују по томе што садрже велики удео различитих адитива, као што су стабилизатори и пластификатори. Ови адитиви могу значајно утицати на ефекте који настају услед излагања полимерних материјала зрачењу, као што су количина и врста гасова који настају услед излагања или услед топлотне деградације.

Употреба антиоксиданата може побољшати отпорност основног полимера на зрачење. Неорганска пунила су такође ефикасна у повећању отпорности на зрачење [50].

Полимерни материјали који се користе у управљању радиоактивним отпадом су готово увек комерцијални. Утицај састава материјала може се одразити на састав и количину генерисаног гаса. Из тог разлога, максималне G-вредности утврђене за комерцијалне полимерне материјале представљају реалистичније горње границе G-вредности за генерисање гаса услед излагања зрачењу него вредности одређене за чисте полимерне материјале.

#### *3.1.2.3.8. Утицај енергије апсорбоване у материјалу и транспорта енергије*

На енергију апсорбовану у материјалу утичу домет зрачења, расподела радиоактивних контаминаната, геометрија излагања и, у случају излагања алфа честицама, њихова величина.

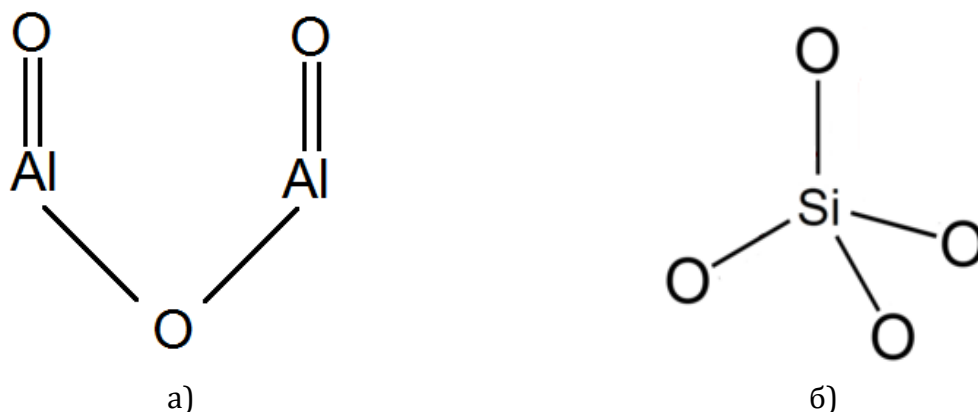
Енергија апсорбована на једној локацији великог молекула може да оштети најподложнију локацију на другим местима у молекулу. Овакав пренос енергије зрачења са локације где се апсорбује на удаљену прекинуту хемијску везу показује да молекуларна структура утиче на ефекте који настају услед излагања зрачењу. Одређене хемијске структуре, као што су ароматични прстенови, енергију примљену од зрачења манифестују као топлоту у виду молекуларних вибрација и других неструктивних механизма релаксације. Системи који садрже ове структуре доживљавају мањи степен деградације него што би се очекивало [51].

## **3.2. Геополимерни материјали**

Геополимерни материјали су релативно нова класа неорганских материјала у које спадају геополимерне смоле, везива и цементи, као и бетони на бази геополимера. Геополимерни материјали примену су нашли као материјали за топлотну изолацију, сировине за израду материјала и предмета отпорних на високе температуре, као грађевински материјал, у ливничкој индустрији, као биоматеријали, у композитним

материјалима, као материјали за енкапсулацију и имобилизацију радиоактивног и токсичног отпада, као и за производњу бетона [52].

Геополимерни материјали се одликују мрежном структуром сачињеном од алумината и силиката. Алуминати су једињења алуминијума и кисеоника (нпр.  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Силикати су соли силикатне киселине које садрже стабилне групе силицијум оксида (нпр.  $\text{SiO}_4$ ) састављене од јона силицијума и кисеоника. Као примери, на слици 3.5. дате су структурне формуле типичног алумината и силиката. Силикати код којих је дошло до замене јона силицијума у кристалној решетки јоном алуминијума називају се алуиносиликати.



Слика 3.5. Примери алумината и силиката: а)  $\text{Al}_2\text{O}_3$  и б)  $\text{SiO}_4$ .

Геополимерни материјали спадају у класу активираних материјала и њихов механизам очвршћивања, назван геополимеризација, заснива се на поликондензацији алуиносиликата [53, 54]. Алуминијум присутан у структури геополимерних материјала потиче од алуиносиликата у алкалним материјалима који се користе у производњи геополимерних материјала, као што су метакаолин или електрофилтерски пепео. Силицијум-диоксид у структури геополимерних материјала потиче такође из ова два извора алуиносиликата, као и из раствореног силицијум-диоксида. За активирање алкалних медијума користи се водени раствор (тзв. активациони раствор), који садржи силицијум-диоксид и хидроксиде. Овај раствор може се произвести растварањем силицијум-диоксида у раствору алкалног хидроксида или подешавањем састава воденог раствора натријум-силикатног стакла ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ , тзв. „водено стакло“) додавањем алкалног хидроксида и воде. Геополимерни материјали се обично означавају коришћењем номенклатуре за керамике, односно навођењем моларног удела различитих оксида присутних у материјалу, на пример  $1 \text{ Al}_2\text{O}_3 \ 4 \ \text{SiO}_2 \ 1 \ \text{Na}_2\text{O} \ 11 \ \text{H}_2\text{O}$  [55].

Физичка и хемијска својства геополимерног материјала одређена су његовом микроструктуром. Микроструктура геополимерног материјала зависи од његове формулације. Променом релативне количине силицијум-диоксида ( $\text{SiO}_2$ ), алуминијум-оксида ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), оксида алкалних метала ( $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$ ,  $\text{Cs}_2\text{O}$ ...) и воде ( $\text{H}_2\text{O}$ ) могу се произвести геополимерни материјали различитих својстава.

### 3.2.1. Својства геополимерних материјала

Структура геополимерних материјала је аморфна и састављена од алуминатних и силикатних тетраедарски координисаних јона. Услед Левенштајновог правила [56] два алумината у алуиносиликатима не могу бити директно повезана водоничном везом јер би то било енергетски неповољно [57, 58]. Према томе, однос  $\text{Si}/\text{Al}$  треба да је увек већи од 1. Код геополимерних материјала са ниским односом  $\text{Si}/\text{Al}$  могу постојати и  $\text{Al}-\text{O}-\text{Al}$

везе чија релативно ниска стабилност мора бити узета у обзир, посебно ако се разматра употреба оваквих материјала у високоризичним применама као што је у управљању радиоактивним отпадом [53].

Како су силикати присутни у структури геополимерних материјала електронеутрални, а алуминати негативно наелектрисани, у структури су присутни и алкални јони како би се уравнотежило наелектрисање и сачувала електронеутралност система. Моларни однос  $M/Al$  (где је  $M$  –  $Na$ ,  $K$  или  $Cs$ ) је најчешће једнак 1 у формулацији геополимера.

Геополимерни материјали могу бити претежно макропорозни са пречником пора већим од 50 nm, претежно мезопорозни са пречником пора у распону од 2 nm до 50 nm, или претежно микропорозни са пречником пора мањим од 2 nm. Геополимери су углавном макро и мезопорозни, са уделима који зависе од количине воде у формулацији. Геополимери на бази метакаолина у већини случајева имају укупну порозност (однос запремине пора и укупне запремине) од око 0,4 и део ове порозности је мезопорозан.

Механичка чврстоћа геополимерних материјала зависи од њихове формулације, параметара очвршћивања, сировина и, уколико се користе, агрегата, других додатака или ојачања. Као и у случају портланд цемента и других хидрауличких везива, бетони на бази геополимерних цемената који нису додатно ојачани најчешће имају малу чврстоћу на савијање (<5 МПа). Чврстоћа на притисак, уз одговарајуће услове формулације и очвршћивања, може бити већа од 100 МПа.

До алкално-силикатне реакције долази у присуству растворљивих алкалија, влажног окружења и алкално реактивних агрегата. Код бетона на бази портланд цемента, ова реакција доводи до значајних и неповратних оштећења услед бубрења бетона. Стога се ова реакција мора предвидети сваки пут када се у бетон дода агрегат који садржи силицијум-диоксид. Код бетона заснованог на геополимерним цементима на бази метакаолина није примећено да додавање реактивних агрегата са силицијум-диоксидом доводи до бубрења карактеристичног за алкално-силикатну реакцију.

Код бетона на бази портланд цемента долази до растварања  $CO_2$  у раствору присутном унутар пора, чиме долази до стварања нерастворљивог калцијум карбоната ( $CaCO_3$ ). Ово за последицу има смањење рН вредности бетона, што може изазвати корозију челика додатог ради повећања механичке чврстоће (арматуре). У геополимерним материјалима на бази метакаолина који имају веома низак садржај калцијума, растворени  $CO_2$  реагује са алкалијама у раствору присутном у порама, чиме долази до формирања алкалних карбоната [59 – 62]. Велика растворљивост алкалних карбоната и њихова рН вредност већа од 10 указују да је ризик од корозије у геополимерним материјалима на бази метакаолина занемарљив. Ова отпорност геополимерних материјала на присуство  $CO_2$  може бити смањена у случају значајног повећања садржаја  $CO_2$  у околној атмосфери или значајног повећања температуре којој је изложен геополимерни материјал.

Студије анализе утицаја киселине на геополимерне материјале показале су да су геополимерни материјали углавном отпорни на киселине и да у већини случајева задржавају структурни интегритет или само делимично деградирају када су изложени киселинама [63 – 67].

Геополимерни материјали најчешће показују изузетну термичку стабилност када правилно очврсну. Након што изгубе воду на температурама између 80 и 200°C, они задржавају аморфну тетраедарску мрежу до високих температура. На температурама преко 800°C долази до формирања кристалних фаза, а главна кристална природа тих фаза зависи од катјона коришћеног у формулацији. Тако код геополимерних материјала код којих је доминантни алкални катјон натријум долази до формирања нефелина ( $KNa_3(AlSiO_4)_4$ ), у случају да је то калијум до образовања леуцита ( $KAlSi_2O_6$ ) [68] а код

којих је цезијум до образовања полуцита ( $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$ ) [69, 70]. Температура топљења геополимерних материјала је око 1100 – 1200 °C.

Термичко ширење или скупљање геополимерних материјала, које доводи до стварања пукотина или микропукотина, зависи од избора катјона, параметара очвршћивања и додавања агрегата и других додатака. Бетон на бази цезијумских геополимера има одлична димензионална и ватростална својства [69], што га чини добрим кандидатом за ватросталну употребу.

### 3.2.2. Формулација геополимерних материјала

Као што је већ раније поменуто, тетраедарски координисани алинати у структури геополимерних материјала представљају негативно наелектрисање, док присуство алкалних катјона уравнотежава наелектрисање. Овај катјон је обично  $\text{Na}^+$  или  $\text{K}^+$ , или ређе  $\text{Rb}^+$  или  $\text{Cs}^+$ .

Геополимерни материјали са катјонима веће величине имају мању и ужу величину пора, а самим тим и већу специфичну површину. [71 – 74]

Утврђено је да се са повећањем величине алкалног катјона ( $\text{Na}^+ > \text{K}^+ > \text{Cs}^+$ ) степен геополимеризације смањује. [75, 76]

Количина алкалног хидроксида игра важну улогу у процесу геополимеризације. За исти алкални катјон, растварање извора алуминосиликата је утолико брже што је рН активационог раствора виши. [77] Резултати једне раније студије [78] показују да већи однос  $\text{M}/\text{Al}$  (где је  $\text{M}$  –  $\text{Na}$ ,  $\text{K}$  или  $\text{Cs}$ ) омогућава постизање веће механичке чврстоће и густине. Такође, однос  $\text{M}/\text{Al}$  узрокује промене својстава излуживања (енг. *leaching*) геополимера и примећује се пораст количине излужених катјона са повећањем односа  $\text{M}/\text{Al}$ .

Као што је већ речено, услед Левенштајновог правила, у алуминосиликатима однос  $\text{Si}/\text{Al}$  треба да буде већи од 1. Геополимерни материјал са односом  $\text{Si}/\text{Al} = 1$  има уређенију структуру на молекуларном нивоу у односу на материјал са овим односом већим од 1. [79] Ово указује на то да додавање силицијума у структури инхибира стварање кристалних фаза. Повећање односа  $\text{Si}/\text{Al}$  узрокује повећање величине олигомера и самим тим смањење реактивности, смањење величине пора и повећање механичке чврстоће и обрнуто. Међутим, ако је однос  $\text{Si}/\text{Al}$  сувише висок, може доћи до гелације која узрокује смањење реактивности и индукује непотпуно растварање метакаолина. Заправо, оптимални однос  $\text{Si}/\text{Al}$  са становишта чврстоће је око 1.9.

Показано је да већи садржај воде узрокује нижу реактивност и механичку чврстоћу. Геополимерним материјалима са већим садржајем воде потребно је дуже време да очврсну и имају нижу механичку чврстоћу. Код геополимерних материјала на бази натријума однос  $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$  који обезбеђује оптималан однос реолошких својстава, реактивности и механичке чврстоће материјала је између 9 и 14. Показано је такође да чак и мали пораст садржаја воде изазивају повећање величине пора и различиту расподелу воде између макропора и мезопора. Већи садржај воде узрокује већи удео воде присутне у макропорима [74].

### 3.2.3. Утицај јонизујућег зрачења на геополимерне материјале

Најзначајнији ефекат излагања геополимерних материјала јонизујућем зрачењу је генерисање  $\text{H}_2$ , као последица радиоллизе воде присутне у порама геополимера. У порозним материјалима, у које спадају и геополимери, радиолитички приноси производње  $\text{H}_2$  у општем случају се повећавају са садржајем воде [80, 81]. Било која

количина воде која је садржана у геополимеру може доживети радиолизу, а вредности  $G(\text{gas})$  мењају се са променом количине воде садржане у материјалу.

Студије радиолизе воде [80, 82 – 85], различитих рН вредности, довеле су до препознавања главних механизма који доводе до генерисања  $\text{H}_2$  и до одређивања количине  $\text{H}_2$  генерисаног услед излагања воде јонизујућем зрачењу.

Поред вредности одређених за воду, количина  $\text{H}_2$  који настаје услед излагања зрачењу одређена је и за неке друге материјале који се користе у нуклеарној индустрији или управљању радиоактивним отпадом. Тако се количине  $\text{H}_2$  генерисаног услед излагања глине, бетона и стакла јонизујућем зрачењу ниског LET углавном крећу између  $1 \cdot 10^{-8} \text{ mol/J}$  и  $9 \cdot 10^{-8} \text{ mol/J}$  [86, 81, 87]. Експериментално је показано [88] да је количина  $\text{H}_2$  генерисаног услед излагања геополимерног материјала са алкалним јонима  $\text{Na}_2\text{O}$  гама зрацима при јачини дозе од 0,6 kGy/h и за укупну дозу од 750 kGy реда величине  $1 \cdot 10^{-8} \text{ mol/J}$  и да углавном зависи од количине воде у геополимерном материјалу.

Количина  $\text{H}_2$  генерисаног услед излагања геополимерног материјала јонизујућем зрачењу зависи од различитих параметара који се могу поделити на параметре излагања зрачењу (у које спадају укупна апсорбована доза, јачина дозе и окружење у којем долази до излагања зрачењу) и параметре самог геополимерног материјала који је изложен јонизујућем зрачењу (као што су порозност и садржај воде у материјалу).

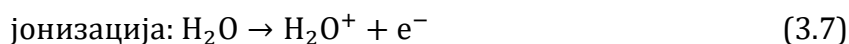
Генерисани  $\text{H}_2$  може дифузијом проћи кроз баријере као што су зидови и испуна контејнера у суседне материјале и простор. Коефицијенти дифузије  $\text{H}_2$  кроз геополимере варирају између  $10^{-5}$  и  $10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  у зависности од степена засићења пора водом. Показано је и да присуство воде у порама смањује брзину дифузије гаса кроз геополимер, односно да је коефицијент дифузије утолико мањи што је веће присуство воде, као и да величина пора има незнатан утицај на коефицијент дифузије. Показано је да се коефицијент дифузије  $\text{H}_2$  смањује када је порозна мрежа геополимера засићена водом. Из овог разлога већа количина  $\text{H}_2$  остаје задржана унутар геополимера, или слободног простора унутар паковања радиоактивног отпада, због чега је већа вероватноћа да  $\text{H}_2$  буде потрошен у секундарним реакцијама радикала [89].

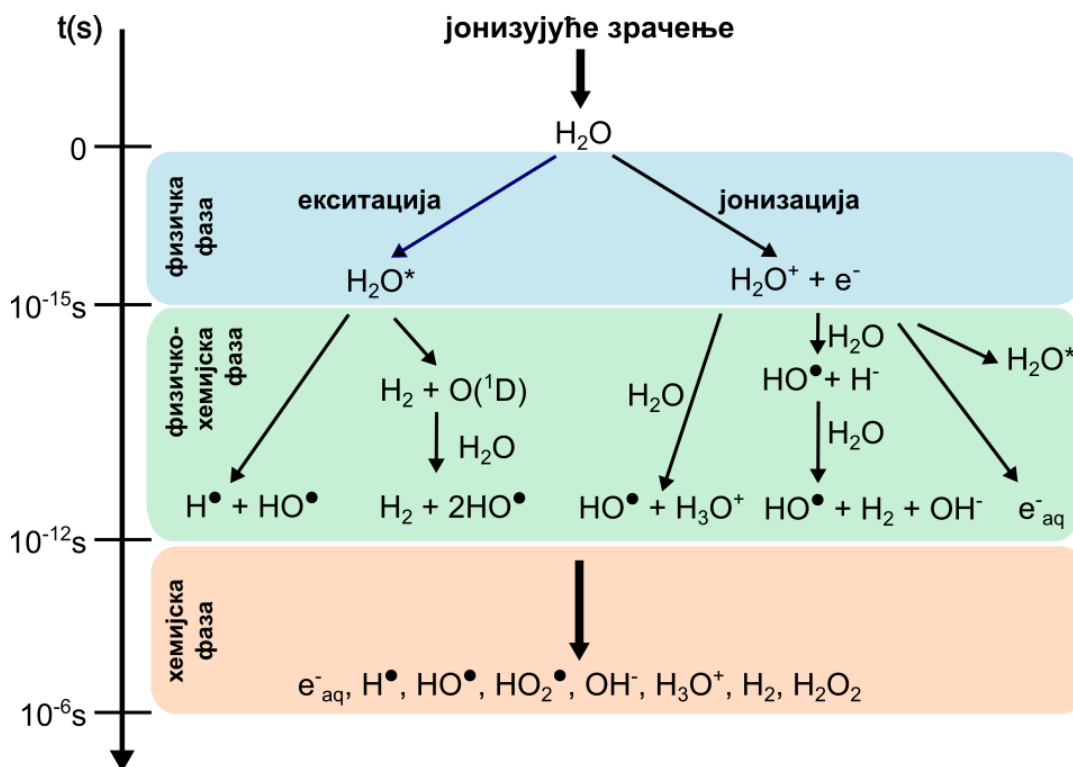
Узимајући у обзир наведене параметре дифузије може се закључити да је удео  $\text{H}_2$  који остаје заробљен у самом геополимеру, односно који дифузијом не пређе у околне материјале и простор, занемарљив у поређењу са укупним генерисаним  $\text{H}_2$ .

### 3.2.3.1. Радиолиза воде

Радиолиза воде је разлагање молекула воде услед његове интеракције са јонизујућим зрачењем. Радиолиза воде се одвија у три фазе: физичкој, физичко-хемијској и хемијској. Реакције које су последица радиолизе воде приказане су на слици 3.6.

Физичка фаза догађа се у привих  $10^{-15} \text{ s}$  после почетка излагања воде јонизујућем зрачењу. У овој фази јонизујуће зрачење преноси енергију молекулима воде, доводећи до њихове јонизације или екситације. Резултат ове фазе су јонизовани молекули воде и електрони у случају јонизације, односно побуђени молекули воде у случају екситације. Јонизација и екситација описане су реакцијама:

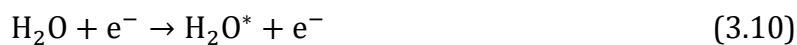




Слика 3.6. Реакције које су последица радиолизе воде.

Физичко-хемијска фаза траје од  $10^{-15}$  до  $10^{-12}$  s после почетка излагања воде јонизујућем зрачењу. У току ове фазе долази до реакција описаних у наставку, чији је резултат стварање високо реактивних слободних радикала и то: водоничног радикала ( $\text{H}^\bullet$ ), хидроксилног радикала ( $\text{OH}^\bullet$ ) и хидропероксилног радикала ( $\text{HO}_2^\bullet$ ). Слободни радикали су изузетно реактивни молекули или јони који садрже један неспарени електрон. Поред слободних радикала, формирају се и позитивни и негативни јони.

Како је за јонизацију потребан само мали део енергије коју јонизујуће зрачење преда молекулу воде, остатак енергије се појављује у виду кинетичке енергије електрона ослобођеног приликом јонизације. Ови електрони могу потом молекуле воде довести до нових јонизација или екситација:



Електрони који настану приликом јонизације са енергијом нижом од енергије најнижег побуђеног стања молекула воде енергију губе постепено, вибрационим и ротационим побуђивањем околних молекула воде. Коначно, ови електрони ће сударима губити енергију и термализовати се окружени молекулима воде. Између термализованог електрона и околних молекула воде јавља се интеракција која се огледа у тежњи атома водоника да буду ближи ослобођеном електрону и атома кисеоника да буду даље од њега. Електрон у оваквом окружењу назива се хидриран електрон –  $e_{\text{aq}}^-$ . [90]:

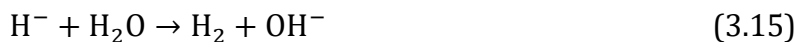




Електрони кинетичких енергија између 6 и 13 eV кад се нађу близу  $\text{H}_2\text{O}^+$  могу се или рекомбиновати на следећи начин:



или интераговати са молекулом воде, што води следећим реакцијама:



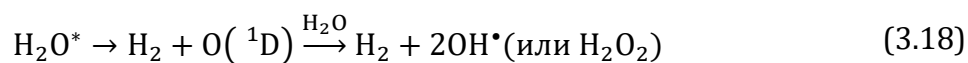
Поред различитих реакција са електронима,  $\text{H}_2\text{O}^+$  јони, који такође настају приликом јонизације, могу реаговати са молекулима воде, како би преношењем протона формирали хидроксилне радикале:



Побуђени молекул воде  $\text{H}_2\text{O}^*$ , настао екситацијом, се релаксира хомолитичким разлагањем:

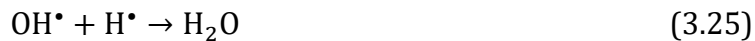
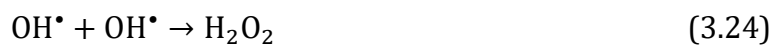
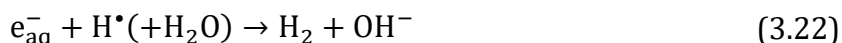
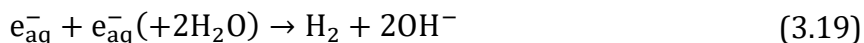


У мањем броју случајева,  $\text{H}_2\text{O}^*$  који се не разложи хомолитички, разлаже се на следећи начин:



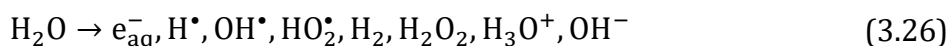
чиме такође долази до формирања  $\text{H}_2$ . Допринос побуђених молекула воде производњи радикала је мали у односу на допринос јонизованих молекула [82, 85].

Хемијска фаза траје од  $10^{-12}$  до  $10^{-6}$  s после почетка излагања воде јонизујућем зрачењу. Током хемијске фазе слободни радикали реагују са околним молекулима или једни са другима и потом дифундују у раствору. Током хемијске фазе долази до следећих реакција:



Као резултат реакција до којих долази током три наведене фазе, које укупно трају између  $10^{-7}$  и  $10^{-6}$  s после излагања молекула воде јонизујућем зрачењу, услед разлагања

воде долази до формирања 8 примарних хемијских врста и то 4 молекула ( $\text{H}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{OH}^-$ ,  $\text{H}_3\text{O}^+$ ) и 4 радикала ( $e_{\text{aq}}^-$ ,  $\text{H}^\bullet$ ,  $\text{OH}^\bullet$ ,  $\text{HO}_2^\bullet$ ), униформно расподељених по раствору:



Вода у порама геополимера садржи минерале и друге примесе као што су  $\text{NaOH}$ ,  $\text{KOH}$  и  $\text{CsOH}$ , због чега је рН вредност ове воде често висока и може бити већа од 13 [83].

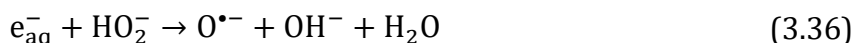
У случају излагања чисте воде, без примеса које би утицале на промену рН вредности, у анаеробном окружењу (окружење без присуства кисеоника), ланчана реакција која контролише примарне врсте и поновно формирање воде описује се хемијским једначинама:



У алкалном окружењу долази до промена реактаната у њихове базне форме:

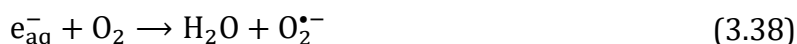


Услед ових промена претходно наведена ланчана реакција постаје:



Због високе кинетичке константе ове ланчане реакције, концентрација  $\text{H}_2$  брже достиже стабилно стање. У том случају, потрошња  $\text{H}_2$  секундарним реакцијама није мања од његовог генерисања. Као и у почетној ланчаној реакцији, услов који одређује достизање стабилног стања  $\text{H}_2$  је  $\text{H}_2/\text{O}_2 > 2$ . Повећање концентрације  $\text{O}_2$  спречава испуњење овог услова.

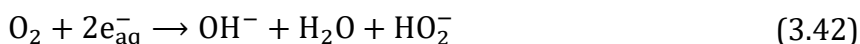
Друга ланчана реакција до које долази и код које концентрација  $\text{H}_2$  још брже достиже стабилно стање је:



Кисеоник који се може налазити у раствору присутном у порама може довести до прекидања ових ланчаних реакција. Присуство кисеоника може такође убрзати разградњу воде формирањем  $\text{HO}_2^-$ . Потрошња  $\text{H}_2$  смањује се реакцијом  $\text{HO}_2^-$  са  $\text{O}^{\bullet-}$  према реакцији:

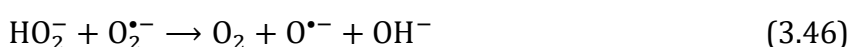
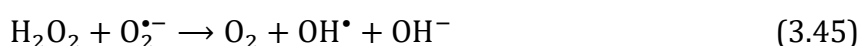
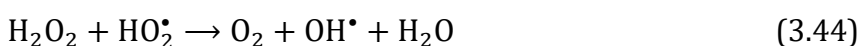
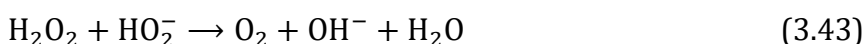


као и заробљавањем хидрираног електрона  $e_{\text{aq}}^-$  према реакцији:



Када је концентрација кисеоника довољна да омогући формирање  $\text{HO}_2^-$  у великим количинама,  $\text{HO}_2^-$  је у конкуренцији са  $\text{H}_2$  у потрошњи  $\text{O}^{\bullet-}$  радикала. Реакција описана једначином (3.41) може имати предност у односу на реакцију описану једначином (3.35), што доводи до прекидања ланчане реакције описане једначинама (3.35) до (3.37), чиме се прекида даља потрошња водоника.

У алкалном окружењу до генерисања  $\text{O}_2$  може доћи кроз неку од следећих реакција:



### 3.2.3.2. Утицај параметара излагања зрачењу на количину генерисаног гаса

Промена концентрације  $\text{H}_2$  са повећањем апсорбоване дозе није линеарна, односно  $G(\text{gas})$  се смањује са повећањем апсорбоване дозе. Такође, примећена су три режима промене количине генерисаног  $\text{H}_2$  и вредности  $G(\text{gas})$  у односу на апсорбовану дозу.

У првом режиму, који се јавља при апсорбованим дозама до 1 МГу, концентрација  $\text{H}_2$  се повећава, док се концентрација присутног кисеоника смањује, услед чега се однос концентрација  $\text{H}_2$  и  $\text{O}_2$  у раствору унутар пора повећава. За довољно висок однос  $\text{H}_2/\text{O}_2$ , при ком концентрације  $\text{H}_2$  и кисеоника постају критичне, долази до покретања ланчане реакције описане једначинама (3.35) – (3.37). Присуство кисеоника у раствору у порама одговорно је за први режим током излагања зрачењу у инертној атмосфери, како при ниској тако и при високој јачини дозе. Ланчана реакција описана једначинама (3.35) – (3.37) је прекинута све док је концентрација кисеоника већа од неколико  $\mu\text{mol/L}$ . [91] Производња  $\text{H}_2$  је тада константна све док се не достигне критична концентрација. Почетно присуство  $\text{H}_2$  ограничава разградњу воде фаворизујући рекомбинације које поново формирају  $\text{H}_2\text{O}$  ланчаном реакцијом описаном реакцијама:



Због високе концентрације  $H_2$ , хидроксилни радикали ( $OH^\bullet$ ) реагују претежно реакцијом (3.47), ограничавајући тиме разградњу воде. Ово својство своју примену је нашло у нуклеарним реакторима под притиском (енг. *Pressurized Water Reactor – PWR*) где постоји вишак  $H_2$  како би се ограничило нагомилавање оксидујућих продуката (као што су  $O_2$  и  $H_2O_2$ ) који су одговорни за корозију реакторских материјала. Како се ове реакције одвијају само у случају чисте воде изложене зрачењу ниског LET у затвореном окружењу, почетно присуство кисеоника дестабилизује ову ланчану реакцију. Дакле, из одређене критичне концентрације раствореног  $H_2$ , ланчана реакција описана једначинама (3.35) – (3.37) може се поново појавити и успорити његово формирање.

У другом режиму, који је примећен између 1 и 3 МGу, стварање водоника се успорава и његова концентрација се смањује. У овом режиму, реакције у којима долази до потрошње  $H_2$  су учесталије од оних код којих радиолизом воде долази до формирања  $H_2$ , што свеукупно узрокује смањење производње  $H_2$ . Оваква појава највероватније је резултат дифузије примарних хемијских врста унутар геополимера у спречи са високом акумулацијом водоника у порама.

Трећи режим, који се јавља за апсорбоване дозе изнад 3 МGу, одговара равнотежи система и у њему концентрација  $H_2$  остаје стабилна. Оваква појава може се објаснити поновним покретањем ланчане реакције описане једначинама (3.35) –(3.37), или као последица спрегнутог ефекта ниске концентрације присутног кисеоника и високе концентрације  $H_2$  у раствору у порама.

Утицаја јачине дозе на количину генерисаног  $H_2$ , односно на вредност  $G(\text{gas})$  је занемарљив односно за исту дозу коју прими материјал ефекти су исти без обзира на јачину дозе.

Висока густина јонизације, која је последица излагања зрачењу високог LET, доводи до рекомбинације радикала које узрокују да приноси производње молекуларних врста буду већи у поређењу са зрачењем нижег LET. Из овог разлога је утицај кисеоника при излагању зрачењу високог LET на концентрацију  $H_2$  мањи.

Као и у случају излагања воде, при излагању геополимера зрачењу високог LET радиолитички приноси  $H_2$  су већи од оних уочених током излагања зрачењу ниског LET. [92 – 95]

Велика густина екситације и јонизације дуж путање јона повећава вероватноћу рекомбинације хемијских врста (хидриран електрон и радикали) према следећим реакцијама:



Губитак енергије зрачења при проласку кроз материјал на начине описане у поглављу 2 зависи од односа  $Z/A$  изложеног материјала и његове густине. С обзиром да LET при излагању тешким јонима зависи од односа  $Z/A$  и да се исти број секундарних електрона и екситона формира у чврстом стању рекомбинује са дефектима пре миграције на површину, промена вредности  $G(\text{gas})$  не зависи од ни од ефективног атомског броја ни од специфичне површине.

Утицај присуства кисеоника огледа се у смањењу концентрације  $H_2$  услед рекомбинације  $O_2$  и  $H_2$  [96, 97].

### 3.2.3.3. G - вредности

Као и код полимерних материјала, G-вредности имају исто значење, односно представљају број насталих или промењених молекула по 1 J депоноване енергије у

материјалу. Како је код геополимерних материјала најзначајнији ефекат излагања јонизујућем зрачењу генерисање гаса, то су и друге G-вредности занемарљиве у поређењу са G(gas).

Иако се радиолитички принос производње H<sub>2</sub> у геополимерним материјалима са теоријског становишта може представити као директно пропорционалан количини воде присутне у њима [98]:

$$G(\text{gas})_{\text{gp}} = G(\text{gas})_{\text{w}} \cdot f_m \quad (3.52)$$

где је:

$G(\text{gas})_{\text{gp}}$  – G-вредност геополимерног материјала

$G(\text{gas})_{\text{w}}$  – G-вредност воде

$f_m$  – масени удео воде у геополимерном материјалу

у реалном случају ове вредности могу значајно да одступају од теоријски претпостављених због разлика у саставу и садржају воде у порама геополимера.

У студији [99] анализиран је утицај јонизујућег зрачења на три формулације геополимерних материјала и то: 4SiO<sub>2</sub> 1Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 1Na<sub>2</sub>O 12H<sub>2</sub>O, 4SiO<sub>2</sub> 1Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 1K<sub>2</sub>O 12H<sub>2</sub>O и 4SiO<sub>2</sub> 1Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 1Cs<sub>2</sub>O 12H<sub>2</sub>O. Три наведене формулације имају различите расподеле величине пора као и различите специфичне површине у зависности од алкалног катјона коришћеног током синтезе. Експериментално утврђени радиолитички приноси производње H<sub>2</sub> за три наведене формулације геополимера су дати у табели 3.4.

Табела 3.4. G-вредности за одабране геополимерне материјале.

Геополимерни материјал	G-вредности	
	G(gas)	
	$\left[\frac{\mu\text{mol}}{\text{J}}\right]$	$\left[\frac{\text{молекула}}{100\text{eV}}\right]$
4SiO <sub>2</sub> 1Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1Na <sub>2</sub> O 12H <sub>2</sub> O	0,013	0.1255
4SiO <sub>2</sub> 1Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1K <sub>2</sub> O 12H <sub>2</sub> O	0,025	0.2413
4SiO <sub>2</sub> 1Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1Cs <sub>2</sub> O 12H <sub>2</sub> O	0,048	0.4633

#### 3.2.3.4. Утицај својстава материјала на количину генерисаног гаса

Вредност G(gas) зависи од садржаја воде у геополимеру, физичких и хемијских својстава геополимера, као и од његове порозности (величине пора и специфичне површине која представља укупну површину чврстог материјала по јединици масе) [81, 86, 87, 100]. Четири наведена параметра који утичу на ослобађање H<sub>2</sub> су у корелацији и не могу се посматрати независно један од другог.

До генерисања H<sub>2</sub> у геополимерним материјалима може доћи:

1. интеракцијом екситона са водом адсорбованом на површини пора и
2. интеракцијом електрона који мигрирају у раствор присутан у порама геополимера, где се термализују.

Екситон је систем који се састоји од електрона и шупљине, спрегнут кулоновом интеракцијом.

На промену вредности G(gas) могу да утичу и следећа физичка својства геополимерног материјала:

- величина пора,
- специфична површина,
- елементарни састав материјала.

Ова три параметра су међусобно зависна. Да би се, на пример, у посматраном материјалу променила величина пора и стога специфична површина, неопходно је променити његов елементарни састав.

Било да се ради о једном или другом наведеном механизму (екситони или електрони), ови ефекти постају израженији са смањењем величине пора, јер је тада израженија и рекомбинација радикалних врста. Насупрот томе, када је величина пора велика, тј. изнад 8 nm, вода се у већини случајева понаша исто као и вода која није заробљена у порама. Приноси производње  $H_2$  су тада приближни приносима у води при високој вредности рН.

Што је просечна величина пора мања, то је већа вероватноћа рекомбинације слободних радикала формираних у раствору присутном у порама геополимера. Ово је последица чињенице да је величина пора реда величине просечног пута дифузије слободних радикала. На овај начин повећава се и вероватноћа за генерисање  $H_2$ .

Вредности  $G(\text{gas})$  се линеарно смањују са повећавањем величине пора. Ово важи за поре величине до 8 nm, изнад које су вредности  $G(\text{gas})$  приближно константне и близу оних утврђених за воду при високој рН вредности. Повећањем величине пора, запремина воде у геополимеру се повећава у односу на запремину воде адсорбоване на површини чврстог материјала, чиме се објашњава кретање вредности  $G(\text{gas})$  ка вредностима за воду [81].

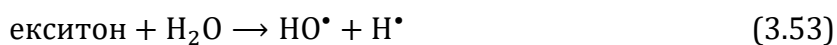
Утицај специфичне површине на генерисање  $H_2$  последица је преноса енергије из чврсте матрице у раствор присутан унутар пора геополимера. Овај пренос одвија се путем екситона или путем електрона. С обзиром да се пренос енергије одвија на граници чврсте и течне материје, он се повећава са повећањем специфичне површине.

Без воде која се адсорбује на површини пора или налази унутар пора, не би било утицаја преноса енергије и стога не би било ни утицаја порозности. Молекули воде присутни у порама могу бити:

- адсорбовани на површини или близу површине. Радиолита ових молекула индукована је збиром енергије директно депоноване зрачењем и енергије добијене из чврстог материјала, путем трансфера екситона,
- унутар пора. Радиолита ових молекула је индукована само енергијом која је депонована јонизујућим зрачењем током излагања.

Удео адсорбованих молекула воде расте како се величина пора смањује, а специфична површина повећава.

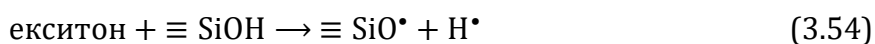
Пренос енергије на површину пора помоћу екситона доводи до пораста генерисања  $H_2$  кроз реакцију :



након чега следи димеризација радикала  $H^\bullet$ .

Што је граница између чврсте и течне материје већа, тј. што је специфична површина већа, то је већи трансфер екситона у воду адсорбовану на површини пора и тиме веће ослобађање  $H_2$ . Другим речима, што је већа специфична површина, већа је и вредност  $G(\text{gas})$ .

Други механизам формирања  $H_2$  на раздвојној површи чврсте и течне материје код геополимера, који такође укључује екситоне, је формирање  $H^\bullet$  радикала хомолитичким прекидом ОН везе силанола, након заробљавања екситона, према реакцији [86]:



Треба напоменути и да је овај механизам далеко мање вероватан од претходно наведеног [86].

Веће вредности  $G(\text{gas})$  могу бити и последица хетерогености депоновања енергије унутар мезопорозног материјала. У том случају ради се о преносу енергије у раствор присутан у порама геополимерног материјала преко електрона који су резултат Комптоновог ефекта. Секундарни електрони формирану у близини границе чврсте и течне материје чија је просечна путања довољно велика дифузијом прелазе у интерстицијски раствор. Они потом ступају у интеракцију са молекулима воде или постају хидрирани и доводе до разлагања молекула воде, праћеног емисијом  $\text{H}_2$ , према механизмима радиоллизе воде.

Утицај специфичне површине зависи и од атомског броја геополимера. Што је већи атомски број, то је већи број екситона који се могу формирати кулоновском интеракцијом електрона и шупљине. С обзиром да је то феномен који се дешава на граници чврсте и течне материје, он је фаворизован већом површином, било да је у питању електрон или екситон.

Поред утицаја величине пора и специфичне површине, на вредност  $G(\text{gas})$  утиче и ефективни атомски број геополимера [101, 102]. И на ефективни атомски број и на специфичну површину утиче природа катјона у геополимеру. Повећањем ефективног атомског броја повећава се и концентрација Комптонових електрона, а тиме и екситона, у геополимеру. Стога је енергија депонована у води адсорбованој на површини пора или у раствору присутном у порама геополимера већа, што доводи до веће вредности  $G(\text{gas})$ . Дакле, повећањем удела елемената који имају већи атомски број у саставу геополимера, а тиме и електронске густине, долази до повећања вредности  $G(\text{gas})$ .

Промена вредности  $G(\text{gas})$  у зависности од састава геополимерног материјала може се разумети само истовременим узимањем у обзир сва три фактора који зависе од природе алкалних јона: величине пора, специфичне површине и ефективног атомског броја.

### **3.2.4. Утицај јонизујућег зрачења на својства геополимерних материјала**

Геополимерни материјали изложени јонизујућем зрачењу могу доживети повећање порозности и механичке отпорности, као и повећање кристализације. Излагање геополимера јонизујућем зрачењу ниског LET не доводи до промене кристаличности, порозности или механичке чврстоће геополимерних материјала, чак ни при високој апсорбованој дози и великој јачини дозе. С друге стране, излагање зрачењу високог LET доводи до промена. Ефекат измештања атома, повезан са великом масом и великом енергијом тешких јона, доводи до кристализације као што је случај и током пораста температуре.

#### **3.2.4.1. Промена расподеле величине пора**

Током излагања зрачењу ниског LET, долази до повећања механичке отпорности која је резултат повећања густине мреже геополимера [88, 103]. С друге стране, појава кристалних фаза при излагању зрачењу високог LET може узроковати промену порозности. Поред тога, излагање зрачењу високог LET може изазвати већу штету по природи и размерама. Показано је и да излагање тешким јонима чини да расподела величине пора у материјалу постане бимодална или мултимодална, а проценат укупне порозности има тенденцију повећања.

#### 3.2.4.2. Кристализација

Као што је већ наведено, под одређеним условима, као што је излагање високим температурама, може доћи до кристализације геополимера [68, 69, 104, 105]. Утицај излагања геополимера високим температурама може бити аналоган утицају излагања јонизујућем зрачењу, с обзиром да енергија коју преда јонизујуће зрачење може бити довољна да се створи одређена количина кристалних фаза. Формирање ових кристалних фаза може довести до слабљења или јачања мреже геополимера, а тиме и до промене механичких својстава геополимера.

Излагање зрачењу ниског LET не доводи до појаве кристализације чак и при врло високој јачини дозе, што показује и да јачина дозе нема утицаја на структурне модификације геополимера. С друге стране, излагање зрачењу високог LET изазива појаву кристализације.

#### 3.2.4.3. Измештање атома

Иако зрачење већи део енергије губи јонизацијом и екситацијом, током излагања материјала тешким наелектрисаним честицама, јонима или неутронима, изванредан део енергије зрачења предаје се кроз интеракције са језгрима атома. Еластична расејања на језгрима могу да доведу до измештања атома. Кинетичка енергија измештених атома (јона) је мала, али због велике масе они могу да доведу до више хиљада додатних измештања атома што може да узрокује промене мреже геополимера [106]. Ова измештања атома доводе до реорганизације кристалне структуре мреже геополимера.

### 3.3. Композитни материјали

Композитни материјали, или *компози*ти, су материјали добијени спајањем два или више материјала различитих својстава, састава и/или облика, у циљу добијања материјала који поседују жељену комбинацију својстава, какву немају појединачни материјали од којих су састављени. Може се рећи и да композици представљају комбинацију два или више материјала са различитим својствима у микро и/или макроскопској размери.

*IUPAC* дефинише композицини материјал као вишекомпонентни материјал који се састоји од више различитих фаза, које нису гасовите и од којих је бар једна континуална [13].

Композитни материјали користе се у применама које захтевају комбинацију својстава какву немају друге врсте материјала. У својства материјала која су код композициних материјала побољшана у односу на материјале од којих су састављени спадају чврстоћа, густина, крутост, тврдоћа, топлотна и електрична проводљивост, понашање при високим температурама, маса и антикорозивност. Неке од предности композициних материјала над конвенционалним материјалима су могућност израде врло сложених облика, смањење трошкова накнадне обраде, могућност спајања елемената или компоненти током поступка производње, стабилност при екстремним радним условима, отпорност на корозију и пројектовање својства према планираној примени.



### 3.3.1. Састав композитних материјала

Композитни материјали састоје се од основе, матрице и додатака или ојачања. Матрица је основни материјал одређених својстава, а ојачање је материјал чијим додавањем се постижу жељена својства композита.

Улога матрице је да штити ојачање од спољних утицаја, да преноси оптерећење на ојачање, дефинише спољни облик композитног материјала и да одреди понашање композитног материјала при излагању атмосферским условима.

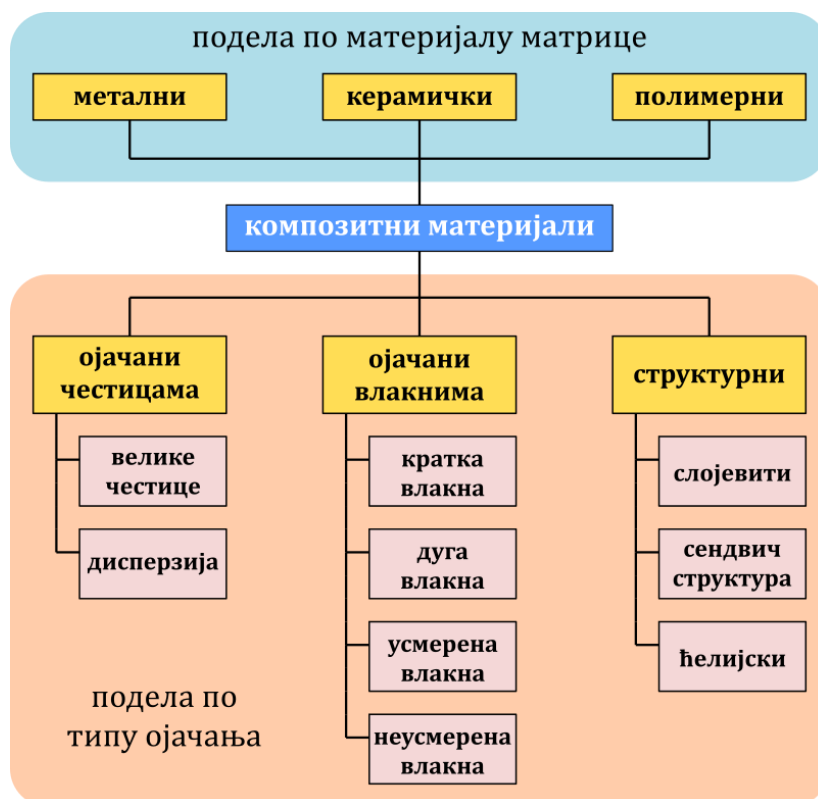
Улога ојачања је да осигура жељена механичка својства као што су висока чврстоћа, високи модул еластичности и отпорност на хабање.

Својства композитних материјала зависе од својстава конституената, тј. матрице и ојачања, њихове величине и расподеле, запреминских удела и облика, као и природе и јачине веза између конституената.

Обично се код композитних материјала с металном матрицом додавањем ојачања смањују трајне деформације при вишим температурама, код композитних материјала с керамичком матрицом повећава жилавост, а код композитних материјала с полимерном матрицом повећавају чврстоћа и крутост.

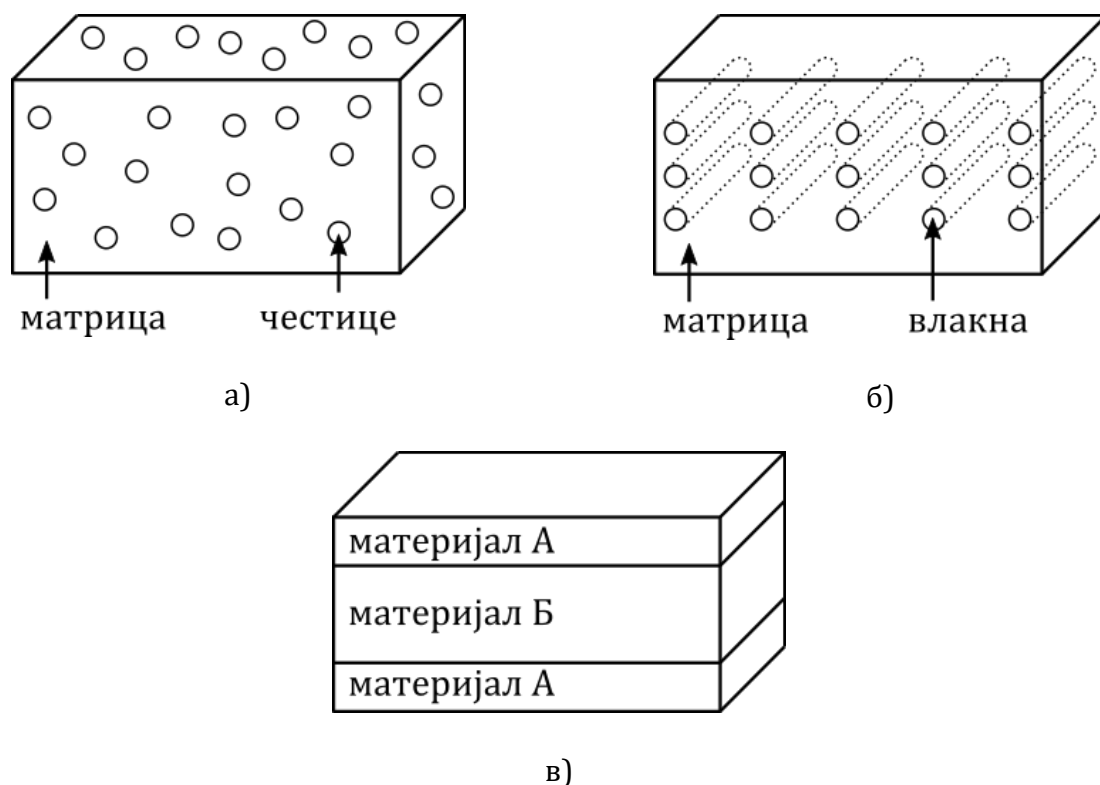
### 3.3.2. Подела композитних материјала

Композитни материјали најчешће се деле према материјалу од ког је начињена матрица или према типу ојачања. Подела композитних материјала према материјалу матрице и према типу ојачања шематски је приказана на слици 3.7.



Слика 3.7. Подела композитних материјала.

На слици 3.8 дат је пример поделе композитних материјала према типу ојачања



Слика 3.8. Подела композитних материјала према типу ојачања: а) композитни материјали ојачани честицама, б) композитни материјали ојачани влакнима, в) структурни композитни материјали.

### 3.3.2.1. Композитни материјали ојачани честицама

Композитни материјали ојачани честицама састоје се од меке, дуктилне матрице у коју су смештене тврде и крпе честице различитог облика, али приближно истих димензија у свим правцима. Матрица и честице којима је она ојачана морају бити чврсто везане, при чему не сме доћи до нежељених хемијских реакција између њих.

Према величини честица и начину на који оне утичу на својства композитних материјала, композитни материјали ојачани честицама деле се на:

- Композитне материјале ојачане дисперзијом
- Композитне материјале ојачане великим честицама

Честице за ојачавање могу се поделити на мале (погодне за дисперзију) и велике. Најчешће се честице пречника мањег од  $0,1 - 1 \mu\text{m}$  сматрају малим и погодним за дисперзију. Честице пречника већег од  $1 \mu\text{m}$  сматрају се великим.

На својства композитних материјала ојачаних честицама знатно утичу величина и запремински удео честица. Ефикасност дисперзије зависи од величине честица, њиховог облика, количине и расподеле у матрици. Код композитних материјала са дисперзијом, повећана чврстоћа постиже се дисперзијом веома малих честица (пречника између  $10$  и  $250 \text{ nm}$ ) у матрици. Да би се постигло неопходно ојачавање, честице треба, поред малог пречника, да буду и равномерно распоређене у матрици. Дисперговане честице успоравају померање дислокација, ојачавајући тако матрицу. Ако су честице распоређене равномерно, композити ојачани честицама су изотропни. Честице су најчешће од оксида, нитрида или карбида као што су:  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiC}$ ,  $\text{BN}$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{TiC}$ ,  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{WC}$  и  $\text{B}_4\text{C}$

Код композитних материјала с великим честицама, механичка својства су побољшана деловањем самих честица. Ови композити садрже веће уделе великих

честица, које не делују директно на спречавање померања дислокација и на тај начин не ојачавају директно матрицу. При оптерећивању композита, једнако се деформишу и матрица и честице, при чему се у матрици и честицама јављају различита напрезања. Код производње оваквих композитних материјала циљ је постизање комбинација својстава којим није првенствена сврха повећање чврстоће.

### 3.3.2.2. Композитни материјали са влакнима

Композитни материјали ојачани влакнима добијају се убацивањем чврстих, крутих и кртих влакана у меку, дуктилну матрицу, чиме се постиже побољшање чврстоће, жилавости и крутости, као и односа чврстоће и густине. Од свих композитних материјала, највећа ефикасност ојачања постиже се управо код композитних материјала ојачаних влакнима. Код ових композита оптерећење се преноси и дистрибуира међу влакнима путем матрице, која поред тога обезбеђује пластичност, жилавост и способност обликовања, док влакна преносе оптерећење.

Дужина и распоред влакана битно утичу на својства композитног материјала. Чврстоћа композитних материјала ојачаних влакнима зависи од чврстоће влакана и њихове оријентације, запреминског удела влакана у композиту, као и од односа дужине и пречника влакана.

Механичка својства композитних материјала ојачаних дугим усмереним влакнима су врло анизотропна. У смеру влакана чврстоћа је максимална, док је у смеру нормалном на влакана чврстоћа минимална. Код композита ојачаних кратким влакнима она могу бити усмерена или случајно распоређена. Значајне вредности чврстоће и крутости могуће је постићи у подужном правцу код споменутих композита. Код композита ојачаних случајним усмереним кратким влакнима својства су изотропна. Да би се постигла добра својства у више праваца, користе се слојеви са различитим оријентацијама влакана. Чврстоћа и крутост композитног материјала расту са повећањем запреминског удела влакана у њему. Горња граница запреминског удела влакана је око 80%, јер се за већи запремински удео влакана не може обезбедити да свако влакно буде окружено матрицом.

Димензије влакана се дефинишу односом дужине  $l$  и пречника  $d$ . Са повећањем односа  $l/d$  својства композитних материјала се побољшавају. Влакна са већом дужином ( $l/d = 200-500$ ) боља су зато што крајеви сваког влакана подносе мањи део оптерећења од остатка влакана. Дуга влакна је тешко произвести и убацивати у матрицу, док се кратка влакна ( $l/d = 20-50$ ) лако спајају са матрицом, али дају релативно мало ојачање.

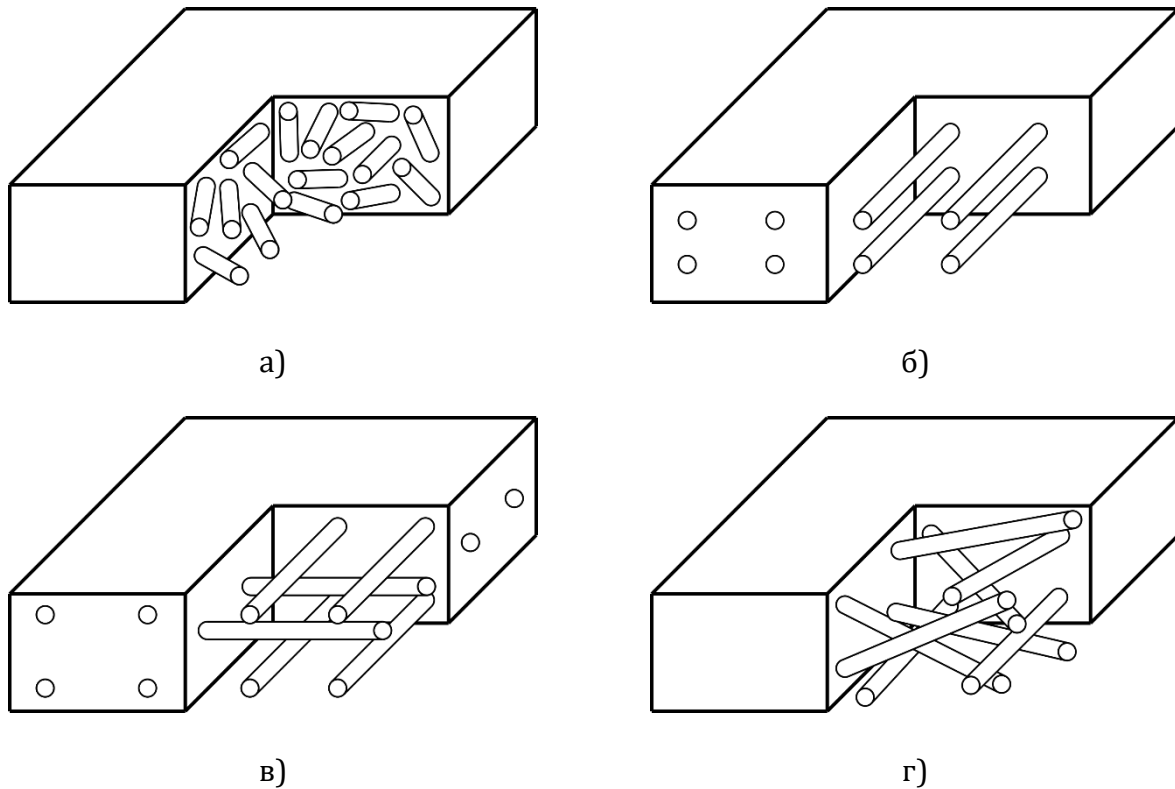
Влакна која се користе у композитним материјалима треба да поседују високе вредности специфичне чврстоће (количник чврстоће и густине) и специфичне крутости (количник модула еластичности и густине), високу топлотну стабилност и контролисану растељивост при повишеним температурама.

Влакна се разликују према:

- врсти,
- дужини,
- пречнику или
- оријентацији.

Према пречнику влакна се деле на вискере, влакна и жице. Вискери су врло танке нити керамичких монокристала, високе чистоће, које имају велик однос дужина/пречник.

Према дужини, влакна могу бити дуга или кратка. Према оријентацији, влакна могу бити оријентисана или неоријентисана. Дуга влакна могу да буду сложена паралелно, без увијања, или укрштена, док кратка влакна могу бити случајно распоређена. На слици 3.9 приказани су разни распореди влакана.



Слика 3.9. Распоред влакана код композитних материјала ојачаних влакнима: а) кратка неусмерена влакна, б) дуга усмерена влакна, в) дуга усмерена укрштена влакна и г) дуга неусмерена влакна.

Влакна која се користе у композитним материјалима могу да буду поликристална или аморфна, а у форми: ровинга, платна или мата. Ровинг (енг. *roving*) представља укрштене струкове са више влакана, најчешће једнаке дебљине и постављене под углом од  $90^\circ$ . Влакна у форми ровинга имају боља механичка својства у смеровима влакана која их сачињавају, а лошија у свим осталим смеровима. Платно је форма у којој се влакна могу укрштати на различите начине, чиме подсећа на ровинг, али има већу прилагодљивост облику и већу глаткоћу. Мат (енг. *mat*) се састоји од униформно широког слоја влакана површински разбацаних у свим смеровима (неусмерена влакна) спојених лепком. Слојевити (ламинатни) композитни материјал израђен с матом има једнака својства у свим правцима.

За производњу влакана се најчешће користе стакло, угљеник, бор и арамид.

Стаклена влакна се праве извлачењем растопљеног стакла кроз отворе малог пречника. Користе се две врсте стакла: Е-стакло (52-56%  $\text{SiO}_2$ , 12-16%  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 16-25%  $\text{CaO}$ , 8-13%  $\text{B}_2\text{O}_3$ ) и S-стакло (65%  $\text{SiO}_2$ , 25%  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 10%  $\text{MgO}$ ). Е-стакло има добру затезну чврстоћу и модул еластичности и највише се користи за израду других влакана. S-стакло има већу вредност специфичне чврстоће и крутости од Е-стакла, али је знатно скупље.

Угљенична влакна се добијају хемијским разлагањем дугих влакана полиакрилнитрида (PAN) на повишеним температурама. Процес добијања се одвија кроз фазу стабилизације, фазу карбонизације и фазу графитизације. Фаза графитизације користи се само ако се захтева висока вредност модула еластичности. Угљенична влакна садрже око 93-95% угљеника, а графитна влакна 99% угљеника.

Арамидна влакна се добијају од ароматичних полиамидних полимера, ојачаних бензоловим прстеном. Због мале густине, ова влакна имају највећу специфичну чврстоћу и крутост, али се њихова својства на температури вишој од  $1000^\circ\text{C}$  знатно смањују.

Борна влакна се добијају напаравањем бора на влакна волфрама, пречника реда величине 10  $\mu\text{m}$ . Како је основа ових влакана волфрам, то она имају велику затезну и притисну чврстоћу, као и модул еластичности, отпорна су на високе температуре, а имају и велику густину у поређењу са другим влакнима.

Густина композитних материјала ојачаних влакнима одређује се применом закона мешања:

$$\rho_c = \rho_m V_m + \rho_f V_f \quad (3.55)$$

где је:

$\rho_c$  – густина композитног материјала

$\rho_m$  – густина матрице

$\rho_f$  – густина влакана

$V_m$  – запремински удео матрице

$V_f$  – запремински удео влакана

Закон мешања у овом облику може се применити и на друге типове композитних материјала, као и на хибридне композитне материјале који су описани у даљем тексту. Код хибридних композитних материјала треба у обзир узети све различите типове ојачања:

$$\rho_c = \rho_m V_m + \sum_i \rho_{f_i} V_{f_i} \quad (3.56)$$

где је  $i$  укупан број различитих типова ојачања.

Одређивање чврстоће и модула еластичности композитних материјала, поред запреминских удела и својстава матрице и ојачања, зависи и од других фактора, као што је нпр. оријентација влакана. Тако се модул еластичности композитног материјала ојачаног влакнима код ког су влакна у правцу оптерећења рачуна по формули:

$$E_c = E_m V_m + E_f V_f \quad (3.57)$$

где је:

$E_c$  – модул еластичности композитног материјала

$E_m$  – модул еластичности матрице

$E_f$  – модул еластичности влакана

$V_m$  – запремински удео матрице

$V_f$  – запремински удео влакана

Када је оптерећење нормално на правац влакана модул еластичности се одређује преко формуле:

$$\frac{1}{E_c} = \frac{V_m}{E_m} + \frac{V_f}{E_f} \quad (3.58)$$

Чврстоћа композитних материјала ојачаних влакнима зависи од везе између влакана и матрице и ограничена је деформацијом матрице, па је стварна затезна чврстоћа  $R_{mc}$  скоро увек мања од вредности која се добија по закону мешања:

$$R_{mc} = R_{mm}V_m + R_{mf}V_f \quad (3.59)$$

где је:

$R_{mc}$  – затезна чврстоћа композитног материјала

$R_{mm}$  – модул еластичности матрице

$R_{mf}$  – модул еластичности влакана

$V_m$  – запремински удео матрице

$V_f$  – запремински удео влакана

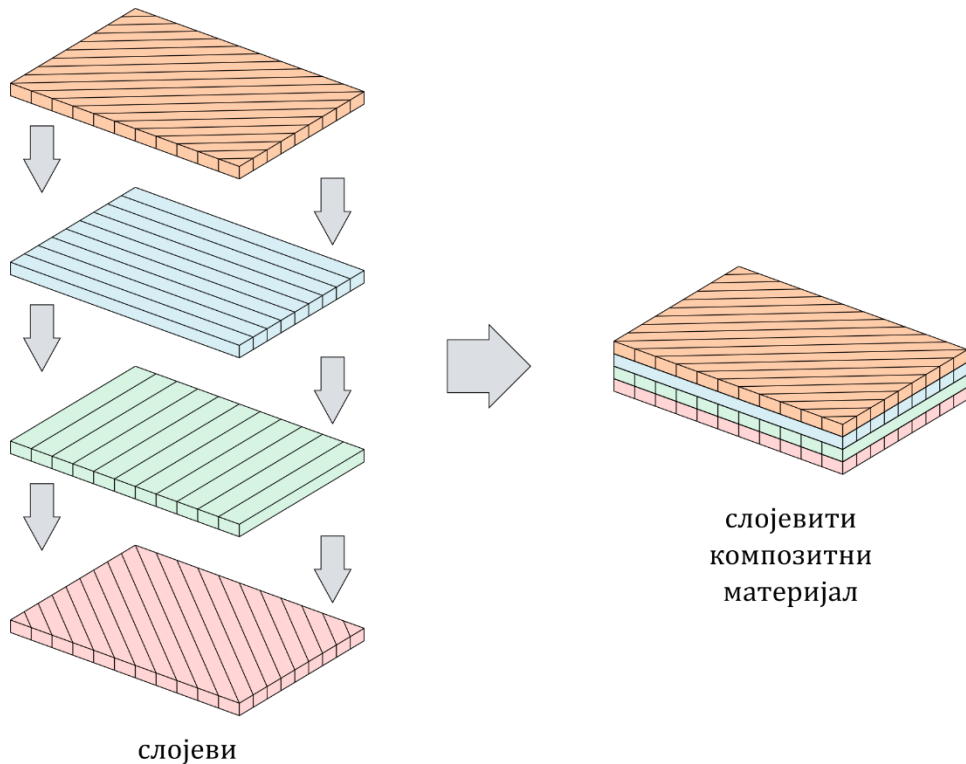
### 3.3.2.3. Структурни композитни материјали

Структурни композитни материјали су формирани од хомогених и/или композитних материјала, а својства им не зависе само од својстава и удела компонената, већ и од њихових геометријских облика. Структурни композитни материјали израђују се са циљем да се побољшају својства материјала као што су отпорност на корозију, абразивна отпорност, чврстоћа композитних материјала ојачаних влакнима у више равни или да се обезбеде различити коефицијенти линеарног ширења.

Структурни композитни материјали деле се на:

- слојевите (ламинатне) композитне материјале,
- композитне материјале са сендвич конструкцијама и
- ћелијске композитне материјале.

Слојевити композити су формирани од слојева различитих врста, карактеристика и дебљина. Слојевити композитни материјали се типично састоје од танких превлака, дебљих заштитних површина, биметала, ослојених метала, ламината и композита ојачаних влакнима у облику танких слојева. Површинским слојевима се обично постижу жељена својства површина структура, система или компонената као што су тврдоћа и отпорност на хабање и корозију, која основни материјал не поседује. Шема слојевитог композитног материјала приказана је на слици 3.10.

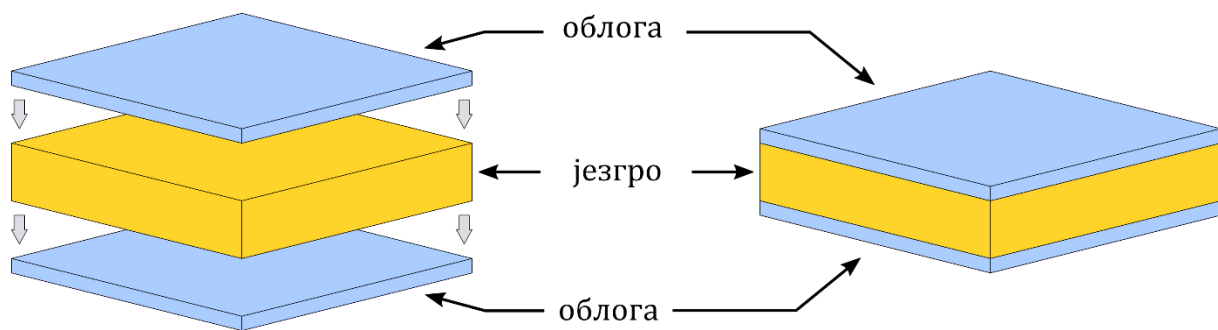


слојеви

Слика 3.10. Слојевити композитни материјал.

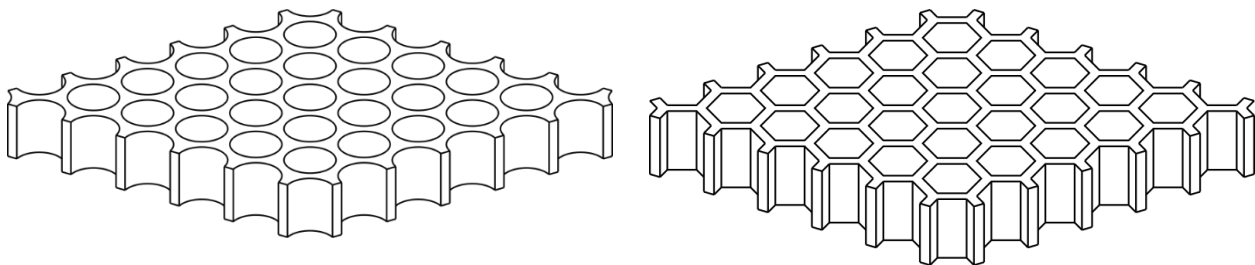
Својства слојевитих композитних материјала су изотропна у две димензије (површински), што је омогућено слагањем више слојева високо анизотропног материјала. Чврстоћа у сваком поједином смеру постиже се оријентисањем сваког слоја посебно.

Сендвич конструкције се састоје од два чврста и крута слоја (облога), између којих се налази порозно језгро, с обе стране везано за облогу. На тај начин се постижу релативно висока чврстоћа и крутост, уз релативно ниску густину. Шема композитног материјала са сендвич конструкцијом приказана је на слици 3.11.



Слика 3.11. Композитни материјал са сендвич конструкцијом.

Код ћелијских композитних материјала матрицу чине ћелије танких крутих зидова, испуњене гасом. Ћелије могу бити отворене или затворене. Примери конструкције неких ћелијских композитних материјала дати су на слици 3.11.



Слика 3.12. Примери конструкције ћелијских композитних материјала.

Посебна група савремених композитних материјала су угљеник-угљенични композитни материјали. Они се праве стављањем ојачања у виду угљеничних влакана у пиролизовану угљеничну матрицу. Својства угљеник-угљеничних композитних материјала су висок модул еластичности, висока затезна чврстоћа која се не мења ни при излагању врло високим температурама, висока отпорност на лом, мала пластичност при повишеним температурама и велика топлотна проводљивост. Недостатак им је да су склони оксидацији при повишеним температурама, што захтева одговарајућу заштиту од оксидације, која се постиже додавањем различитих инхибитора оксидације.

Хибридни композитни материјали добијају се ојачавањем једне матрице са више различитих типова ојачања. Предност оваквих композитних материјала је знатно боља комбинација својстава него што је то случај код композитних материјала са само једном врстом ојачања.

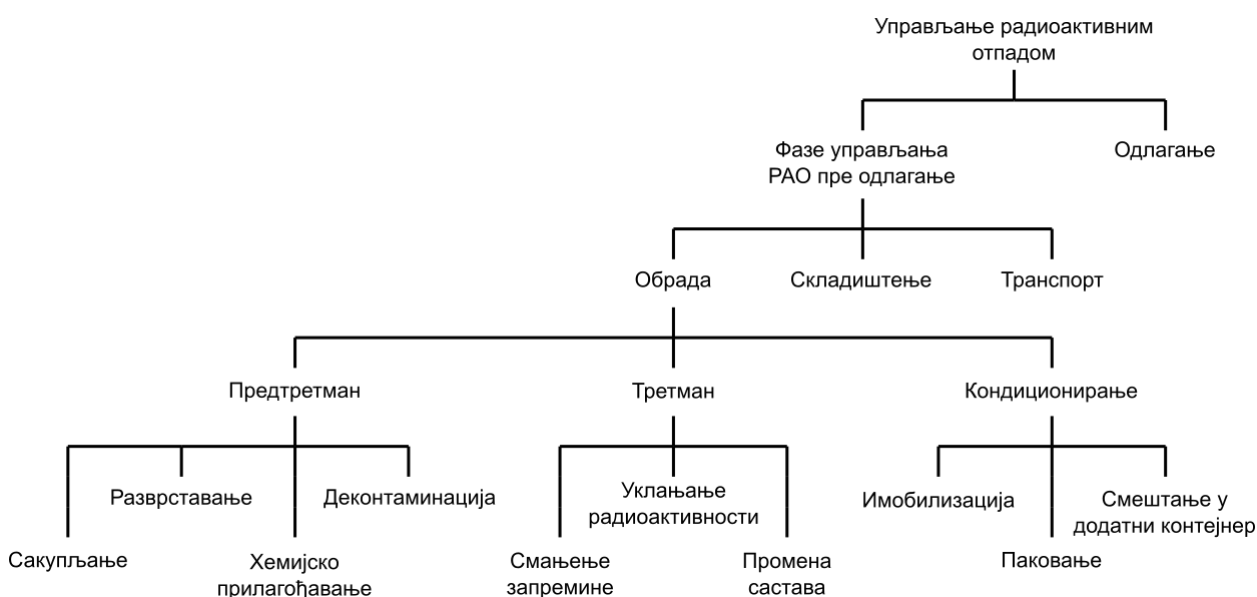
### **3.3.3. Утицај зрачења на композитне материјале**

Када се композитни материјал излаже јонизујућем зрачењу, приноси различитих ефеката су директно пропорционални приносима из чистих компоненти и њиховим релативним пропорцијама у композитном материјалу. С обзиром да компоненте деградирају независно једна од друге, овакво понашање може посебно доћи до изражаја када једна компонента деградира много брже од осталих. Код неких композитних материјала може доћи до преноса енергије међу компонентама. У таквом случају, нека друга компонента може апсорбовати више енергије и брже доживети деградацију него што је претпостављено њеним уделом у композитном материјалу.



## 4. Управљање радиоактивним отпадом

Радиоактивни отпад је радиоактивни материјал који се не планира за даљу употребу. Управљање радиоактивним отпадом јесу све административне и техничке активности у вези руковања, предтретмана, третмана, кондиционирања, транспорта, складиштења и одлагања радиоактивног отпада [107 – 110] што је и шематски представљено на слици 4.1. Примарни циљ управљања радиоактивним отпадом јесте поступање са њиме на сигуран начин, односно на начин којим се спречавају негативни ефекти јонизујућег зрачења по људско здравље и животну средину, како данас тако и убудуће и без додатног оптерећења за будуће генерације [111, 112].



Слика 4.1. Управљање радиоактивним отпадом.

Радиоактивни материјали који се користе у различитим применама постају, након неког времена, делимично или потпуно неупотребљиви за сврху којој су намењени. Стога сваки извор зрачења и радиоактивни материјал, без обзира на

примену, може једног дана постати радиоактивни отпад, ако пре тога услед радиоактивног распада не достигне нивое за ослобађање од регулаторне контроле. У већини случајева ови материјали и даље задрже значајан део радиоактивности коју су имали за време употребе. Радиоактивни отпад настаје у нуклеарној индустрији, у процесу производње електричне енергије, као и у низу радијационих делатности као што су примена извора зрачења у медицини, индустрији, пољопривреди или научно-истраживачком раду.

Радиоактивни отпад, као и сваки радиоактивни материјал, представља потенцијални ризик за здравље људи и животну средину уколико није контролисан на одговарајући начин. Адекватним мерама контроле радиоактивног отпада ризик по здравље људи и ризик по животну средину умањују се до прихватљивих нивоа. Радијациони ризик који потиче од радиоактивног отпада зависи од концентрације и природе радионуклида присутних у њему.

Међународна агенција за атомску енергију (МААЕ) дефинисала је основне принципе управљања радиоактивним отпадом, узимајући у обзир прихватљив ниво ризика, потребан ниво заштите од штетних дејстава радиоактивног отпада и његов утицај на будуће генерације [112 – 115]. Основни принципи управљања радиоактивним отпадом исказани су у Табели 4.1.

Табела 4.1. Основни принципи управљања радиоактивним отпадом  
Међународне агенције за атомску енергију. [113]

I принцип	Заштита здравља људи	Радиоактивним отпадом се мора управљати на начин који обезбеђује прихватљив ниво заштите здравља људи
II принцип	Заштита животне средине	Радиоактивним отпадом се мора управљати на начин који обезбеђује прихватљив ниво заштите животне средине
III принцип	Заштита изван националних граница	Радиоактивним отпадом се мора управљати на начин који узима у обзир потенцијалне ефекте на људско здравље и животну средину изван националних граница
IV принцип	Заштита будућих генерација	Радиоактивним отпадом се мора управљати на начин који гарантује да процењени утицај на здравље будућих генерација није већи од нивоа који су данас прихватљиви
V принцип	Оптерећење будућих генерација	Радиоактивним отпадом се мора управљати на начин који не оставља непотребно оптерећење за будуће генерације
VI принцип	Национални регулаторни оквир	Радиоактивним отпадом се мора управљати у складу са важећим правним оквиром, укључујући правилну расподелу одговорности и независну регулаторну контролу
VII принцип	Контрола генерисања	Генерисање радиоактивног отпада мора бити што је (практично) могуће мање
VIII принцип	Међузависност генерисања и управљања	Међузависност свих корака у генерисању и управљању радиоактивним отпадом мора бити узета у обзир на адекватан начин
IX принцип	Сигурност постројења	Сигурност постројења за управљање радиоактивним отпадом мора бити обезбеђена током њиховог целокупног животног века

## 4.1. Класификација радиоактивног отпада

Класификација радиоактивног отпада може бити заснована на радиолошким, физичким, хемијским или биолошким особинама, односно на критеријумима као што су агрегатно стање, време полураспада или концентрација активности радионуклида присутних у радиоактивном отпаду [116, 117]. Значајне особине радиоактивног отпада на основу којих се може извршити његова класификација дате су у табели 4.2.

Табела 4.2. Значајне особине радиоактивног отпада.

Особина	Параметар
Порекло	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Порекло радиоактивног отпада</li> <li>- Генератор радиоактивног отпада</li> </ul>
Радиолошке особине	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Ризик од достизања критичности,</li> <li>- Садржај радионуклида,</li> <li>- Време полураспада,</li> <li>- Генерисање топлоте,</li> <li>- Врста зрачења,</li> <li>- Интензитет емитованог зрачења,</li> <li>- Активност и специфична активност радионуклида,</li> <li>- Продукти распада,</li> <li>- Површинска контаминација,</li> <li>- Дозиметријске особине релевантних радионуклида.</li> </ul>
Физичке особине	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Агрегатно стање,</li> <li>- Димензије,</li> <li>- Запремина,</li> <li>- Маса,</li> <li>- Растворљивост,</li> <li>- Испарљивост</li> <li>- Могућност пресовања;</li> <li>- Могућност дисперзије;</li> <li>- Мешљивост;</li> <li>- Садржај слободних течности.</li> </ul>
Хемијске особине	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Хемијски састав;</li> <li>- Растворљивост и желатинозни агенси;</li> <li>- Потенцијална хемијска штетност;</li> <li>- Реактивност</li> <li>- Отпорност на корозију;</li> <li>- Корозивност;</li> <li>- Органски састав;</li> <li>- Запаљивост;</li> <li>- Хемијска реактивност и способност бубрења;</li> <li>- Генерисање гасова;</li> <li>- Сорпција радионуклида;</li> </ul>
Биолошке особине	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Потенцијална биолошка штетност,</li> <li>- Биолошко нагомилавање,</li> <li>- Брзина разградње,</li> <li>- Продукти разградње.</li> </ul>

Класификација радиоактивног отпада је од посебног значаја у управљању радиоактивним отпадом, јер се он може класификовати и тиме раздвојити у више токова

који захтевају различите начине поступања како би се обезбедила њихова дугорочна сигурност. Тако се веома краткоживећи отпад може одвојити од другог радиоактивног отпада и привремено чувати док се достигну нивои за његово ослобађање у животну средину. С друге стране, дугоживећи радиоактивни отпад се мора додатно обрадити, и кондиционирати како би се обезбедило његово сигурно складиштење и одлагање.

Радиоактивни отпад се на основу радиолошких особина може делити према способности да произведе критичност, периоду полураспада, способности да произведе топлоту, укупној и специфичној активности радионуклида, површинској контаминацији, као и према дозиметријским особинама релевантних радионуклида. Време полураспада радионуклида садржаних у радиоактивном отпаду може бити у распону од веома кратког, реда неколико секунди, до веома дугог, реда милиона година. У смислу сигурног управљања радиоактивним отпадом, радионуклиди су подељени на краткоживеће и дугоживеће. Дугоживећим се сматрају радиоизотопи са временом полураспада дужим од 30 година. Садржај радионуклида се односи на специфичну и укупну активност радионуклида присутних у радиоактивном отпаду. Укупна и специфична активност радионуклида може бити у опсегу од занемарљиве до веома велике и посматрају се у односу на унапред дефинисане нивое изузимања. Веће укупна и специфична активност радионуклида присутних у радиоактивном отпаду намећу строже захтеве у погледу његовог управљања и изолације у односу на животну средину.

Са радиоактивним отпадом који има способност да доведе до критичности мора се током свих фаза управљања поступати тако да се ни у ком случају, па чак ни приликом одступања од нормалног рада постројења у ком се он обрађује, складишти или одлаже, или током транспорта не догоди да се на истом месту нађе количина оваквог материјала довољна да доведе до критичности.

Радиоактивни отпад који има способност да генерише топлоту мора се смештати у одговарајуће контејнере направљене тако да својом конструкцијом одводе топлоту или се, уколико то његова физичка и хемијска својства дозвољавају, сместити у одговарајуће базене где се топлота одводи водом.

Радиоактивни отпад се на основу физичких особина може делити према агрегатном стању, запремини, маси, стишљивости, запаљивости, растворљивости и испарљивости. Радиоактивни отпад се према агрегатном стању дели на чврсти, течни и гасовити радиоактивни отпад. Подела радиоактивног отпада према физичким особинама од највећег је значаја приликом одређивања могућности за његову обраду. Овде су од посебног значаја стишљивост, запаљивост и испарљивост радиоактивног отпада јер омогућавају примену најефикаснијих техника смањења његове запремине.

Према хемијским особинама радиоактивни отпад се може поделити према потенцијалном хемијском ризику, корозивности, реактивности, запаљивости, способности да генерише гас и сорпцији радионуклида.

Према биолошким особинама радиоактивни отпад се може поделити према потенцијалном биолошком ризику, брзини разградње и количини и својствима продуката разградње.

#### **4.1.1. Класификација радиоактивног отпада на основу опција за дугорочно управљање**

Радиоактивни отпад се класификује и на основу опција за његово даље управљање, односно могућности за његово изузимање из регулаторне контроле, опција за складиштење или одлагање. Међународна агенција за атомску енергију, узимајући у обзир опције за одлагање радиоактивног отпада, у својим препорукама је дефинисала шест класа радиоактивног отпада приказаних у Табели 4.3 [116].

Табела 4.3. Класификација радиоактивног отпада према препорукама Међународне агенције за атомску енергију. [116]

Категорија	Типичне особине и начин одлагања
Изузети EW	Специфична активност или укупна активност у радиоактивном отпаду једнака или нижа од прописаних нивоа за ослобађање или изузеће од регулаторне контроле.
Веома краткоживећи VSLW	Отпад који се може складиштити до распада у току ограниченог временског периода од неколико година након чега се може ослободити од регулаторне контроле у складу са одобрењем надлежног регулаторног тела ради одлагања без контроле, коришћења или испуштања у животну средину. Ова класа подразумева отпад који садржи радионуклиде са веома кратким временом полураспада обично коришћене у истраживањима и медицини.
Веома ниско активни VLLW	Отпад који не задовољава критеријуме за изузети радиоактивни отпад (EW), али такав да нема потребе за висок ниво заштите од зрачења и изолације, па је због тога погодан за одлагање у ниско укопаним одлагалиштима са ограниченом регулаторном контролом. Оваква одлагалишта могу садржати и друге врсте опасног отпада. Типичан отпад у овој класи је земља и шут са ниском специфичном активношћу. Концентрације дугоживећих радионуклида у VLLW су веома ограничене.
Ниско активни LLW	Отпад који је изнад нивоа изузећа али са ограниченом количином дугоживећих радионуклида. Овај отпад захтева заштиту од зрачења и изолацију у периоду дужем од неколико стотина година и погодан је за одлагање у инжењерским ниско укопаним одлагалиштима. Ова класа покрива широки спектар отпада. LLW може да садржи краткоживеће радионуклиде са високом специфичном активношћу, као и дугоживеће радионуклиде али са релативно ниском специфичном активношћу.
Средње активни ILW	Отпад који, због свог садржаја, посебно дугоживећих радионуклида, захтева виши ниво контејмента и изолације него што то пружа ниско укопано одлагалиште. ILW не захтева, или само у ограниченом обиму захтева, мере за одвођење топлоте током складиштења и одлагања. ILW може да садржи дугоживеће радионуклиде, посебно алфа емитере који се неће распасти до нивоа специфичне активности погодне за ниско укопана одлагалишта током времена за које је предвиђена институционална контрола. Отпад у овој категорији захтева одлагање на већим дубинама, у распону од неколико десетина до неколико стотина метара.
Високо активни HLW	Отпад са специфичном активношћу која је довољно висока да генерише значајну топлоту у току процеса радиоактивног распада или отпад који садржи значајне количине дугоживећих радионуклида који се морају посебно разматрати при планирању одлагалишта таквог отпада. Одлагање у дубока стабилна геолошка одлагалишта дубине више стотина метара је најприхватљивија опција за HLW.

Изузет радиоактивни отпад је онај отпад који садржи довољно мале концентрације радионуклида да не захтева посебне мере заштите од зрачења, без обзира да ли се одлаже у животну средину или враћа у поновну употребу. Такав отпад није, или је престао да буде, предмет регулаторне контроле, у складу са занемарљивим радијационим ризиком.

Веома краткоживећи радиоактивни отпад (енг. *Very Short-Lived Waste, VSLW*) садржи само радионуклиде са врло кратким временом полураспада и са концентрацијама активности радионуклида изнад нивоа за испуштање у животну средину. Такав отпад може се привремено чувати док активност не опадне испод нивоа за ослобађање у животну средину, омогућавајући његово испуштање у животну средину и управљање њиме као и са свим другим конвенционалним отпадом. Граница за времена полураспада доминантних радионуклида не може се одредити за општи случај, јер она зависи од планираног трајања привременог чувања и почетне активности радионуклида присутних у радиоактивном отпаду. Привремено чување се сматра одрживом опцијом за радиоактивни отпад који садржи радионуклиде са временом полураспада до 100 дана.

Значајне количине радиоактивног отпада које настају током рада и декомисије нуклеарних објеката, као и евентуалне ремедијације њихових локација, садрже радионуклиде који имају нивое активности блиске или нешто изнад нивоа за ослобађање материјала из регулаторне контроле [118 – 125]. Поред тога радиоактивни отпад који садржи природне радионуклиде који имају активности блиске или нешто изнад поменутих нивоа, може настати и приликом вађења или прераде руда и минерала. Управљање оваквим отпадом, за разлику од изузетог отпада, захтева већу пажњу са становишта заштите од зрачења, али је обим потребних заштитних мера мањи него што је то у случају управљања радиоактивним отпадом из виших категорија (ниско, средње и високо активни). Овакав радиоактивни отпад назива се веома ниско активни отпад. Довољан ниво сигурности за одлагање веома ниско активног отпада може се постићи његовим смештањем у надземна одлагалишта или насипе где се применом инжењерских баријера спречава миграција у животну средину.

Ниско активни радиоактивни отпад (енг. *Low Level Waste, LLW*) обухвата веома широк опсег активности радиоактивног отпада које се крећу од нивоа мало изнад оних код веома ниско активног радиоактивног отпада (енг. *Very Low Level Waste, VLLW*) и који практично не захтевају значајне мере заштите од зрачења и изолације од животне средине па до таквих да захтевају значајне мере заштите од зрачења и изолацију од животне средине у веома дугом периоду. У ниско активном радиоактивном отпаду могу се наћи и мале количине дугоживећих радионуклида. Ниско активни радиоактивни отпад најподесније је одлагати у одлагалишта блиска површини. Овакав начин одлагања одговарајућа је опција за ниско активни радиоактивни отпад који садржи такве количине радиоактивног материјала да су значајне мере заштите од зрачења и изолација од животне средине неопходни у периоду од неколико стотина година. Како ниско активни радиоактивни отпад може да садржи велике количине краткоживећих радионуклида, значајан део ових радионуклида ће се распасти у периоду у ком ће одлагалиште, његове инжењерске баријере и успостављена институционална контрола и даље бити присутни и ефикасно спречавати миграцију радионуклида у животну средину.

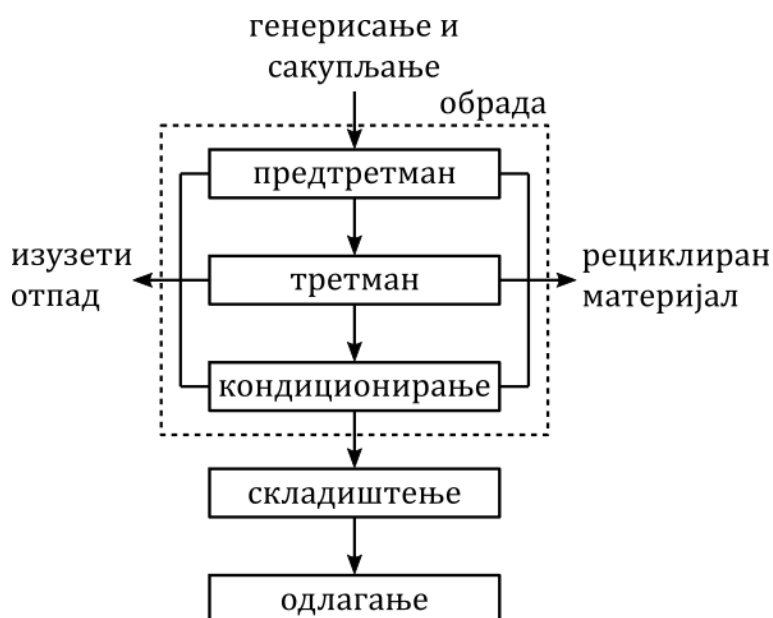
Средње активним радиоактивним отпадом (енг. *Intermediate Level Waste, ILW*) сматра се онај радиоактивни отпад који садржи дугоживеће радионуклиде у количинама које захтевају већи степен заштите од зрачења и већи ниво изолације у односу на животну средину него за ниско активни радиоактивни отпад. Генерисање топлоте у случају средње активног радиоактивног отпада није значајно, па се овакав отпад може одлагати без посебних система за одвођење топлоте. Прихватљива опција за одлагање ове класе радиоактивног отпада је одлагање у одлагалишта на дубини између неколико

десетина и неколико стотина метара. Одлагање на таквим дубинама може обезбедити дуг период изолације радиоактивног отпада под условом да су и природне баријере и инжењерске баријере одлагалишта правилно одабране.

Високо активни радиоактивни отпад (енг. *High Level Waste, HLW*) је радиоактивни отпад чија је активност довољно висока да захтева додатне специјално пројектоване заштитне баријере у циљу дугорочне заштите од спољашњег излагања и додатни систем за хлађење, имајући у виду количину генерисане топлоте. Концентрација активности радионуклида присутних у оваквом отпаду обично се креће у опсегу  $10^4 - 10^6$  ТВq/m<sup>3</sup>. Високо активни радиоактивни отпад услед радиоактивног распада генерише и значајне количине топлоте. Управо због ових карактеристика, отпад који спада у ову класу је најпожељније одлагати у дубока геолошка одлагалишта са инжењерским баријерама. Овакав отпад садржи и значајну количину алфа емитера, углавном трансуранијских елемената са веома дугим периодом полураспада, као и различите физионе продукте.

## 4.2. Фазе управљања радиоактивним отпадом

Управљање радиоактивним отпадом сачињавају различите административне и техничке активности у које се убрајају сакупљање, обрада која укључује предтретман, третман и кондиционирање, затим складиштење, транспорт и одлагање радиоактивног отпада, укључујући и испуштање ефлуената и ослобађање радиоактивног отпада у животну средину. Управљање радиоактивним отпадом подразумева и карактеризацију и припремне радове за транспорт, пријем радиоактивног отпада, увођење у базу података и издавање потврде о пријему и ускладиштењу радиоактивног отпада. Основне фазе управљања радиоактивним отпадом приказане су на слици 4.2.



Слика 4.2. Основне фазе управљања радиоактивним отпадом.

Управљање радиоактивним отпадом почиње контролом генерисања отпада на месту настанка а завршава се његовим одлагањем, при чему карактеризација, обрада, складиштење и транспорт могу бити заступљени у било којој фази управљања радиоактивним отпадом. Фазе управљања радиоактивним отпадом које претходе одлагању обухватају све активности које морају бити спроведене пре него што радиоактивни отпад буде смештен у одлагалиште. Одлагање је финални корак у

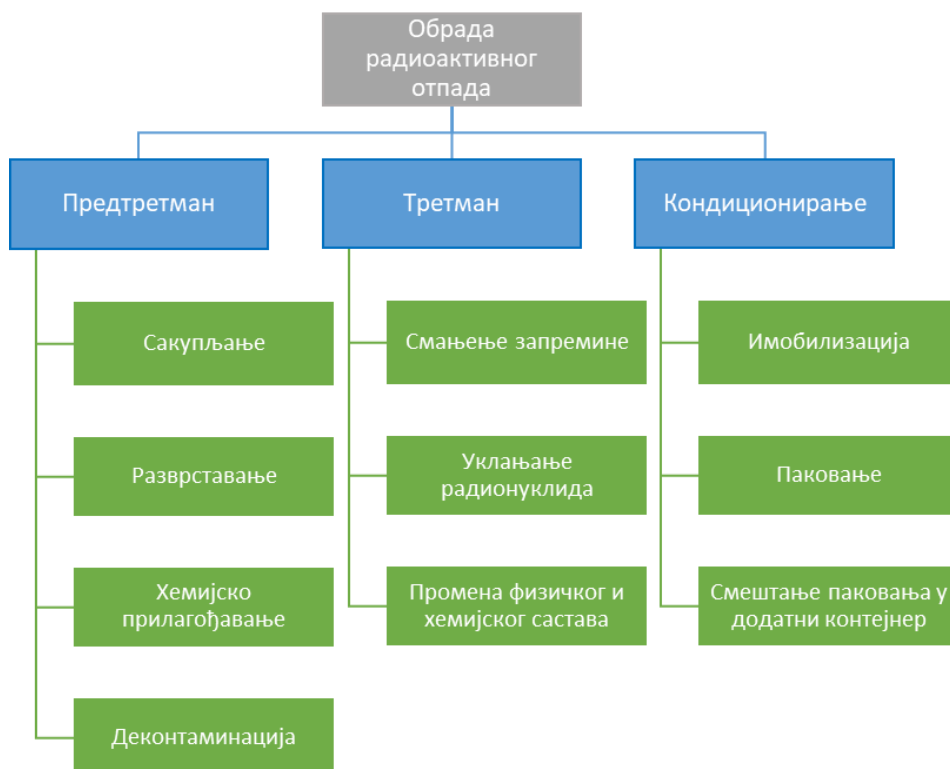
управљању радиоактивним отпадом а подразумева и испуштање ефлуената у животну средину или смештање отпада у одлагалиште, без намере да се он поново износи.

Схема на слици 4.3 указује да је одлагање пожељна опција само у случајевима када се све опције исцрпе односно када се једино одлагањем може обезбедити дугорочна сигурност. Практично, одлагање је пожељна опција само када је једина могућа.



Слика 4.3. Хијерархија управљања радиоактивним отпадом.

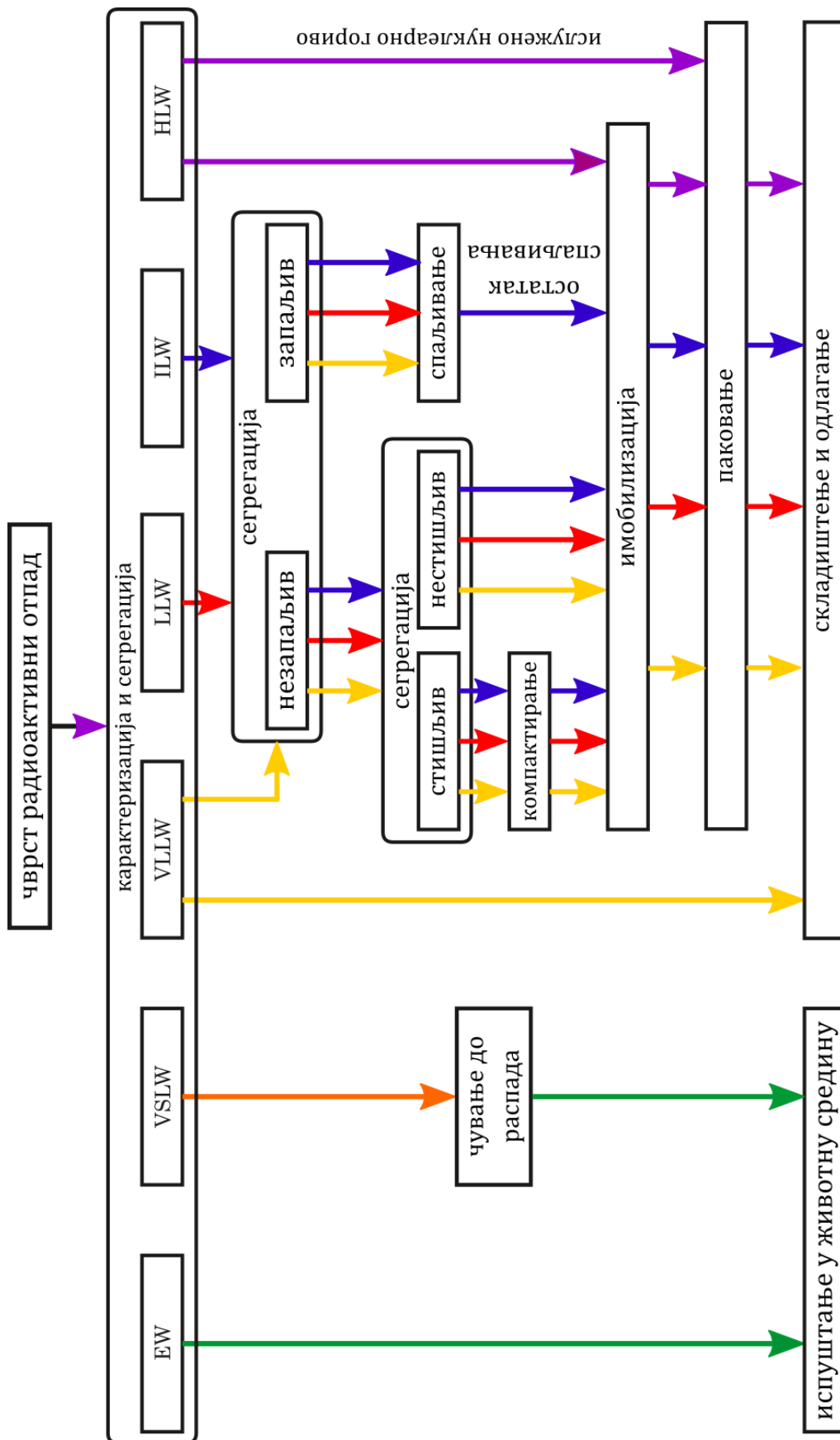
Обрада радиоактивног отпада подразумева све радње којима се мењају његове карактеристике и укључује предтретман, третман и кондиционирање радиоактивног отпада. На слици 4.4 приказане су поједине фазе обраде радиоактивног отпада.



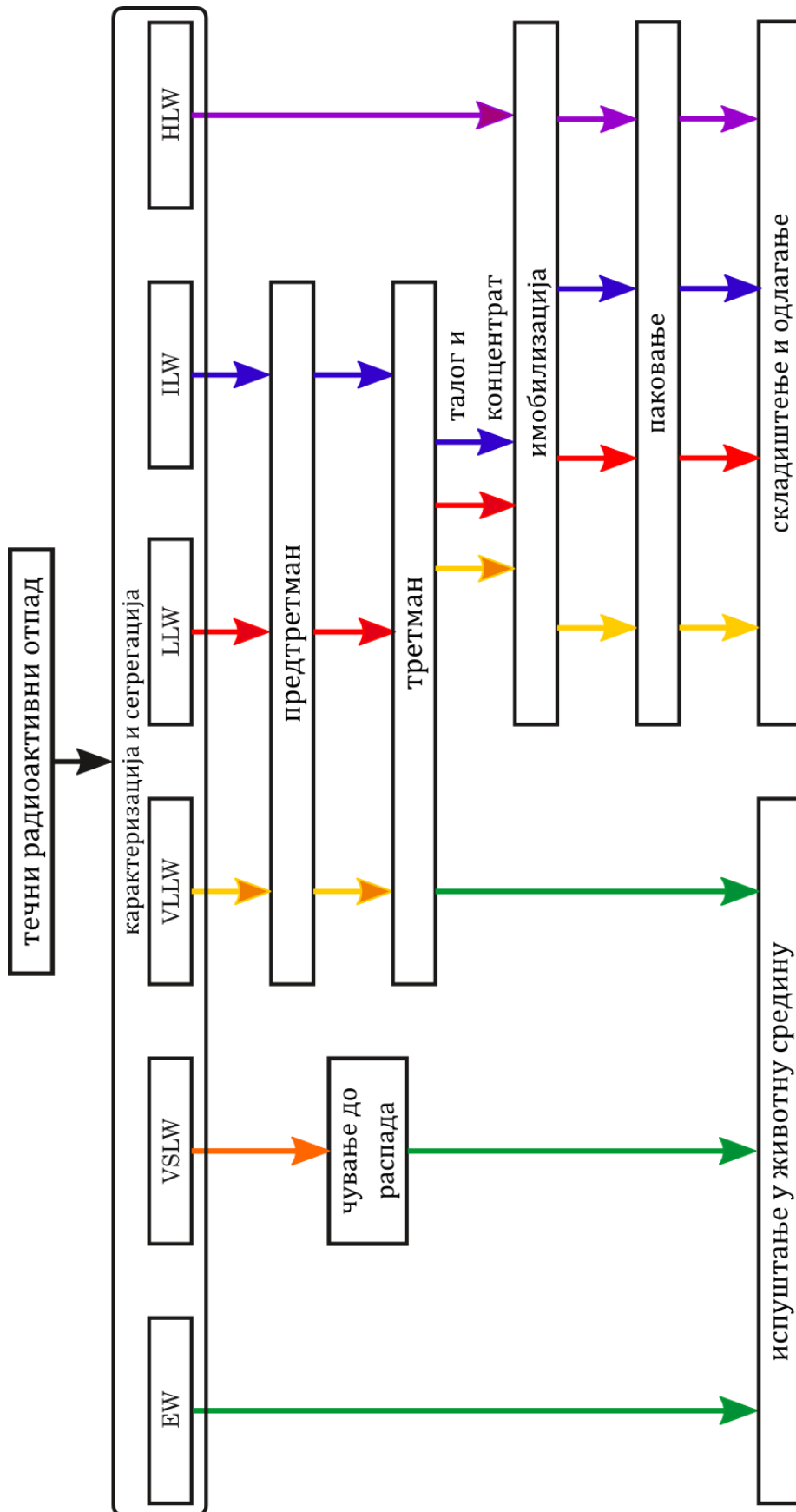
Слика 4.4. Поједине фазе обраде радиоактивног отпада.

На сликама 4.5 и 4.6 приказана је основна схема управљања чврстим и течним радиоактивним отпадом, респективно.





Слика 4.5. Опције за управљање чврстим радиоактивним отпадом.



Слика 4.6. Опције за управљање течним радиоактивним отпадом.

#### 4.2.1. Предтретман

Предтретман је почетна фаза у управљању радиоактивним отпадом и обухвата активности које се спроводе непосредно након настанка радиоактивног отпада. У ове активности спадају сакупљање, карактеризација, разврставање, хемијско прилагођавање и деконтаминација. Циљ предтретмана је да се разврстају различити токови радиоактивног отпада односно скупови радиоактивног отпада који се могу третирати на исти или сличан начин као и да се потпуно одвоји нерадиоактивни отпад и они материјали који се, са или без третмана, могу рециклирати.

Сакупљање је поступак који има за циљ паковање радиоактивног отпада у одговарајућу амбалажу у тренутку његовог генерисања.

Карактеризација радиоактивног отпада је одређивање његових физичких, хемијских и радиолошких особина. Радиолошка карактеризација радиоактивног отпада подразумева одређивање присуства појединих радионуклида у радиоактивном отпаду. Хемијска карактеризација радиоактивног отпада подразумева одређивање хемијских компоненти и хемијских особина радиоактивног отпада. Физичка карактеризација радиоактивног отпада обухвата одређивање физичког облика, чврстоће, агрегатног стања и других физичких особина радиоактивног отпада.

Разврставање или сегрегација је поступак у оквиру којег се радиоактивни отпад разврстава према свом агрегатном стању, категорији и типу. Тип радиоактивног отпада одређује се узимајући у обзир стишљивост (компресибилност), испаривост, растворљивост, запаљивост, корозивност и друге физичке, хемијске и биолошке особине, уколико је то од значаја за његов даљи третман.

Карактеристике радиоактивног отпада које могу бити узете у обзир приликом одређивања његове категорије су порекло; радиолошке карактеристике као што су карактеристике најзначајнијих радионуклида укључујући њихову активност, врсту зрачења, време полураспада као и продукте њиховог распада, затим могућност достизања критичности, генерисања топлоте и присуство површинске контаминације; физичке особине као што су физичко стање (течно, чврсто или гасовито), запремина и маса, могућност компактирања, могућност дисперзије, растворљивост, могућност мешања, садржај слободних течности; хемијске особине као што су: хемијски састав, растворљивост, потенцијална хемијска штетност, отпорност на корозију, корозивност, органски састав, запаљивост, хемијска реактивност, могућност бубрења, стварање гасова, сорпција радионуклида; биолошке особине у које спадају потенцијална биолошка штетност и биолошко нагомилавање као и остали фактори као што су количина генерисања у јединици времена и физичка распрострањеност.

Хемијско прилагођавање се врши ради прилагођавања хемијског састава радиоактивног отпада каснијем третману, кондиционирању, складиштењу, транспорту или одлагању. Циљ хемијског прилагођавања је да применом хемијских метода радиоактивни отпад постане сигурнији за даље управљање. У сврху хемијског прилагођавања врши се промена рН вредности, уклањање неких компоненти из радиоактивног отпада, додавање хемикалија ради промене понашања отпада током каснијих фаза управљања.

Деконтаминација јесте поступак уклањања или смањења нивоа контаминације, који укључује и мере отклањања непосредне опасности наступања контаминације, мере контроле даљег ширења контаминације, изолацију и безбедно уклањање извора контаминације, као и радње везане за процену и анализу ризика наступања контаминације и процену и анализу штете у животној средини услед контаминације. Контаминација је свако непланско или нежељено присуство радиоактивних супстанци на површинама или унутар чврстих материја, течности или гасова. Деконтаминацијом

се генерише секундарни радиоактивни отпад који такође захтева одговарајуће управљање.

#### 4.2.2. Третман

Третман радиоактивног отпада обухвата активности чији је циљ унапређење радијационе сигурности и економичније управљање радиоактивним отпадом. Третман подразумева измену физичких и хемијских својстава радиоактивног отпада. Основни циљеви третмана радиоактивног отпада су смањење његове запремине, уклањање радионуклида из радиоактивног отпада и промена његовог физичког и хемијског састава [126].

Третман радиоактивног отпада може се вршити у за то предвиђеним стационарним или мобилним постројењима која поред третмана радиоактивног отпада обезбеђују и сигурност процеса третмана и самог радиоактивног отпада који се третира [127].

Смањење запремине се врши у циљу ефикаснијег третмана и даље манипулације радиоактивним отпадом. Смањење запремине се најчешће врши методама компактирања (сабијања) и инсинерације (спаљивања).

Измена састава радиоактивног отпада врши се применом метода као што је преципитација растворених чврстих материја из великих запремина течног радиоактивног отпада након које се флокулацијом ситне честице из процеса преципитације групишу у веће формације.

Уклањање радионуклида из радиоактивног отпада могуће је у процесима седиментације, испаравања, филтрације или јонске измене. Резултат ових метода обраде радиоактивног отпада је концентрисање радионуклида у мањим запреминама у виду талоба или јоноизмењивачких смола.

Током третмана радиоактивног отпада долази до генерисања секундарног радиоактивног отпада, као што су контаминирани филтри, потрошене јоноизмењивачке смоле, контаминирани течности, алат и лична заштитна опрема.

Након третмана, неки материјали могу бити погодни за даљу употребу а неки могу бити ослобођени од регулаторне контроле као изузет отпад. Радиоактивни отпад који након третмана и даље садржи значајне количине радионуклида може бити додатно третиран или кондициониран, ускладиштен и потом смештен у одговарајуће одлагалиште.

##### 4.2.2.1. Методе третмана

Третман течног радиоактивног отпада има за циљ да третирано отпад раздвоји на два дела: један део у коме је сконцентрисана већина радионуклида и који је обично мале запремине и други део у којем је количина радионуклида довољно мала да омогући његово испуштање у животну средину и који је обично знатно веће запремине. Третман течног радиоактивног отпада схематски је приказан на слици 4.7. Ефикасност третмана течног радиоактивног отпада оцењује се фактором деконтаминације (енг. *Decontamination Factor, DF*) који се дефинише као однос концентрације радионуклида у течном радиоактивном отпаду пре третмана ( $A_0$ ) и концентрације радионуклида у делу запремине који је после третмана планиран за испуштање у животну средину ( $A_f$ ):

$$DF = A_0/A_f \quad (4.1)$$



Слика 4.7. Третман течног радиоактивног отпада.

Најчешће коришћене методе за третман течног радиоактивног отпада су упаравање, хемијска преципитација, сорпција и јонска измена и мембранске методе као што су електродијализа, микро-филтрација, ултра-филтрација, нано-филтрација и реверзна осмоза. У пракси се обично користи комбинација неколико наведених метода, како би се постигао најбољи укупни фактор деконтаминације [128, 129].

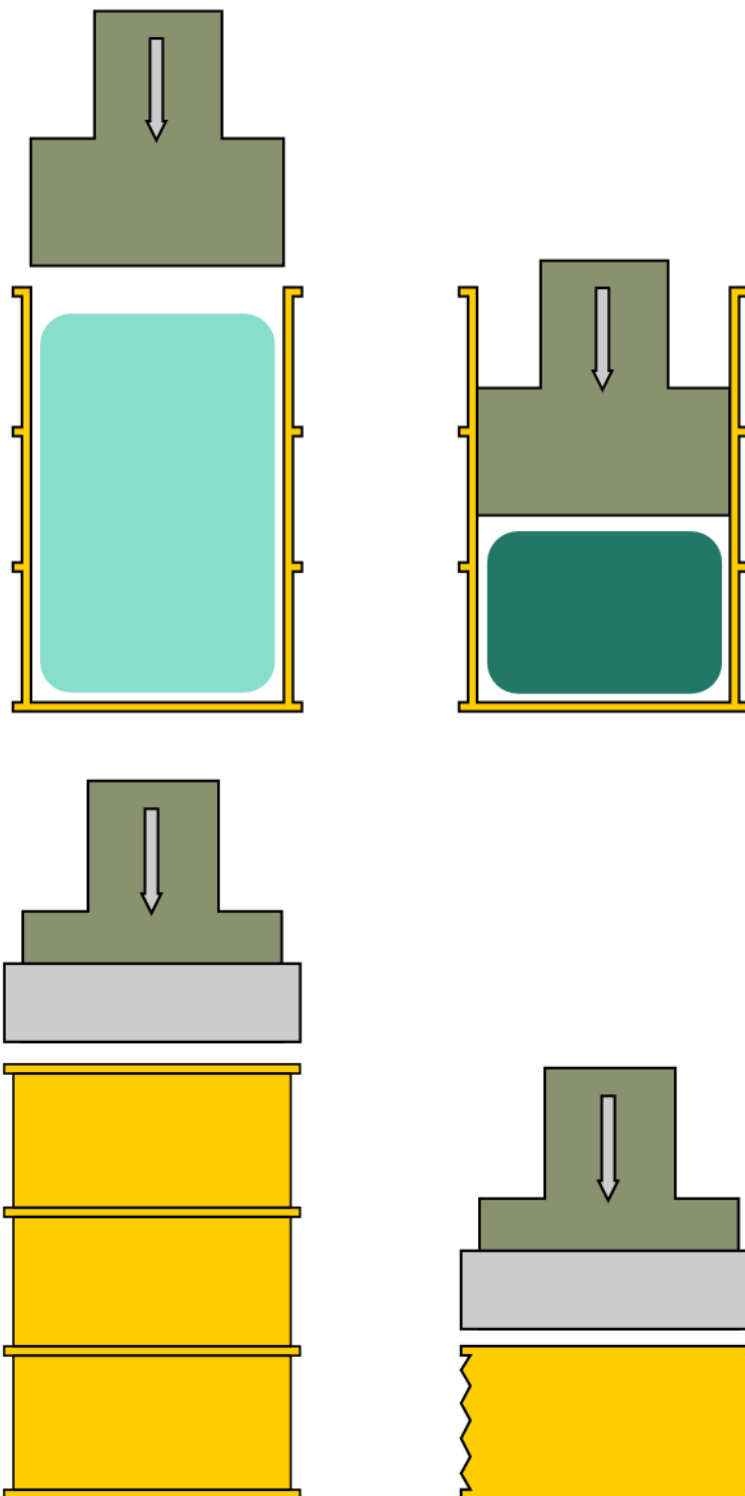
Третман чврстог радиоактивног отпада најчешће се врши са циљем смањења његове запремине. Најчешће коришћене технике за третман чврстог радиоактивног отпада су компактирање и супер-компактирање, спаљивање (инсинерација), топљење, хемијске и термохемијске методе третмана. Радиоактивни отпад сконцентрисан у мањој запремини који је резултат третмана се потом кондиционира како би се добио коначни облик погодан за транспорт, складиштење или одлагање [130 – 132].

За потребе оцене ефикасности третмана радиоактивног отпада уведен је фактор смањења запремине радиоактивног отпада (енг. *waste volume reduction factor* - *WRF*) који се дефинише као однос запремине радиоактивног отпада пре третмана  $V_0$  и запремине радиоактивног отпада након третмана  $V_f$ :

$$WRF = \frac{V_0}{V_f} \quad (4.2)$$

Што је поменути фактор смањења запремине радиоактивног отпада већи то је процес третмана ефикаснији. Са друге стране, смањење запремине радиоактивног отпада доводи до повећања концентрације радионуклида у преосталој запремини што може утицати на повећање радијационог ризика који са собом носи даље управљање овим радиоактивним отпадом.

Компактирање је смањење запремине радиоактивног отпада применом високог притиска у специјалним пресама – компакторима или суперкомпакторима. Ова метода смањења запремине може бити примењена искључиво на стишљиве материјале као што су папир, стакло или пластика, заштитна одећа и тканине, дрво, алуминијум и други метали. Компактирање и суперкомпактирање приказани су на слици 4.8.



Слика 4.8. Компактирање (горе) и суперкомпактирање (доле) буради са радиоактивним отпадом.

Спаљивање или инсинерација је термичка метода третмана чврстог радиоактивног отпада заснована на принципу сагоревања запаљивих делова отпада којом се смањује његова запремина. Секундарни радиоактивни отпад који настаје након инсинерације састоји се од пепела и контаминираних филтера и у којима су концентрисане радиоактивне материје. Овај радиоактивни отпад се налази у чврстом стању и може бити додатно третиран а потом и ускладиштен и одложен. Схематски приказ спаљивања радиоактивног отпада дат је на слици 4.9.



Слика 4.9. Схематски приказ спаљивања радиоактивног отпада.

Хемијско разлагање представља разградњу органских материја у киселинама при чему се избегавају високе температуре али се постиже мали фактор смањења запремине отпада. У хемијске и термохемијске методе третмана чврстог радиоактивног отпада спадају хемијско разлагање, влажна оксидација, оксидација растопљеним солима и термохемијско разлагање. Влажна оксидација је хемијска метода третмана радиоактивног отпада којом се органске материје раздвајају на угљен диоксид и воду. Оксидација растопљеним солима је термални процес без пламена код ког долази до оксидације органских састојака отпада мешањем отпада са растопљеном соли, типично на температурама између 500 °C и 950 °C. Овим поступком стварају се угљен диоксид, азот и вода. Термохемијско разлагање је метода код које се спаљивање отпада врши коришћењем прашкастих металних горива чији је састав одређен тако да, узимајући у обзир хемијски састав отпада, обезбеди и потпуно разлагање органских материја у отпаду као и да задржи опасне радиоактивне и хемијске материје у пепелу и шљаци који настају као резултат третмана. Ова метода користи се за обраду искоришћених јоноизмењивачких смола, мешовитог радиоактивног отпада који поред радиоактивних садржи и друге штетне материје, полимерног отпада и отпада који садржи хлор (нпр. PVC) или биолошке компоненте који се тешко спаљују у конвенционалним инсинераторима.

Гасовити радиоактивни отпад се сакупља уз помоћ вентилационог система постројења и третира филтрирањем. Филтери који на овај начин у себи концентришу радионуклиде постају секундарни радиоактивни отпад и морају се додатно третирати пре складиштења или одлагања.

Методе дељења и трансмутације, иако још у фази развоја, представљају опције за смањење инвентара дугоживећих и радиотоксичних радионуклида. Проблем шире примене ових метода представља и чињеница да се ове две методе могу применити само на ограничен број радионуклида. Дељење је метода третмана радиоактивног отпада заснована на одвајању дугоживећих радионуклида из отпада који се третира, обично хемијским средствима. Трансмутација је метода заснована на трансформацији дугоживећих и/или радиотоксичних радионуклида у краткоживеће или стабилне радионуклиде у процесу нуклеарних реакција у реакторима или уз помоћ акцелератора наелектрисаних честица.

Често се неколико техника третмана радиоактивног отпада користе у комбинацији како би се обезбедио ефикасан третман радиоактивног отпада.

#### 4.2.3. Кондиционирање

Кондиционирање радиоактивног отпада представља трансформацију отпада у облик погодан за даљу манипулацију, транспорт, складиштење и одлагање. Најчешће методе коришћене за кондиционирање радиоактивног отпада јесу имобилизација и паковање отпада у одговарајуће контејнере или, уколико је то потребно, стављање целих паковања радиоактивног отпада у додатне контејнере (енг. *overpack*).

Имобилизација радиоактивног отпада је поступак у оквиру ког се радиоактивни отпад солидификује, смешта у одговарајућу чврсту матрицу или енкапсулира. Овим поступком смањује се ризик од ширења радионуклида током руковања, транспорта, складиштења и одлагања радиоактивног отпада. Технике имобилизације које се примењују обично укључују солидификацију у цемент, битумен, полимерну или геополимерну матрицу или стакло, заливање чврстог радиоактивног отпада цементним материјалом, витрификацију течног радиоактивног отпада у стакло или његово смештање у металну матрицу. Имобилисан радиоактивни отпад се потом, за потребе манипулације, складиштења и транспорта, пакује у одговарајуће контејнере [133 – 138]. На слици 4.10 приказан је чврст, метални радиоактивни отпад уграђен у цементну матрицу.



Слика 4.10. Чврст, метални радиоактивни отпад уграђен у цементну матрицу. [139]

Хомогеност отпада који се смешта у контејнер обезбеђује се мешањем хомогених облика отпада или употребом течних имобилизатора, за хетерогене облике отпада. Ако се користи мешање, то се може постићи употребом независне спољне мешалице, чији се садржај потом пресипа у контејнер, или коришћењем спољне мешалице која се спушта у



буре или мешалицом уграђеном у контејнер при чему она остаје уграђена у енкапсулирани отпад.

Паковање радиоактивног отпада у одговарајуће контејнере спроводи се у циљу сигурног транспорта, складиштења и одлагања радиоактивног отпада његовим смештањем у контејнере који испуњавају одређене услове. Изглед и карактеристике контејнера зависе од карактеристика радиоактивног отпада који се пакује као и од тога да ли је контејнер намењен за транспорт, складиштење или одлагање.

Стављање једног или више паковања радиоактивног отпада у додатне контејнере врши се са циљем сигурног транспорта, складиштења и одлагања радиоактивног отпада. Овакав концепт је посебно нашао примену у случају када је потребно отпад додатно упакovati како би испунио критеријуме у погледу јачине дозе које је неопходно испунити за транспорт, пријем у складиште или одлагалиште.

#### **4.2.4. Кондиционирање затворених извора јонизујућег зрачења**

Управљање затвореним изворима јонизујућег зрачења који су проглашени радиоактивним отпадом подразумева њихово паковање у одговарајуће контејнере или препакивање из њихових оригиналних кућишта у посебне капсуле ради лакшег смештања у контејнере за складиштење или одлагање. Критеријуми у погледу кондиционирања оваквог отпада не разликују се од захтева који се постављају у погледу кондиционирања других типова отпада. Посебан ризик при кондиционирању затворених извора јонизујућег зрачења представља чињеница да је активност радионуклида сконцентрисана у релативно малој запремини – самом извору што поставља додатне захтеве у погледу заштите од зрачења током кондиционирања затворених извора јонизујућег зрачења.

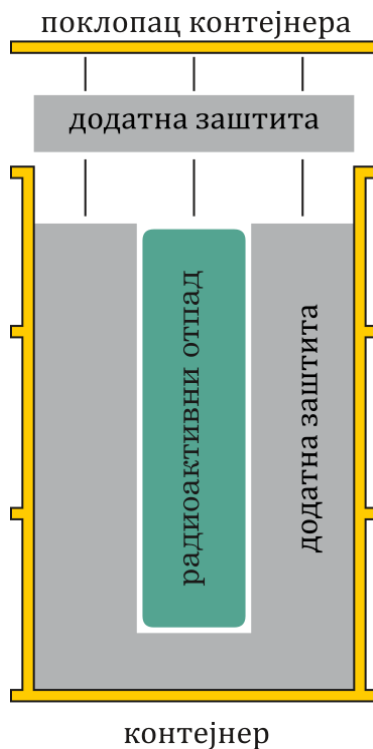
Кондиционирање затворених извора јонизујућег зрачења најчешће се обавља смештањем извора у одговарајући контејнер или препакивањем извора у наменску капсулу [140].

Смештање извора у одговарајући контејнер најчешће се изводи тако што се извор у свом оригиналном кућишту, без икаквих интервенција, смешта у стандардни контејнер за складиштење или одлагање. У контејнер мора претходно бити стављена испуна која има функцију у погледу заштите од зрачења и смештање радиоактивног материјала у централни део контејнера. Дебљина испуне у контејнеру зависи од активности извора а одређује се у складу са критеријумима за пријем контејнера у складиште и одлагалиште.

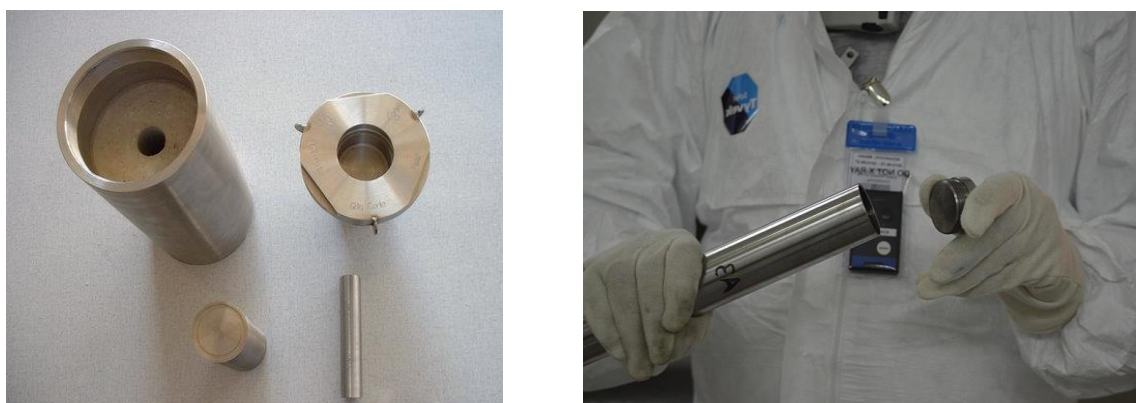
Структура контејнера је обично таква да се испуна налази на унутрашњој површини контејнера, при чему се извори зрачења уносе кроз наменски остављен отвор у централном делу контејнера. Када је капацитет контејнера попуњен, на исти се поставља поклопац од идентичног материјала као што је испуна или другог компатибилног материјала и поклопац самог контејнера. Пример оваквог контејнера дат је на слици 4.11.

Препакивање извора у наменску капсулу подразумева премештање извора из његовог оригиналног кућишта у капсулу од нерђајућег челика, смештање капсуле у контејнер се потом смешта у одговарајући стандардни контејнер за складиштење или одлагање. Стандардни контејнери који се користе у оваквим случајевима обично су додатно обложени у сврху заштите од зрачења и позиционирања капсуле. У једну капсулу може се сместити и више извора уколико то дозвољава дозиметријски критеријум за његово даље управљање. Након смештања извора у капсулу и њеног заваривања, капсула се подвргава тестирању у смислу провере заптивености и

интегритета. Пример капсуле и контејнера од нерђајућег челика за радиоактивне изворе приказан је на слици 4.12.



Слика 4.11. Контејнер са додатном заштитом.



Слика 4.12. Пример капсуле и контејнера од нерђајућег челика за радиоактивне изворе.

#### 4.2.5. Складиштење радиоактивног отпада

Складиштење радиоактивног отпада представља поступак привременог смештања радиоактивног отпада у наменски објекат – складиште на одређени временски период и то на такав начин да су испуњене све мере радијационе и нуклеарне сигурности и безбедности ускладиштеног отпада [139].

Мере радијационе и нуклеарне сигурности и безбедности ускладиштеног отпада које складиште мора да обезбеди подразумевају задржавање свих радионуклида унутар

складишта, односно спречавање њиховог ширења изван складишта; изолацију ускладиштеног радиоактивног отпада од нежељених спољних утицаја; стални мониторинг радиоактивности у животној средини у околини складишта као и спречавање ванредних догађаја који могу довести до угрожавања сигурности ускладиштеног отпада и мере за ублажавање последица оваквих догађаја ако до њих ипак дође [113, 141].

Складиштење радиоактивног отпада може бити засновано на два различита концепта:

- уколико је радиоактивни отпад смештен у контејнере који обезбеђују довољан ниво сигурности односно адекватну структурну и радиолошку заштиту, онда само складиште може бити пројектовано и изграђено као обичан индустријски или монтажни објекат јер нема примарну функцију у смислу заштите од зрачења;
- уколико радиоактивни отпад није кондициониран или су контејнери у које је смештен такви да не пружају довољан ниво сигурности ускладиштеног отпада (нпр. неадекватна заштита или нарушена херметичност), онда складиште мора бити пројектовано тако да обезбеди адекватан ниво сигурности.

Ово значи да уколико паковање радиоактивног отпада не пружа довољну заштиту од зрачења, овакав радиоактивни отпад треба сместити у складиште пројектовано тако да се инжењерским баријерама омогућава довољан ниво заштите. Са друге стране уколико паковање, односно контејнер у који је радиоактивни отпад смештен, пружа одговарајући степен заштите од зрачења онда објекат складишта може бити и једноставније конструкције. У одређеним случајевима контејнери се могу складиштити и на отвореном.

Радиоактивни отпад се може сместити у складиште пре третмана, одлагања или ослобађања од регулаторне контроле. Временски период складиштења радиоактивног отпада креће се од веома кратког периода, реда неколико дана, док се не сакупи довољна количина за његов третман или одлагање, па до веома дугог периода, од неколико деценија, обично у случајевима када питање одлагања радиоактивног отпада није решено.

Пре складиштења, неопходно је извршити сегрегацију (раздвајање) радиоактивног отпада и ислужених затворених извора зрачења према типу, радиолошким, физичким и хемијским својствима, како би се отпад без додатне сегрегације касније могао упутити на даљи третман, пренети у друго складиште, одложити или ослободити од регулаторне контроле.

#### 4.2.5.1. Елементи складишта радиоактивног отпада

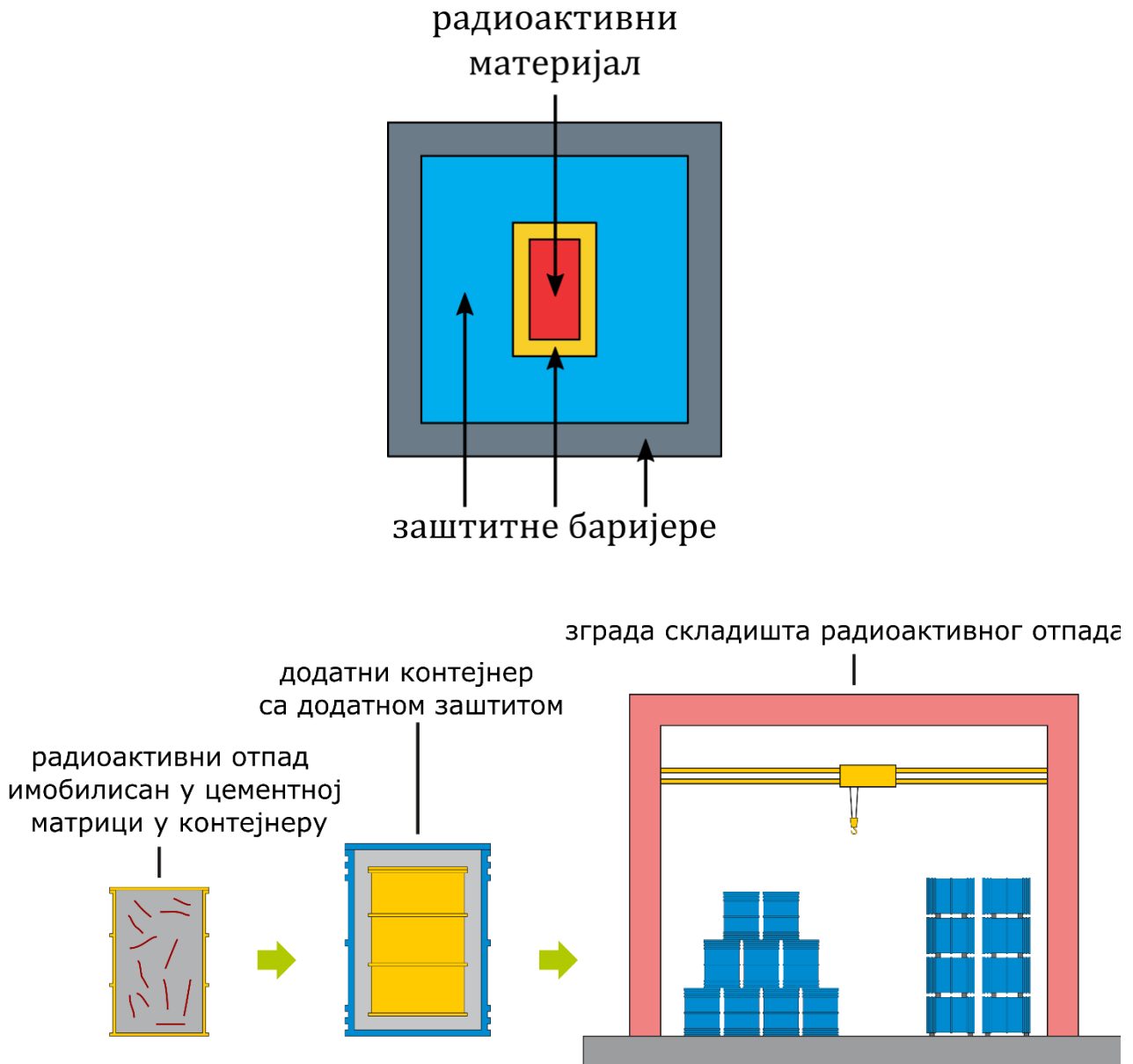
Складиштење радиоактивног отпада сачињавају различити административни, технички и инфраструктурни елементи као што су облик радиоактивног отпада, контејнери, структура објекта складишта и његови инфраструктурни системи, опрема за манипулацију радиоактивним отпадом, мере заштите од зрачења и режим инспекције и одржавања. Различити концепти складишта захтевају и различите комбинације ових параметара, посебно узимајући у обзир и еволуцију складишта током његовог рада.

Основни елементи складишта радиоактивног отпада су:

- Паковање радиоактивног отпада које се састоји од облика у којем се налази радиоактивни отпад и контејнера у који је отпад смештен. Облик у ком је радиоактивни отпад (енг. *wasteform*) јесте отпад у његовом физичком и хемијском облику након третмана и/или кондиционирања а пре паковања у одговарајући контејнер;

- Складиште радиоактивног отпада које укључује структуре, системе и компоненте објекта складишта, опрему за манипулацију радиоактивним отпадом, системе и опрему за заштиту од зрачења и остале сигурносне системе.

Основни елементи складиштења су међусобно повезани и не могу се посматрати независно. Наведени елементи су комплементарни и заједно формирају систем вишеструких баријера приказан на слици 4.13, којим се постиже потпуна сигурност ускладиштеног радиоактивног отпада. Заштитне баријере пројектују се тако да у случају отказа једне од њих њену улогу преузима друга баријера, остављајући тиме довољно времена за деловање и санацију или замену баријере која више не пружа адекватну заштиту.



Слика 4.13. Концепт вишеструких баријера.

Захтеви који се постављају пред наведене елементе складиштења су:

- Задржавање радионуклида унутар дефинисане запремине, односно контејнера и објекта складишта;
- Спречавање појаве високе јачине дозе јонизујућег зрачења на спољној површини контејнера и/или складишта;

- Адекватна заштита од спољашњих природних и људских утицаја, као што су атмосферских утицаја, природне непогоде или пожар;
- Довољна чврстина контејнера, издржљивост и друге особине (херметичност, отпорност на корозију) а које су од значаја за сигурно и безбедно руковање и складиштење радиоактивног отпада;
- Могућност изношења отпада на крају предвиђеног периода складиштења;
- Хемијска стабилност отпада током периода складиштења;
- Одвођење гасовитих ефлуената, контрола амбијенталних услова и контрола корозије;
- Одвођење топлоте коју генерише радиоактивни отпад;
- Превенција биолошких ризика;
- Контрола упакованог отпада и превенција цурења радионуклида.

#### 4.2.5.2. Фаза складиштења радиоактивног отпада

Основне фазе складиштења радиоактивног отпада су:

- Пријем радиоактивног отпада у складиште;
- Складиштење и инспекција ускладиштеног отпада;
- Изношење радиоактивног отпада из складишта и његова припрема за наредну фазу управљања.

Складиштењу радиоактивног отпада претходи пријем који подразумева поређење карактеристика радиоактивног отпада са критеријумима за пријем у складиште, неопходне анализе и карактеризацију радиоактивног отпада уколико је то потребно, одређивање тачне позиције отпада унутар складишта, постављање контејнера на дефинисану позицију и уношење података о радиоактивном отпаду у евиденцију.

Критеријуми за пријем радиоактивног отпада представљају скуп квалитативних и квантитативних особина радиоактивног отпада које треба да буду испуњене да би отпад могао сигурно и безбедно да се смести у складиште а да при том својим карактеристикама не угрози сигурност складишта. Критеријумима за пријем радиоактивног отпада дефинишу се ограничења по питању његових радиолошких, механичких, физичких, хемијских и биолошких својстава.

Активности које се спроводе током периода складиштења радиоактивног отпада у складишту укључују постављање контејнера на одговарајућу складишну позицију унутар складишта, заштиту од зрачења, мониторинг радиоактивности у животној средини у околини складишта, инспекцију стања паковања радиоактивног отпада и инспекцију опреме, компоненти и система складишта, одржавање складишта и обележавање и евидентирање паковања радиоактивног отпада.

Сигурност ускладиштеног радиоактивног отпада у великој мери зависи и од начина на који су контејнери сложени у складишту. Ово посебно долази до изражаја у случају сеизмичких догађаја који могу довести до пада контејнера. Приликом складиштења контејнери могу бити слагани на полице или палете које преузимају њихову масу али и једни на друге при чему масу горњих редова преузимају контејнери у нижим редовима. Правило је да се у таквим случајевима контејнери слажу тако да се један контејер ослања на више контејнера у доњем реду чиме се постиже боља стабилност. Контејнери се у складишту могу слагати на већи број начина а неки од начина слагања контејнера приликом складиштења дати су на слици 4.14.



Слика 4.14. Најчешћи начини слагања различитих типова контејнера са радиоактивним отпадом у складишту.

#### 4.2.5.3. Контејнери за складиштење радиоактивног отпада

Контејнери за складиштење радиоактивног отпада морају бити пројектовани и произведени на такав начин да спрече миграцију радиоактивног материјала из контејнера током свих очекиваних радних стања у периоду током којег је отпад ускладиштен, укључујући и одступања од предвиђеног рада и предвиђене ванредне догађаје. Карактеристике контејнера за складиштење радиоактивног отпада треба да одговарају типу отпада и очекиваним концентрацијама радионуклида.

При пројектовању и изради контејнера за складиштење радиоактивног отпада у обзир треба узети посебне карактеристике радиоактивног отпада и повезаних активности као што су:

- Хемијска компатибилност материјала контејнера са радиоактивним отпадом за чије се складиштење планира коришћење контејнера. Посебну пажњу треба обратити на могућност појаве корозије или генерисања гасова услед хемијских и електрохемијских реакција насталих интеракцијом контејнера са отпадом. У обзир треба узети и хемијску разградњу отпада као и његову хемијску реактивност;

- Запаљивост отпада односно потенцијална опасност од пожара при чему у обзир треба узети и могућност стварања запаљивих гасова хемијском разградњом отпада;
- Компатибилност отпада примењеној методи обраде и кондиционирања пре складиштења. Компактирани отпад може, у неким случајевима, почети да се враћа у пређашње стање. Поред тога, компактирање различитих материјала у истом контејнеру може довести хемијски реактивне материјале у блиски контакт, што би могло довести до појачане корозије, спонтаног сагоревања или других нежељених ефеката.

Приликом пројектовања и израде контејнера за складиштење у обзир треба узети и услове унутар складишта предвиђене пројектом објекта складишта као што су, температура и влажност ваздуха. Складиштење контејнера на местима где постоје или се могу очекивати негативни климатски утицаји треба избегавати. Контејнери морају бити отпорни на корозију најмање током планираног периода складиштења.


Течни радиоактивни отпад потенцијално садржи и чврсте материје које се могу наталожити на дну контејнера или базена у ком се течни радиоактивни отпад складишти. У појединим случајевима, неопходно је спречити таложење чврстих материја на дну, посебно у случају спречавања критичности или концентрације активности и велике јачине дозе на дну контејнера. Контејнери у којима се складиште овакве врсте отпада зато имају уграђен систем за мешање отпада.

Код неких врста радиоактивног отпада могуће је генерисање гасова који могу бити радиоактивни или неактивни. Код оваквих контејнера неопходно је предвидети систем вентилације у циљу превенције накупљања гасова унутар контејнера које може довести до повећаног притиска и оштећења контејнера.

Хемијска компатибилност контејнера са ускладиштеним отпадом је од великог значаја за дугорочну сигурност ускладиштеног отпада. Један од примера хемијске некомпатибилности је складиштење алуминијумског радиоактивног отпада у контејнер са бетонском испуном. У оваквој комбинацији долази до реакције алуминијума са базним једињењима присутним у бетонским и цементним материјалима, а затим до ослобађања водоника који повећава притисак у контејнеру и доводи до његовог пуцања или отварања.

У табели 4.4 дати су примери контејнера за складиштење ниско и средње активног отпада који се најчешће користе.

Табела 4.4. Примери контејнера за складиштење ниско и средње активног отпада.

Тип контејнера	Опис и намена
<p data-bbox="167 1512 550 1545">Стандардно метално буре</p> 	<p data-bbox="678 1512 1428 2027">Метална, комерцијално доступна бурад стандардних димензија, најчешће запремине приближно 200 l, 320 l, 400 l и 500 l су најчешће коришћени тип контејнера. Овакви контејнери најчешће се користе за складиштење чврстог средње и ниско активног радиоактивног отпада а начињени су и од нерђајућег челика. Стишљиви радиоактивни отпад често се компактира заједно са буретом. Бурад од 320 l и 400 l се често користи и као додатни контејнер за компактирану бурад од 200 l или бурад са високом јачином дозе. У металну бурад често се додаје испуна у циљу позиционирања отпада и боље заштите од зрачења.</p>

<p>Цилиндрични метални контејнер</p>	<p>Овакви контејнери израђују се са различитим пречницима и запреминама. У њих се може складиштити чврсти и солидификовани течни ниско и средње активни отпад. Контејнери мањих димензија примену су нашли као примарни контејнери за складиштење радиоактивног отпада који се потом могу сместити унутар стандардног буретаали и као додатни контејнери који пружају додатне баријере. Као и друге врсте контејнера и у њих је могуће додати испуну.</p>
<p>Правоугаони метални контејнер</p> 	<p>Овакви контејнери израђују се у различитим димензијама и запреминама. У њих се може складиштити чврсти као и солидификовани течни ниско и средње активни отпад. Овакви контејнери често се користе и као додатни контејнери са повећаваним степеном заштите од зрачења. Као и у металну бурад, и у овакве контејнере се може додати испуна.</p>
<p>Стандардни ISO транспортни контејнер</p> 	<p>Стандардни ISO транспортни контејнери (чест назив је и Интермодал контејнери) су комерцијално доступни у више стандардних димензија. Димензије основног контејнера су стандардизоване а производе се и контејери других димензија од којих су најчешћи контејнери дужине једнаке половини дужине основног контејнера (енг. <i>Half Length ISO – HLISO</i>), контејнери висине једнаке половини висине основног контејнера (енг. <i>Half Height ISO – HHISO</i>) и контејнери и висине и дужине једнаких половини висине и дужине основног контејнера (енг. <i>Half Length Half Height ISO – HL-HHISO</i>). Овакви контејнери користе се најчешће за отпад у расутом стању и отпад велике запремине али и као додатни контејнер када је потребна истовремена манипулација са више мањих контејнера за потребе транспорта или складиштења. И овом типу се може додати испуна. Димензије основног ISO контејнера су 6,058m × 2,438m × 2,591m.</p>



<p>Цилиндрични бетонски контејнер</p> 	<p>Овакви контејнери могу бити различитих пречника и запремине. Бетонски зидови контејнера служе и као заштита од зрачења. Овакви контејнери се обично користе за складиштење средње активног радиоактивног отпада као и за додатни контејнер у који се постављају други типови контејнера.</p>
<p>Правоугаони бетонски контејнер</p> 	<p>Овакви контејнери израђују се у различитим димензијама и запреминама а бетонски зидови контејнера служе и као заштита од зрачења. Овакви контејнери обично се користе за складиштење средње активног радиоактивног отпада као и за додатни контејнер у који се стављају други типови контејнера.</p>
<p>Пластични контејнер</p> 	<p>Пластични контејнери израђују се у различитим димензијама и запреминама а могу бити и цилиндричног и правоугаоног облика. Често се користе као унутрашњи контејнери или баријере унутар већих контејнера. Избор су за складиштење течног радиоактивног отпада. Контејнери израђени од полиетилена високе густине (HDPE) користе се и за складиштење средње активног радиоактивног отпада а одликују их и веома поуздани системи затварања.</p>
<p>Танкови и базени</p>	<p>Израђују се у различитим димензијама према потреби и обично су обложени нерђајућим челиком. Користе се за складиштење течног и влажног радиоактивног отпада и могу бити покретни или фиксирани у објекту.</p>

Манипулација контејнерима врши се помоћу опреме за манипулацију теретом. Примена одређене класе опреме зависи од типа контејнера, његових димензија и масе као и од тачног места и висине складиштења. Опрема за манипулацију контејнера обично укључује транспортно средство у виду виљушкарa или фиксираног или покретног крана и одговарајућу опрему за хватање контејнера.

#### 4.2.5.4. Постројења за складиштење радиоактивног отпада

Постројење за складиштење радиоактивног отпада обезбеђује одговарајуће мере заштите од зрачења, спречава ширење радионуклида и омогућава изолацију радиоактивног отпада до његовог одлагања или ослобађања од регулаторне контроле. Оваква постројења пројектована су тако да су вероватноћа нежељених догађаја и њихове последице минималне. У зависности од намене и предвиђеног времена складиштења складишта се могу поделити на складишта у којима се радиоактивни отпад чува до сакупљања довољних количина за третман или пребацивање у друго складиште, распада радионуклида, одлагања, смањења температуре отпада али и дугорочно уколико услови за његово одлагање нису обезбеђени.

Складишта у којима се радиоактивни отпад складишти до распада радионуклида посебно су значајна за ослобађање од регулаторне контроле радиоактивног отпада који садржи краткоживеће радиоизотопе. Период складиштења радиоактивног отпада у оваквим складиштима мора бити довољно дуг да смањи почетну активност до нивоа испод нивоа изузећа.

У складиштима у којима се радиоактивни отпад складишти до одлагања складишти се и третиран и кондициониран али и необрађен радиоактивни отпад који испуњава услове за одлагање.

Складишта у којима се радиоактивни отпад складишти до смањења његове температуре служе да омогуће смањење температуре радиоактивног отпада пре његовог третмана или одлагања.

Дугорочно складиштење радиоактивног отпада односи се на ситуације у којима се отпад чува у периодима дужим од периода првобитно пројектованог животног века контејнера и складишта. Ово је обично ситуација у случајевима када одлагалиште радиоактивног отпада није доступно. Додатни технички услови које постројење за дугорочно складиштење радиоактивног отпада треба да испуни односе се на објекат, системе и опрему који морају бити робусни и добро одржавани при чему треба користити пасивне мере сигурности у мери у којој је то могуће. Од великог значаја је да подаци о ускладиштеном радиоактивном отпаду буду чувани у таквом формату и на такав начин да они буду доступни, читљиви и разумљиви и након дугог временског периода складиштења.

Дугорочно складиштење може бити планирано при чему се при пројектовању и изградњи таквог складишта у обзир узимају услови за дугорочно складиштење или се постојећи објекат може прилагодити дугорочном складиштењу.

При планирању дугорочног складиштења односно у случају продужења времена складиштења у постојећем складишту, посебно треба обратити пажњу и на потенцијалне промене својстава самог радиоактивног отпада које у дугом временском периоду могу негативно утицати на сигурност складиштења као што су:

- стварање гаса унутар контејнера радиоактивног отпада услед ког долази до повећаног натпритиска у контејнеру;
- генерисање запаљивих или корозивних супстанци;
- корозија металних структура;
- деградација радиоактивног отпада.

У погледу конструкције, изградња постројења за складиштење радиоактивног отпада могућа је у неколико варијанти. Избор типа постројења складишта зависи од карактеристика радиоактивног отпада, његове количине, доступне инфраструктуре, општег нивоа сигурносне културе и финансијских могућности. У табели 4.5 наведени су најчешћи типови постројења за складиштење радиоактивног отпада.

Табела 4.5. Типови постројења за складиштење радиоактивног отпада.

Тип постројења	Опис и намена
Укопани и подземни објекти	Укопани и подземни цилиндрични или правоугаони објекти могу се користити као постројења за складиштење ниско, средње и високо активног радиоактивног отпада. Отпад се у ова постројења смешта упакован у одговарајуће контејнере или у расутом стању. Овакви објекти се граде од или облажу са водонепропусним слојевима уколико то околно земљиште захтева а околно земљиште пружа додатни вид заштите од зрачења. Оваква постројења могу се састојати из више сегмената (ћелија, модула, јединица). Иако својом конструкцијом подсећају на одређене типове одлагалишта, отпад смештен у њих не мора испуњавати услове за одлагање јер се његово изношење планира.
Насипи	Иако нису постројења у пуном смислу те речи, овакве грађевине се због својих инжењерских баријера, у смислу управљања радиоактивним отпадом могу сматрати постројењима. Водонепропусни слојеви постављају се и испод и изнад отпада а цела структура се потом насипа земљом која служи и као додатна заштита од зрачења. Ови једноставни објекти служе за складиштење веома ниско и ниско активног отпада у расутом стању (земља, шут, бетон). Иако они својом конструкцијом подсећају на одлагалишта веома ниско активног радиоактивног отпада, важно је напоменути да је сврха смештања отпада у овакво складиште његово привремено чување док се не стекну услови за његову обраду.
Базен са водом	Базени са водом обично су повезани са реакторима и постројењима за прераду ислуженог нуклеарног горива. У њима се обично складишти ислужено нуклеарно гориво, отпад који емитује значајну количину топлоте или доводи до појаве високе јачине дозе. Вода у базенима служи за заштиту од зрачења.
Просторија или објекат без додатне заштите од зрачења	Просторија унутар објекта, складишни објекат чија је намена промењена у постројење за складиштење радиоактивног отпада или објекат без додатне заштите од зрачења могу се користити за складиштење веома ниско активног и ниско активног отпада а у оваква постројења је могуће складиштити и средње и високо активни отпад када је он претходно смештен у контејнере који омогућавају додатну заштиту. Оваква постројења граде се у различитим димензијама зависно од количине радиоактивног отпада која је планирана да се у њих ускладишти а могу се градити и у форми модуларних складишта где је могуће додавати додатне јединице када се неке од њих попуне. Иако зидови могу бити грађени од лакших материјала само са циљем спречавања изласка радионуклида из постројења, његов под мора бити довољно чврст да издржи притисак контејнера са радиоактивним отпадом и опреме неопходне за манипулацију њима.
Просторија или објекат са додатном	Просторија или објекат посебно пројектовани и изграђени са додатним заштитним баријерама у виду зидова веће дебљине или додатних преграда унутар објекта могу се користити као постројења за складиштење средње и високо активног отпада.

заштитом од зрачења	Као и објекти без додатне заштите и ови објекти граде се у већем броју димензија зависно од количине радиоактивног отпада која је планирана да се у њих ускладишти а могу се градити и у форми модуларних складишта где је могуће додавати додатне складишне јединице.
Складишни контејнери	Складишни контејнери се као засебна, самостојећа, постројења често користе за складиштење ислуженог нуклеарног горива или другог високо активног отпада који генерише топлоту. Оваквом решењу често се прибегава кад одлагање или прерада ислуженог горива нису обезбеђени или предвиђени. Овакви контејнери израђују се од бетона или челика а пројектовани су на такав начин да ефикасно одводе топлоту са ускладиштеног отпада у околну атмосферу. У случајевима када је потребно овакве контејнере додатно заштитити од атмосферских утицаја они се могу сместити у одговарајуће складишне објекте.

#### 4.2.5.5. Сигурност складиштења радиоактивног отпада

Сигурност складиштења радиоактивног отпада подразумева сигурност изложених радника који манипулишу радиоактивним отпадом током његовог складиштења али и сигурност становништва и заштиту животне средине у околини складишта. Сигурност складиштења се у значајној мери ослања на услов да паковање радиоактивног отпада током складиштења мора да сачува свој интегритет и спречи миграцију радионуклида у животну средину [142, 143].

Сигурносни захтеви за складиштење радиоактивног отпада односе се како на дуготрајност свих наведених елемената складиштења тако и на могућност инспекције ускладиштеног радиоактивног отпада и одржавање структура, система, компонената и опреме који омогућавају сигурно складиштење радиоактивног отпада.

При пројектовању и изградњи складишта радиоактивног отпада, тежиште мора бити на заштитним баријерама којима се спречава ширење радиоактивних материја изван складишта које укључују интегритет складишта и његове опреме и интегритет паковања радиоактивног отпада.

У обзир треба узети и интеракције између различитих типова отпада, контејнера и њиховог окружења. За поједине врсте отпада као што је течни отпад или отпад који има могућност изазивања критичности у обзир треба узети посебне мере предострожности као што су употреба контејнера са двоструким зидовима или непропусним испунама или са одговарајућим преградама и дистанцерима. Сигурност складиштења радиоактивног отпада треба, у мери у којој је то могуће, да буде заснована на мерама пасивне сигурности. Ове мере укључују:

- покретљивост радиоактивног материјала мора бити спречена;
- паковање радиоактивног отпада и контејнер у који је упакован морају бити физички и хемијски стабилни;
- сва заостала енергија мора бити уклоњена из радиоактивног отпада;
- задржавање радиоактивног материјала унутар складишта мора бити обезбеђено применом вишеструких баријера;
- паковање радиоактивног отпада и контејнер у који је он упакован не могу бити подложни деградацији;
- услови унутар складишта морају бити такви да оптимизују животни век паковања радиоактивног отпада;
- потреба за активним системима сигурности мора бити сведена на минимум;
- потреба за контролом и одржавањем мора бити сведена на минимум;

- потреба за људским интервенцијама мора бити сведена на минимум;
- складиште радиоактивног отпада мора бити пројектовано тако да буде отпорно на све предвидиве опасности;
- приступ складишту радиоактивног отпада за потребе деловања у случају ванредног догађаја мора бити обезбеђен;
- брзо деловање у случају ванредног догађаја мора бити обезбеђено;
- паковања радиоактивног отпада треба да буду доступна за инспекцију;
- паковања радиоактивног отпада је могуће изнети ради инспекције или додатног третмана;
- животни век складишта радиоактивног отпада треба да одговара периоду складиштења радиоактивног отпада пре његовог одлагања;
- складиште радиоактивног отпада мора бити пројектовано тако да је могуће изношење радиоактивног отпада;
- паковање радиоактивног отпада мора бити прихватљиво за његово коначно одлагање.

Приликом пројектовања складишта али и одабира начина третирања радиоактивног отпада у обзир се мора узети и могућност да одлагалиште радиоактивног отпада неће бити доступно у моменту у ком је то планирано односно да постоји могућност да ће радиоактивни отпад бити ускладиштен у дужем временском периоду у односу на то како је првобитно планирано.

Током складиштења радиоактивног отпада у обзир треба да буду узети и нерадиолошки ризици који могу настати услед специфичних физичких, хемијских или биолошких карактеристика радиоактивног отпада.

#### 4.2.5.6. Складиштење ислуженог нуклеарног горива

Ислужено нуклеарно гориво се, све док се не прогласи радиоактивним отпадом, сматра корисним ресурсом јер се из њега прерадом могу издвојити корисни елементи. Без обзира на декларисање и даље коришћење ислуженог нуклеарног горива, оно се после уклањања из нуклеарног реактора мора ускладиштити на одговарајући начин. Постоје две опције складиштења ислуженог нуклеарног горива – у базену са водом и у сувом складишту. Примери ових опција складиштења приказани су на слици 4.15.

Приликом складиштења у базену са водом горивни елементи налазе се испод воде која омогућава и хлађење и одговарајућу заштиту од зрачења. У већини случајева, ислужено нуклеарно гориво се после уклањања из нуклеарног реактора складишти у базену са водом неколико година како би се постигло смањење његове температуре. Базени у које се ислужено нуклеарно гориво смешта морају бити довољно дубоки, како би ниво воде био неколико метара изнад ускладиштеног горива. После периода складиштења у базену, гориво се премешта у суво складиште чија се заштитна својства заснивају на бетонским или металним контејнерима и где је хлађење обезбеђено природном конвекцијом или вештачком циркулацијом ваздуха.



а)



б)

Слика 4.15. Складиштење исслуженог нуклеарног горива а) у базену и б) у сувом складишту.

#### 4.2.6. Одлагање радиоактивног отпада

Одлагање је последња фаза у управљању радиоактивним отпадом. Одлагање је трајно смештање радиоактивног отпада у одлагалиште, без намере да се да се отпад поново износи [109, 144]. Оваква дефиниција одлагања оставља могућност изношења радиоактивног отпада ради препакивања и преношења на алтернативну локацију, уколико сигурност првобитног одлаглишта или одложеног радиоактивног отпада буде угрожена [145].

Кључна разлика између складиштења и одлагања огледа се у намери да складиште буде изграђено као привремени а одлагалиште као трајни објекат односно да се у складиште радиоактивни отпад смешта са намером да се из њега изнесе, уколико треба додатно третира или кондиционира или испусти у животну средину док се у одлагалиште ставља без намере да се из њега износи [107, 108, 144].

Поред претходне обраде радиоактивног отпада која укључује и његово кондиционирање, систем природних и вишеструких инжењерских баријера унутар и у околини одлагалишта спречавају испуштање радионуклида у животну средину и обезбеђују да ће се, уколико до њега уопште дође, одвијати веома споро. Неке од баријера

које чине саставни део одлагалишта, попут контејнера, обезбеђују потпуну изолацију отпада у одређеном временском интервалу. Други материјали, као што је геолошка формација у којој се смештено одлагалиште имају улогу да успоре продор радионуклида у околину.

#### 4.2.6.1. Опције за одлагање радиоактивног отпада

Опције за одлагање радиоактивног отпада зависе од врсте отпада и његових карактеристика као што су време полураспада радионуклида присутних у радиоактивном отпаду и њихова активност. Примарна функција одлагалишта је дугорочна изолација радиоактивног отпада у односу на животну средину. Изолација радиоактивног отпада треба да траје онолико дуго колико је потребно да се радионуклиди за које се везује значајан радиолошки ризик значајно распадне. Директна последица овога је то да су концепти одлагалишта намењених за различите класе радиоактивног отпада различити [146].

Тако радиоактивни отпад веома ниске активности и краткоживећи отпад ниске активности могу бити смештени у површинска или плитка одлагалишта. Дугоживећи отпад ниске активности и краткоживећи отпад средње активности одлажу се у наменска одлагалишта испод површине земље, док се дугоживећи отпад средње активности и радиоактивни отпад високе активности одлажу у дубока геолошка одлагалишта [147, 148]. Примери одлагалишта радиоактивног отпада дати су на слици 4.16.

Одлагалишта се пројектују и граде користећи као основу систем вишеструких баријера који гарантује адекватну дугорочну сигурност и безбедност. Концепт вишеструких баријера обухвата облик радиоактивног отпада, контејнере, блиско окружење одлагалишта и геолошку формацију у којој се одлагалиште налази, при чему сваки од ових елемената има улогу у спречавању миграције радионуклида у животну средину.

#### 4.2.6.2. Систем вишеструких баријера

Ефикасна дугорочна изолација одложеног радиоактивног отпада од животне средине постиже се применом принципа одбране по дубини који представља примену различитих нивоа опреме и процедура са циљем спречавања очекиваних оперативних догађаја и одржавања ефикасности физичких баријера постављених између радиоактивног материјала и животне средине, како у нормалним погонским стањима тако и у условима одступања од нормалних погонских стања.

Принцип одбране по дубини може бити имплементиран помоћу система вишеструких баријера. Систем вишеструких баријера састоји се од:

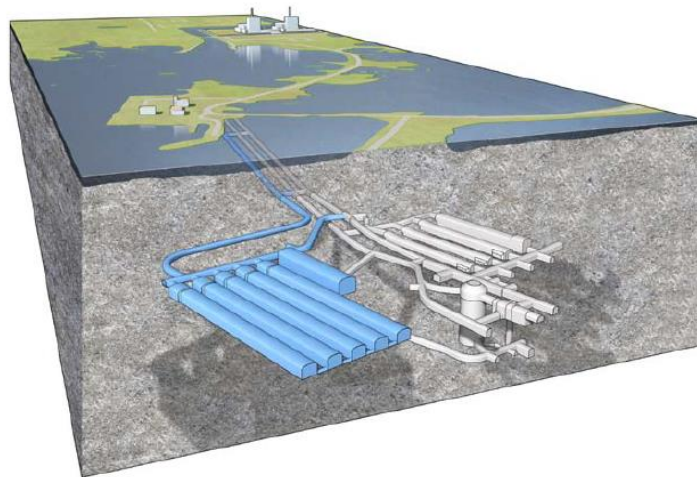
- Инжењерских, произведених или изграђених, баријера које обухватају облик радиоактивног отпада, контејнере и изолациони слој од природних материјала (енг. *backfill*);
- Природних баријера које формирају геолошке формације, биосфера и геосфера у којој је одлагалиште лоцирано.



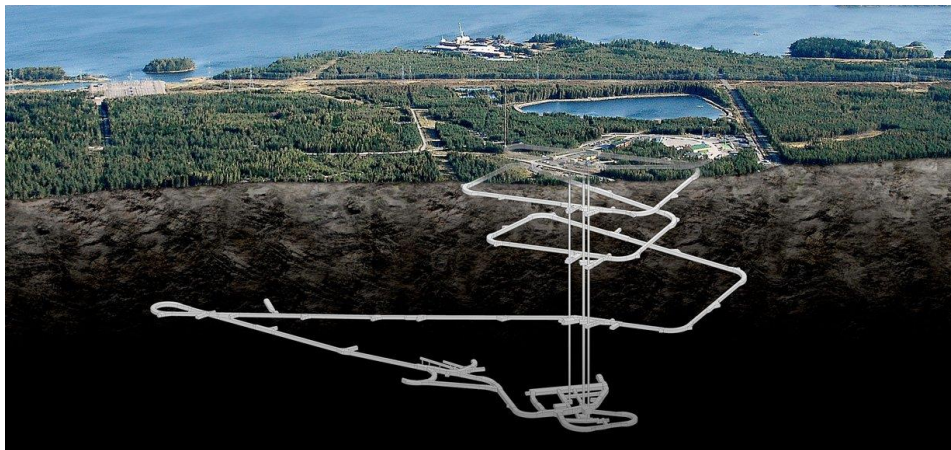
а)



б)



в)



г)

Слика 4.16. Примери одлагалишта радиоактивног отпада: а) Рудник соли као одлагалиште радиоактивног отпада у Немачкој, б) Плитко одлагалиште Ел Кабрил, Шпанија в) Пример решења за геолошко одлагалиште радиоактивног отпада у Шведској г) Пример решења за геолошко одлагалиште радиоактивног отпада у Финској.

Инжењерске баријере треба да буду пројектоване и изграђене на такав начин да обезбеде дугорочну сигурност ускладиштеног отпада. Природне баријере треба да буду одабране на такав начин да преузму функцију инжењерских баријера када оне више не буду могле да на адекватан начин задрже ширење радиоактивних материја. Комбинација различитих баријера гарантује робусност одлагалишта у довољно дугом временском интервалу.



Степен физичке и хемијске деградације инжењерских баријера мора у било ком случају бити што је могуће мањи. Главни фактор који може утицати на деградацију инжењерских баријера јесте кретање подземних вода. У горњим слојевима геолошког профила, посебно у зонама изнад нивоа подземних вода, кретање подземних вода може бити значајно. Међутим, на већим дубинама, посебно на локацијама које се налазе неколико стотина метара испод површине земље, ток подземних вода је спор и стабилан. Овакви услови одговарају успостављању хемијске равнотеже у стенама и минералима, услед чега подземне воде постају слане и имају редукциона својства. Одсуство кисеоника тада значајно успорава корозију металних делова и структура инжењерских баријера.

На данашњем нивоу знања систем вишеструких баријера заснован је на одређеним претпоставкама које нису довољно испитане. Разлог за то је кратак период истраживачких и развојних активности у области одлагања радиоактивног отпада који је и даље немерљив са временским периодом за који се захтева сигурност одложеног отпада. Поред тога, различити догађаји, било да су изазвани људским деловањем, било природним катастрофама, такође могу утицати на дугорочну стабилност одлагалишта. Сви ови фактори сматрају се утицајним величинама које утичу на несигурност процене дугорочног понашања система вишеструких баријера примењеног у неком одлагалишту радиоактивног отпада. То уједно имплицира да детерминистичка оцена понашања одлагалишта, по којој ће радионуклиди бити изоловани у односу на биосферу неограничено дуго није могућа [149].

#### 4.2.6.3. Инжењерске баријере

Систем инжењерских баријера се састоји од облика радиоактивног отпада у чврстом агрегатном стању, контејнера, по потреби и додатног контејнера и изолационог слоја. Ове баријере су изграђене људским активностима током изградње, рада и затварања одлагалишта. У Табели 4.6 су приказане инжењерске баријере и њихова основна функција.

Табела 4.6. Инжењерске баријере и њихова основна функција.

Инжењерска баријера	Функција
Облик отпада	Имобилизација радионуклида
Контејнер	Задржавање радионуклида
Изолациони слој	Стабилизација процеса испод површине земље

Основни фактори који утичу на избор начина конструкције и избора материјала инжењерских баријера јесу особине подземних вода, пре свега њихов ток и хемијски састав, као и термичке и механичке особине геолошког окружења. Инжењерске баријере треба да буду пројектоване и конструисане тако да обезбеде задржавање радионуклида у дефинисаној запремини најмање неколико стотина година, путем различитих механизма као што су сорпција или успоравање транспортних процеса.

##### 4.2.6.3.1. Облик радиоактивног отпада

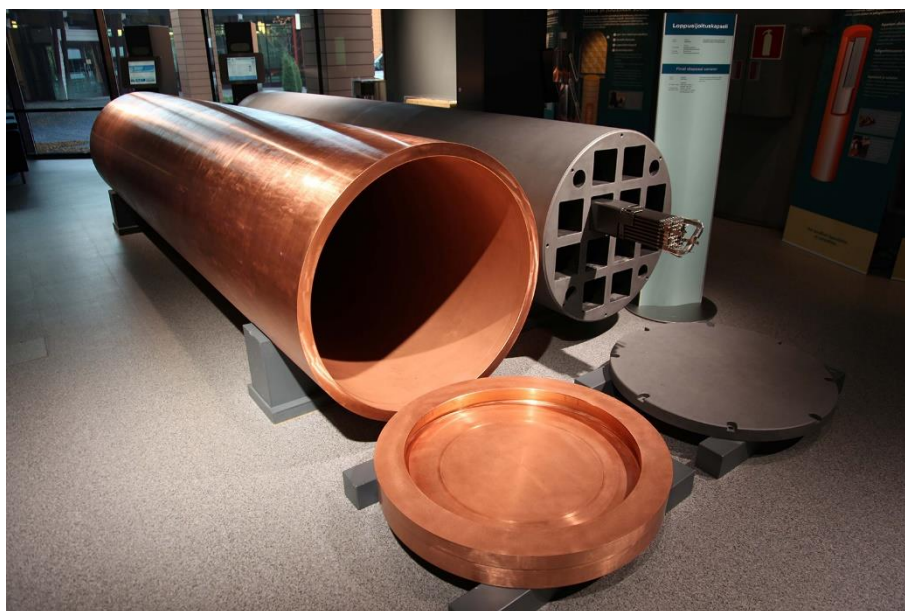
Облик радиоактивног отпада састоји се од матрице у којој се налазе радионуклиди. Функција такве матрице је задржавање радиоануклида у дефинисаној запремини. Високо активни радиоактивни отпад се најчешће имобилизује у стакленој или керамичкој матрици. Радиоактивни отпад средње и ниске активности имобилише се помоћу цементних матрица и смешта се у додатне бетонске или челичне контејнере. Метални комади, као што су делови цеви, машина и алата, пакују се у металну бурад и фиксирају цементном испуном. Поред наведених као матрице за имобилизацију

радиоактивног отпада користе се или су у фази развоја и други материјали као што су геополимерни и полимерни материјали. [134, 135, 136, 150]

Радионуклиди имобилисани у матрице могу бити растворени у подземним водама. Овај процес, иако релативно спор, у извесној мери доприноси миграцији радионуклида. Брзина овог процеса зависи од површине матрице изложене води, локације радионуклида у матрици, хемијског састава воде и брзине водених токова, растворљивости радионуклида, која је обично веома мала и вероватноће за радиолизу.

#### 4.2.6.3.2. Контејнери за одлагање

Контејнери представљају други ниво инжењерских баријера у одлагалишту радиоактивног отпада. Радиоактивни отпад се обично смешта у металне или бетонске контејнере, који потом могу бити смештени и у додатне контејнере а користе се, или су у фази развоја и контејнери од других материјала. Контејнери који садрже имобилисан радиоактивни материјал доприносе интегритету инжењерских баријера у веома дугом временском интервалу. Употребом материјала отпорних на корозију век контејнера може бити продужен до неколико стотина хиљада година. У циљу побољшања механичких својстава контејнера данас се користе ојачани бетонски као и композитни контејнери, чија је отпорност на механичке потресе значајно боља док су у развоју и контејнери на бази полимера и геополимера а са циљем обезбеђивања што дугорочније стабилности одложеног радиоактивног отпада. Пример контејнера за одлагање исслуженог нуклеарног горива дат је на слици 4.17.



Слика 4.17. Контејнери за искоришћено нуклеарно гориво, KBS-3 концепт, Шведска.

#### 4.2.6.3.3. Изолациони слој од природних материјала

Изолациони слој се употребљава за попуњавање шупљина у геолошкој формацији у којој се налази одлагалиште. Ови материјали се користе у простору који окружује контејнере и за попуњавање већих отвора и тунела у ширем простору који окружује одлагалиште. Функција изолационог слоја је да побољша стабилност одлагалишта попуњавањем шупљина у околни радиоактивног отпада, спречи продирање воде у одлагалиште, очува хемијску стабилност одлагалишта, спречи миграцију радионуклида

из контејнера и одводи топлоту. Изолациони слој, такође изолује радиоактивни материјал од геолошких процеса и амортизује сеизмичке активности.

Материјали који се користе у изолационом слоју морају бити хомогени и обезбедити униформно физичко-хемијско окружење за одложени радиоактивни отпад. За ову намену се обично користе природни материјали као што је мешавина глине и бентонита или издробљена гранитна стена извађена током изградње одлагалишта.

#### 4.2.6.4. Природне баријере

Природне баријере или геосферу чини стена која није измењена људским активностима а која пружа стабилно окружење за одлагалиште радиоактивног отпада. Оригинална својства геосфере могу донекле бити измењена изградњом самог одлагалишта. За изградњу одлагалишта се бирају стене повољних својстава на локацијама без сеизмичке активности. Анализа повољних својстава стена обухвата поред тога и хидрогеолошке, геофизичке и геохемијске особине. Стабилност окружења међутим не значи да у дужем временском интервалу нема измена геолошких услова али је битно да те измене буду споре и предвидљиве.

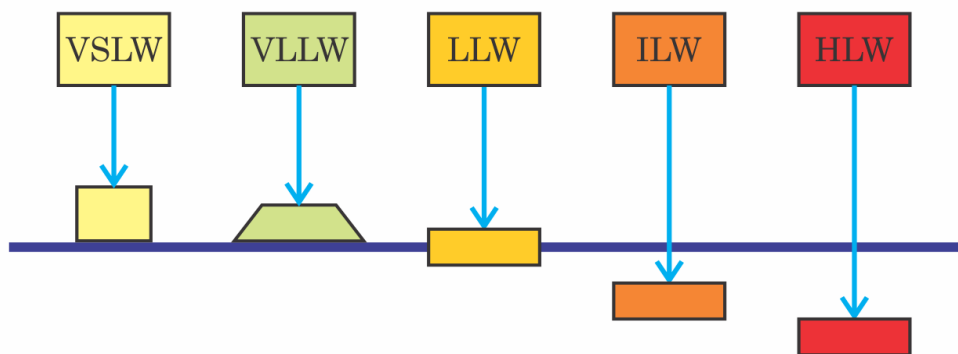
##### 4.2.6.4.1. Биосфера

Биосфера обухвата атмосферу, земљиште, површинске воде и њихове седименте. Граница између биосфере и геосфере се не може јасно дефинисати а типично се налази се дну седиментних слојева и земљишта који могу бити измењени људским активностима. Биосфера не припада систему природних баријера али процеси у њој утичу на кретање и растварање радионуклида, па се она такође посматра у контексту анализе дугорочне изолације радиоактивног отпада од животне средине. Како је транспорт радионуклида подземним водама најзначајнији у погледу миграције радионуклида у биосферу, битно је да за локацију одлагалишта буде одабрана она у којој је кретање подземних вода у смислу протока и брзине довољно ниско.

#### 4.2.6.5. Типови одлагалишта за одлагање радиоактивног отпада

При одабиру начина одлагања радиоактивног отпада, у обзир се морају узети карактеристике радиоактивног отпада као што су његова активности и време полураспада радионуклида присутних у радиоактивном отпаду. На слици 4.18 дат је преглед опција одлагалишта у зависности од категорије радиоактивног отпада.

Опције за одлагање радиоактивног отпада код кога највећи ризик чине краткоживећи радионуклиди ослањају се на институционални надзор одлагалишта и изграђене системе инжењерских баријера. Инжењерске баријере треба да су пројектоване тако да обезбеђују изолацију радиоактивног отпада током периода довољног да се већина радионуклида присутних у радиоактивном отпаду распадне до занемарљиве активности. У случају радиоактивног отпада који садржи радионуклиде са веома дугим периодом полураспада не може се са сигурношћу очекивати да ће институционална контрола одлагалишта и систем вишеструких баријера могу обезбедити изолацију таквог отпада током довољно дугог временског периода потребног да се дугоживећи радионуклиди распадне до сигурних граница.



Слика 4.18. Опције одлагалишта у зависности од категорије радиоактивног отпада.

Основна подела одлагалишта је подела према дубини на којој се врши одлагање радиоактивног отпада. С обзиром да је дубина одлагања радиоактивног отпада директно повезана са његовим карактеристикама то је одабир типа одлагалишта директно условљен карактеристикама радиоактивног отпада. Према дубини на којој се врши одлагање радиоактивног отпада одлагалишта се деле на:

- Површинска и плитка одлагалишта – одлагалишта на површини земље или испод површине на дубинама до неколико десетина метара
- Дубока геолошка одлагалишта – одлагалишта планирана на дубинама од више стотина метара

Поред два основна типа може се препознати још типова који су изведени из њих.

#### 4.2.6.5.1. Површинска и плитка одлагалишта

Површинска и плитка одлагалишта користе се за одлагање веома ниско и ниско активног радиоактивног отпада. Оваква одлагалишта смештена су на површини земље или на дубинама до неколико десетина метара испод површине земље. Постојање инжењерских баријера код оваквог типа одлагалишта није обавезно и зависи од постојања природних баријера и карактеристика отпада који се одлаже. Упркос томе неопходно је обезбедити адекватно покривање одлагалишта одговарајућим баријерама како би се радиоактивни отпад ефикасно одвојио од животне средине.

У случају површинских одлагалишта, радиоактивни отпад се смешта на површину, делимично испод површине или врло близу испод површине земље. Оваква одлагалишта погодна су за одлагање веома ниско активног и донекле ниско активног радиоактивног отпада за који се очекује да ће се распасти до нивоа који не представља ризик по животну средину у временском интервалу током ког се врши институционална контрола одлагалишта. Ово време најчешће износи између 100 и 300 година.

Најједноставнија варијанта површинског одлагалишта је смештање радиоактивног отпада на површину или у плитком рову и његово прекривање слојем земље. Овакав начин одлагања погодан је за веома ниско активни радиоактивни отпад као и адекватно кондициониран ниско активни радиоактивни отпад мада се оваква могућност избегава ако додатне инжењерске баријере нису предвиђене. Обично се при изградњи оваквог типа одлагалишта на његово дно поставља одговарајућа хидро-изолација а такође се и приликом покривања одлагалишта поставља водонепропусни слој са дренажним каналима.

Друга, често коришћена варијанта површинског одлагалишта је бетонски објекат, изграђен на површини или делимично укопан. Овакав објекат може се састојати од једне или више просторија, тзв. јединица које се редом попуњавају контејнерима са

кондиционираним отпадом. Када се нека од јединица попуни, контејнери се могу додатно залити бетоном и потом се јединица може затворити.

Бушотине и јаме или силоси блиске површини сматрају се алтернативом одлагалиштима блиским површини. Оне представљају исти облик одлагалишта али су силоси веће ширине па самим тим и сложенији и скупљи за изградњу. Предности оваквог начина одлагања су нижа цена и боља заштићеност од нежељеног уласка у одлагалиште. По потреби је могуће бушотини додати инжењерске баријере ради побољшања заштите од миграције радионуклида и од нежељених улазака у одлагалиште.

Плитка одлагалишта граде се испод површине земље и могу бити на различитим дубинама, од неколико десетина до неколико стотина метара. Плитка одлагалишта омогућавају сигурно одлагање ниско и средње активног радиоактивног отпада. Конструкција оваквих одлагалишта подразумева и постојање неизмењене стене или слоја седимента изнад самог одлагалишта, чиме је одлагалиште удаљено од површине земље. На овај начин се користе погодна хидрогеолошка и геохемијска својстава природних баријера и обезбеђује додатна физичка заштита одлагалишта.

Радиоактивни отпад и ислужени радиоактивни извори који нису подобни за одлагање у површинска одлагалишта морају се одлагати у одлагалишта на већим дубинама. Под средњим дубинама сматрају се дубине веће од неколико десетина метара на којима је ризик од нежељеног уласка сведен на минимум. Из тог разлога је и ризик од излагања услед нежељеног уласка у одлагалиште веома мали па су оваква одлагалишта подесна и за одлагање радиоактивних извора високих активности.

Оваква одлагалишта могу се састојати од низа хоризонталних тунела у које се уноси претходно кондиционирани отпад.

И овај тип одлагалишта може се реализовати као бушотина веће дубине него што је то случај код површинских одлагалишта. Прављење бушотина дубине до неколико десетина метара је са аспекта доступних технологија релативно једноставно а сам облик бушотине је подесан за одлагање радиоактивног отпада мале запремине као што су радиоактивни извори. Уколико се бушотина направи на подесном тлу, у стенама са ниском пропусљивошћу и без подземних вода које би могле доћи у контакт за радионуклидима, могуће је постићи довољан ниво изолације и без додавања инжењерских баријера. У случају да се бушотина не може направити у тлу које омогућава хидрогеолошку стабилност у потребном временском периоду потребно јој је додати инжењерске баријере које би омогућиле сигурно одлагање радиоактивног отпада довољно дуг временски период.

Поред наменског ископавања одлагалишта овог типа могу бити направљена и у постојећим великим шупљинама у чврстим кристалним стенама или граниту на дубинама од неколико десетина метара као што су пећине или рудници из којих се више не врши експлоатација. Ако се налазе на довољној дубини и ако су сви сигурносни услови испуњени пећине или рудници из којих се више не врши експлоатација се додавањем инжењерских баријера могу прилагодити намени одлагања радиоактивног отпада.

#### 4.2.6.5.2. *Дубока геолошка одлагалишта*

Дубока геолошка одлагалишта сачињена од каверни и тунела са различитим системима инжењерских баријера данас су у фази развоја као најприхватљивији начин одлагања дугоживећег ниско и средње активног радиоактивног отпада, високо активног радиоактивног отпада и ислуженог нуклеарног горива. Изолација какву омогућавају оваква одлагалишта је и више него довољна за одлагање и свих других класа радиоактивног отпада као и радиоактивних извора.

Сигурност дубоких геолошких одлагалишта се, због времена полураспада и активности радиоактивног отпада предвиђеног за одлагање не може ослонити на

дугорочни институционални надзор или одржавање већ на изолацију и недоступност коју им омогућавају велике дубине на којима се њихова изградња предвиђа.

Дугорочна сигурност дубоких геолошких одлагалишта базира се на систему вишеструких баријера које чине: стабилан облик радиоактивног отпада, дуговечност контејнера у којима се отпад налази и трајност осталих инжењерских баријера или природних баријера карактеристичних за изабрану локацију одлагалишта. Ове баријере, посматране као јединствен систем, омогућавају изолацију радиоактивног отпада у периоду који се мери хиљадама година.

#### 4.2.6.6. Методе за одлагање радиоактивног отпада

Три најчешће коришћена концепта одлагалишта радиоактивног отпада су тунели, каверне и дубоке бушотине. Сва три концепта имају одређени степен флексибилности по питању димензија и планираних инжењерских баријера чиме се омогућава њихово прилагођавање конкретном радиоактивном отпаду и геолошком окружењу.

Концепт тунела је тренутно најчешћа опција за одлагање кондиционираног отпада испод површине земље. Кондиционирани отпад у одговарајућим контејнерима може бити постављен хоризонтално или вертикално. Простор у тунелима који окружује кондиционирани отпад испуњен је изолационим материјалом, обично глином, бентонитом, или песком.

Масивни контејнери који садрже додатни материјал за заштиту од зрачења могу се постављати и у каверне ако је то одабрани концепт одлагања. Овај концепт може бити дизајниран и као складиште тако да поседује вентилацију, дренажу и омогућава повремену инспекцију и контролу отпада за време периода складиштења које може трајати и неколико стотина година. Након распада краткоживећих радионуклида, отвори коришћени за вентилацију, дренажу и инспекцију могу бити испуњени изолационим слојем а складиште на тај начин претворено у одлагалиште.

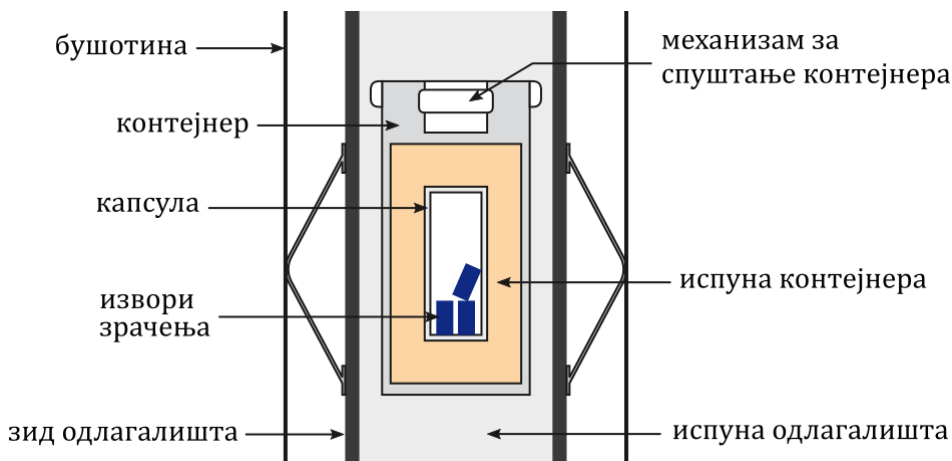
Код концепта дубоких бушотина, кондиционирани радиоактивни отпад се поставља у вертикалне бушотине. Додатно, у простор између радиоактивног отпада и зида бушотине поставља се слој изолационог материјала. На слици 4.19 су приказане различите варијанте дубоких бушотина: вертикалне бушотине, хоризонтална галерија изнад зоне одлагања и две хоризонталне галерије изнад и испод зоне одлагања. Код концепта одлагања радиоактивног отпада у дубоке бушотине, карактеристике одлагалишта, његових инжењерских баријера и предвиђених контејнера биће одређене на основу карактеристика отпада.



Слика 4.19. Различите варијанте дубоких бушотина.

#### 4.2.6.7. Концепт бушотине за одлагање извора зрачења

Посебан облик концепта дубоких бушотина је одлагање затворених радиоактивних извора у бушотине (енг. *Borehole disposal concept*). Иако по намени и принципу готово исти, концепт одлагања затворених извора у бушотине односи се само на изворе и на тип генеричког одлагалишта код кога су унапред познате и димензије и тип контејнера и где је једино потребно одредити дубину бушотине. [151, 152] Пресек бушотине за одлагање извора зрачења и одговарајућег контејнера дат је на слици 4.20.



Слика 4.20. Концепт одлагања искоришћених затворених извора зрачења у бушотине.

Концепт бушотине за одлагање извора зрачења развила је Међународна агенција за атомску енергију у сарадњи са јужноафричком компанијом NECSA (енг. *Nuclear Energy Corporation of South Africa*) и намењен је искључиво одлагању затворених радиоактивних извора. Концепт је заснован на коришћењу комерцијално доступне опреме за бушење дубоких бушотина и прилагођавања осталих инжењерских баријера и контејнера за одлагање овим димензијама.

Пројектом бушотине за одлагање извора зрачења предвиђено је да се у погодном тлу употребом одговарајуће опреме каква се већ деценијама користи за прављење бушотина начини бушотина пречника 260 mm и дубине довољне да се извори могу сместити у зону погодну за одлагање. Потом се начине инжењерске баријере у виду дна бушотине, челичних или полимерних зидова бушотине и испуне која се ставља између зидова и околног тла у ком је бушотина начињена. Извори ће се кондиционирати у одговарајуће капсуле од нерђајућег челика. Ове капсуле ће се потом смештати у контејнере наменски пројектоване за овакав тип одлагалишта. Контејнери ће се у бушотину спуштати дизалицом са специјално израђеном хватаљком а предвиђено је да се потом бушотина испуни испуном на бази цемента до висине на којој је предвиђено смештање следећег контејнера. Пројектом је предвиђено да се контејнери смештају од дна бушотине до дубине која би омогућила најмање 30 метара од последњег контејнера до врха бушотине. Ова зона би се испунила цементном испуном и затворила одлагалиште омогућавајући на тај начин адекватну сигурност и безбедност одложених извора зрачења.

#### 4.2.6.8. Оцена перформанси одлагалишта

Оцена перформанси одлагалишта има за циљ да покаже сигурност и безбедност одлагалишта и одложеног радиоактивног отпада у временском интервалу који обухвата

рад одлагалишта и период након његовог затварања. Оцена перформанси одлагалишта заправо представља процену његове сигурности и безбедности у дугом временском интервалу. Процена сигурности подразумева анализу вероватноће за испуштање радионуклида у животну средину у функцији времена и простора и процену дозе и ризика који су последица таквог испуштања.

У фази рада одлагалишта, његове перформансе морају бити у складу са прописаним условима радијационе и нуклеарне сигурности и безбедности као што важи и за било које друго радијационо или нуклеарно постројење. Период након затварања одлагалишта представља далеко већи изазов имајући у виду да радиоактивни отпад у одлагалишту може остати веома дуг период, при чему током читавог тог периода треба обезбедити његову ефикасну изолацију од животне средине.

Понашање сигурности геолошких одлагалишта и одложеног радиоактивног отпада у тако дугом временском периоду не може бити процењено применом детерминистичких метода, па се за те потребе примењују различите пробабилистичке методе.

Оцена перформанси одлагалишта састоји се од неколико независних фаза које обухватају:

1. Дефиницију основних особина одлагалишта;
2. Идентификацију процеса и догађаја који могу настати након затварања одлагалишта и који могу имати утицај на његову сигурност;
3. Развој модела и рачунарских кодова, укључујући и моделе за оцену несигурности процене;
4. Израчунавање индикатора и поређење са прихватљивим стандардима.

Алгоритам оцене перформанси одлагалишта састоји се из:

- Развоја сценарија, који обухвата предвиђање свих могућих видова миграције радионуклида из одлагалишта и одложеног радиоактивног отпада;
- Развоја модела, који обухвата формирање базе података и рачунарских кодова за предвиђање понашања одлагалишта;
- Анализе последица, заснованих на одговарајућим моделима.
- Анализе сензитивности модела која обухвата анализу утицаја различитих параметара и претпоставки на резултат процене;
- Несигурности процене, узимајући у обзир утицајне величине које доприносе укупној несигурности сценарија, несигурности познавања особина одлагалишта, несигурности познавања параметара и несигурности модела коришћених за анализу.

Алгоритам оцене перформанси одлагалишта приказан је на слици 4.21.



Слика 4.21. Алгоритам оцене перформанси одлагалишта.



### **4.3. Захтеви за контејнере за складиштење и одлагање радиоактивног отпада**

Контејнер представља прву баријеру за задржавање током кондиционирања, складиштења, транспорта и одлагања радиоактивног отпада. Правилан избор материјала за израду контејнера и начина његовог затварања је од суштинског значаја да би контејнер ефикасно вршио своју функцију. Ово се односи како на својства контејнера приликом удара, тако и на деградацију материјала од којих је начињен контејнер у предвиђеном периоду. Деградација контејнера представља значајан чинилац при анализи сигурности складиштења, а у неким случајевима и одлагања.

Карактеристике контејнера пројектују се у зависности од прихваћеног концепта управљања радиоактивним отпадом односно од временског периода у којем се од контејнера захтева ефикасно задржавање радионуклида унутар паковања радиоактивног отпада.

Уколико је концепт управљања радиоактивним отпадом заснован на робусности контејнера, они се пројектују и израђују на такав начин да обезбеде довољан ниво сигурности односно адекватну структурну стабилност и одговарајућу заштиту од јонизујућег зрачења у захтеваном временском периоду. Овај период може трајати до распада радионуклида до нивоа који више не представљају ризик, смештања у складиште или одлагалиште или до препакивања или паковања у друге контејнере. Овакав концепт обично се примењује за складиштење радиоактивног отпада који садржи краткоживеће радионуклиде, затим у складиштима радиоактивног отпада, посебно када питање одлагања радиоактивног отпада није решено као и у површинским и плитким одлагалиштима. Коришћење оваквих контејнера у дубоким геолошким одлагалиштима са изграђеним инжењерским баријерама иако повећава цену одлагања представља добру праксу којом се додатно подиже ниво сигурности.

Уколико је концепт управљања радиоактивним отпадом заснован на робусности постројења за управљање радиоактивним отпадом односно објекта складишта или одлагалишта, могу се користити контејнери пројектовани на такав начин да обезбеде довољан ниво радиолошке заштите за оператере који манипулишу радиоактивним отпадом али не и да обавезно обезбеде изолацију радионуклида у дугом временском периоду. Изолација радионуклида у случају овог концепта била би поверена инжењерским и природним баријерама у складишту или одлагалишту радиоактивног отпада.

#### **4.3.1. Захтеви током појединих фаза управљања радиоактивним отпадом**

##### **4.3.1.1. Захтеви током обраде**

Приликом обраде отпада, контејнер може послужити као одговарајући суд у којем се врши обрада. Примери оваквог коришћења контејнера су мешање течног радиоактивног отпада и материјала за солидификацију, као кућиште искоришћених филтера, затим за исушивање муља и јоноизмењивачких смола као и за компактирање радиоактивног отпада. У оваквим случајевима контејнер треба да буде пројектован тако да издржи и друге утицаје које са собом носе технологије обраде радиоактивног отпада као што су висока температура, вибрације и механичка сила.

У контејнер је у неким случајевима потребно ставити и испуне од додатног материјала како би се обезбедила адекватна структурна стабилност, спречавање миграције радионуклида и одговарајућа радиолошка заштита. Поред тога у контејнер се могу додати и посебне структуре у виду корпи, граничника или пропусних поклопаца

који држе чврст радиоактивни отпад фиксиран на средини контејнера али омогућавају пролаз енкапсуланта. Циљ ових структура је да обезбеде да се енкапсулант правилно распореди око радиоактивног отпада и тиме обезбеди адекватну радиолошку заштиту.

Вероватноћа да контејнер буде контаминиран са спољне стране приликом редовног рада највећа је током обраде радиоактивног отпада. Из овог разлога избор материјала за израду контејнера и начин завршне обраде његових спољашњих површина треба да обезбеде лакшу деконтаминацију.

#### 4.3.1.2. Захтеви током складиштења

Контејнер током складиштења има значајну улогу у ограничавању запремине у којој се налази радиоактивни отпад, лакшој манипулацији радиоактивним отпадом и заштити од зрачења. Контејнер за складиштење мора бити пројектован тако да пружи адекватну изолацију радиоактивног отпада, структурну стабилност и одговарајућу заштиту од јонизујућег зрачења током целокупног периода складиштења. Значај дугорочног интегритета контејнера за складиштење огледа се у чињеници да складиштење може, планирано или непланирано, да траје и значајно дуже од предвиђеног периода, до успостављања услова за одлагање радиоактивног отпада. Са друге стране, уколико је одлагање радиоактивног отпада доступно као опција, те стога период складиштења траје релативно кратко, контејнери пројектовани и предвиђени за одлагање се могу користити и приликом складиштења.

Код већине начина слагања контејнера у складишту, контејнери се слажу усправно или положено у више редова као што је већ приказано на слици 4.12. Код оваквих конфигурација слагања контејнер треба да издржи притисак једног или више других контејнера који се ослањају на њега. Из тог разлога од великог су значаја механичка својства контејнера за складиштење као што су затезна чврстоћа и чврстоћа на притисак.

Значајно својство контејнера како за складиштење тако и за одлагање је и могућност њиховог померања средствима хоризонталне и вертикалне манипулације као што су виљушкари, дизалице и кранови. Елементи за манипулацију контејнером као што су ручке, жљебови или отвори треба да издрже и масу контејнера и масу радиоактивног отпада смештеног унутар контејнера.

Током складиштења може доћи до пада контејнера, судара са неким од средстава за манипулацију контејнерима као што су палетар или виљушкар или са неком од структура постројења као и до пада другог контејнера или дела структуре постројења или опреме на контејнер. У тим случајевима велика сила може бити сконцентрисана на малој површини контејнера што може довести до пробоја зида контејнера и просипања његовог садржаја. Из овог разлога при пројектовању и изради контејнера за складиштење треба у обзир узети потенцијалне ударе односно контејнере треба пројектовати на такав начин да могу да издрже претпостављена одступања од нормалног рада која могу резултовати пробојем зида контејнера.

Уколико се паковања радиоактивног отпада складиште на отвореном она морају бити отпорна и на атмосферске утицаје.

При пројектовању и производњи контејнера за складиштење у обзир мора бити узета и могућност повећања притиска унутар контејнера услед генерисања гаса. Генерисање гаса може бити последица корозије, деградације отпада или хемијских, микробиолошких или радиолитичких реакција. У овим случајевима, контејнер мора бити пројектован и израђен довољно чврсто да издржи стварање притиска или мора бити опремљен системом за смањење притиска унутар контејнера који при том треба да спречи било какво испуштање радиоактивног материјала из контејнера.

Један од ванредних догађаја до којих може доћи током складиштења радиоактивног отпада је и пожар у складишту. Оваква ситуација је посебно ризична уколико је унутар складишта ускладиштен запаљив или потенцијално запаљив отпад или ако се унутар складишта налазе други запаљиви материјали. У ситуацијама када постоји могућност пожара у складишту, контејнери треба да буду пројектовани и израђени тако да задрже свој интегритет и у потенцијалним условима повишене температуре или излагања пламену и пожара, како би се избегло ослобађање радиоактивног материјала. При пројектовању у обзир се морају узети и услови спољашњег излагања високој температури али и унутрашњег будући да и садржај контејнера у неким случајевима може да се запали.

#### 4.3.1.3. Захтеви током транспорта

Приликом пројектовања и израде контејнера за транспорт отпада треба водити рачуна о различитим видовима транспорта (копнени, железнички, водени и ваздушни). Најважнија својства потребна за транспорт су она која се односе на сигурност, безбедност и заштиту од зрачења, у редовним условима транспорта и при одступању од њих. Контејнер мора да прође тестове којима се проверава његово понашање при паду, пробијању, приликом потапања у воду и излагања високим температурама и пожару.

Препоруке и прописи који важе за транспорт нису увек применљиви за складиштење или одлагање. Иако се контејнери предвиђени за транспорт тестирају на пад и пробијање, током складиштења може доћи и до пада са веће висине и до ударца већом силом него што ти тестови предвиђају. Из овог разлога захтеви који се постављају пред контејнере за складиштење радиоактивног отпада могу бити строжи него услови који се постављају пред транспортне контејнере. Такође, захтеви за отпорност контејнера на пожар могу бити знатно строжи од захтева за транспорт. Ово је последица потенцијално великог броја ускладиштених контејнера који такође могу бити захваћени пожаром те стога потенцијални извор топлоте.

#### 4.3.1.4. Захтеви током одлагања

Контејнер за одлагање мора бити пројектован и израђен тако да, самостално или уз помоћ инжењерских и природних баријера пружи адекватну изолацију радиоактивног отпада у временском периоду и под условима који обезбеђују адекватну заштиту здравља људи и животне средине од штетног дејства јонизујућег зрачења.

Током оперативне фазе одлагалишта неопходно је манипулисати паковањима радиоактивног отпада како би се она поставила на финалну позицију за одлагање. Начини манипулисања контејнерима у одлагалишту и опрема која се за то користи могу бити различити од оних у складиштима. Последица ових разлика могу бити додатни захтеви за конструкцију контејнера којима се омогућава коришћење различите опреме али и различита механичка својства, зависно од тога како се при коришћењу те опреме расподељује сила.

Карактеристике контејнера за одлагање, као и у случају складиштења, зависе од функције коју контејнер има током одлагања. Основна функција контејнера је да обезбеди само ограничену запремину у коју се смешта радиоактивни отпад. У том случају контејнер нема улогу инжењерске баријере коју преузимају додатни контејнер ако постоји и остале инжењерске баријере. Прихватљивост овог приступа зависи од радионуклида присутних у отпаду и карактеристика инжењерских и природних баријера одлагалишта. Овакав приступ погодан је за одлагање одређених типова ниско

активног радиоактивног отпада у површинска и плитка одлагалишта као и за одређене типове средње активног радиоактивног отпада у дубока геолошка одлагалишта.

Са друге стране контејнер за одлагање радиоактивног отпада може бити пројектован и израђен на тако да обезбеди дугорочну изолацију радиоактивног отпада у свим погонским стањима одлагалишта укључујући и непланирана стања изазвана природним или људским деловањем. У том случају контејнер је једна од инжењерских баријера а остале инжењерске баријере могу бити пројектоване и израђене тако да допуњују заштиту коју обезбеђује контејнер. Овакав приступ погодан је за одлагање свих типова и класа радиоактивног отпада али је због велике цене најприменљивији за средње и високо активни радиоактивни отпад.

Код овог приступа, контејнер има улогу у спречавању или смањивању потенцијалног испуштања радионуклида из паковања радиоактивног отпада у подземне воде кроз:

- 1) Изолацију радиоактивног отпада док се краткоживећи радионуклиди не распадну до нивоа који више не представља ризик по људе и животну средину. Ово је посебно значајно за радионуклиде попут  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$ , који имају време полураспада од око 30 година и лако се растварају у води.
- 2) Контролу растворљивости дугоживећих радионуклида одржавањем редукционих услова и високе рН вредности унутар одлагалишта коришћењем погодних материјала за испуне контејнера, матрице за имобилизацију отпада и погодног изолационог материјала.

### 4.3.2. Захтеви за пројектовање контејнера

#### 4.3.2.1. Утицај облика радиоактивног отпада

Облик у којем се налази радиоактивни отпад у контејнеру има значајан утицај на својства целокупног паковања и може имати значајан утицај на захтеване карактеристике контејнера како би се обезбедио адекватан ниво структурне стабилности и заштите од јонизујућег зрачења.

С обзиром да паковање радиоактивног отпада представља једну од инжењерских баријера за изолацију радиоактивног отпада, требало би предузети све мере како би се осигурало да контејнер буде што ефикаснији у задржавању радиоактивних материјала унутар одлагалишта. То се може постићи солидификацијом или енкапсулацијом радиоактивног отпада у одговарајуће матрице чиме се смањује потенцијал за миграцију или дисперзију радиоактивног материјала. На тај начин побољшавају се и механичка својства паковања радиоактивног отпада која су од значаја током складиштења и одлагања.

Унутар паковања радиоактивног отпада, могу се појавити и празнине у виду микропразнина или макропразнина било унутар кондиционираног отпада или између зида контејнера и отпада. Иако је пожељно да у паковању радиоактивног отпада не буде микропразнина, ово практично није могуће постићи и у паковању ће их увек бити у одређеној мери. Дозвољена количина микропразнина зависи од дизајна контејнера и врсте његовог садржаја.

Вероватноћа да у контејнеру постоји празнина, може имати утицаја на захтеване карактеристике контејнера као што су потреба за повећањем механичке чврстоће или отпорности на корозију.

Празнине унутар контејнера, било да се налазе унутар кондиционираног отпада или између отпада и зида контејнера, могу резултовати низом недостатака као што су:

- смањење механичке чврстоће паковања радиоактивног отпада чиме оно постаје подложније оштећењима у случају механичких удара. Ово је посебно значајно кад се празнине налазе у близини потенцијалних места на којима може доћи до удара.
- смањење аксијалне чврстоће паковања у случајевима када празнине заузимају читав пресек контејнера. Како неки начини слагања контејнера у складиштима и одлагалиштима предвиђају слагање контејнера једних на друге то ће у случају оваквих празнина контејнер морати да прими читаву масу осталих контејнера који се на њега ослањају односно при чему део оптерећења не бива преузет од стране кондиционираног отпада у контејнеру.
- појачану корозију материјала од ког је начињен контејнер посебно ако се празнине налазе на местима где је материјал под механичким оптерећењем или где може доћи до кондензације.
- појачана миграција течног радиоактивног отпада или воде у одлагалишту.
- формирање запаљиве смеше у празнинама услед генерисања водоника радиоллизом, термичком разградњом, корозијом или биоразградњом.

Хидростатички притисак може имати значајан утицај на контејнере у одлагалишту када оно постане засићено подземним водама. Он може бити довољан да проузрокује деформацију контејнера око било каквих празнина у контејнерима који нису опремљени системима за смањење притиска или где они не функционишу.

#### 4.3.2.2. Облик контејнера

Стандардизација дизајна и димензија контејнера је од велике користи у обезбеђивању примене заједничких система за руковање и транспорт. За складиштење и одлагање радиоактивног отпада најчешће се користе стандардна бурад од 200 и 380 литара као и стандардни транспортни ISO контејнер.

Код избора облика контејнера од великог је значаја и начин на који се контејнери слажу у складишту или одлагалишту. Облик контејнера треба да обезбеди ефикасно слагање уз смањење негативних утицаја као што су лоше налегање које може довести до пада горњег контејнера или усмеравање притиска читавог контејнера на малу површину што може изазвати механичко оштећење доњег контејнера. Једна од предности правоугаоних контејнера је ефикасније искоришћење запремине односно и ефикасније паковање радиоактивног отпада у контејнере и ефикасније паковање контејнера у складиште или одлагалиште.

Разни облици контејнера за складиштење и одлагање већ су приказани у табели 4.4.

#### 4.3.2.3. Димензије контејнера

Контејнери за отпад могу се превозити сами или унутар стандардних транспортних контејнера. Након пријема у складиште, контејнери се могу извадити из транспортног контејнера и, ако је потребно, препаковати у веће контејнере пре одлагања. Стога је од суштинског значаја да се контејнери уклапају у максималне величине које су компатибилне са димензијама транспортног контејнера и омогућавају оптимално искоришћење запремине одлагалишта. Транспорт ће контејнере изложити вибрацијама, убрзању и успоравању. Од суштинског је значаја да нормални услови транспорта не доводе у питање интегритет контејнера или транспортног контејнера и да се штета у условима ванредног догађаја сведе на минимум. То се може постићи ограничавањем слободе кретања контејнера у оквиру транспортног контејнера.

Наведене укупне димензије треба да укључују све отворе, филтере или друге избочине на контејнеру.

#### 4.3.2.4. Начини манипулације

С обзиром да ће се контејнери користити у складишту и/или одлагалишту, од суштинског је значаја да, без обзира на њихов облик, имају елементе који омогућавају манипулацију њима у виду подизања и померања и који су при том компатибилни са опремом која се користи у тим постројењима. Облик и димензије елемената за подизање контејнера треба да помогну у манипулацији и да могу да издрже масу контејнера. Примери опреме за манипулисање контејнерима приказани су на слици 4.22.

Елементи за манипулацију контејнером у складишту и/или одлагалишту морају бити пројектовани и израђени на такав начин да издрже масу контејнера али и утицај инерције и ударна оптерећења.



Слика 4.22. Примери опреме за манипулисање контејнерима.

#### 4.3.2.5. Начин пуњења

У зависности од тога да ли је контејнер напуњен хомогеним отпадом у матрици или хетерогеним отпадом који се енкапсулира у одговарајући материјал употребљавају се различити начини пуњења. Отвори морају бити предвиђени у горњем делу контејнера како би се омогућило лако уношење отпада или облика отпада, без опасности да дође до преливања или било какве контаминације спољашње површине контејнера.

Веома је тешко у потпуности напунити контејнер отпадом, јер током сушења и очвршћавања обично долази до бубрења, или, чешће, сакупљања. Често се након тог периода у контејнер мора додати материјал да би се направио неактивни слој заштите на врху контејнера. Материјали који се обично користе у ту сврху су обично исти као и материјали који служе за имобилизацију радиоактивног отпада.

Пре одлагања контејнер се мора херметички затворити. Избор поступка затварања варираће у складу са природом материјала контејнера и треба да буде обављен на такав начин да не изазове било какве негативне утицаје на паковање. Примери поступака затварања укључују заваривање, употребу прирубница и поклопца са разним врстама механизма за затварање за металне контејнере, цементирање бетонских посуда и лепљење смолама код полимерних контејнера.

Ако се за затварање контејнера користи посебан елемент за спајање, попут заштитке или прстена, његова трајност се такође мора размотрити под условима који се очекују у складишту или одлагалишту. То првенствено укључује излагање јонизујућем зрачењу, повишеној температури и потенцијално хемијским реакцијама у контакту са радиоактивним отпадом.

#### 4.3.2.6. Слагање

Већина разматраних и примењених начина слагања контејнера код генератора радиоактивног отпада, током складиштења или одлагања захтева да се паковања радиоактивног отпада слажу једно на друго. Начин слагања може бити такав да се контејнер ослања целом површином на контејнер испод њега или да се ослања на већи број контејнера. Из овог разлога се мора одредити минимална носивост контејнера односно капацитет вертикалног слагања. Такође, неопходно је утврдити и да ли контејнери могу да се слажу директно један на други или је потребно користити одстојнике како би се смањила контактна површина а тиме и могућност појаве корозије. Одстојници могу да буду постављени и како би се повећала статичка стабилност али и да се омогући вентилација.

При пројектовању или одабиру одстојника треба водити рачуна да не долази до концентрације велике силе притиска на одређене тачке на контејнеру, што би могло довести до оштећења или трајних деформација приликом слагања.

Могуће је да ће се контејнери током складиштења или одлагања слагати хоризонтално. Из тог разлога при пројектовању и изради контејнера у обзир треба узети и ту могућност.

#### 4.3.2.7. Отпорност на ударе

Редовне, планиране, активности које се обављају током свих фаза управљања радиоактивним отпадом као што су сакупљање, карактеризација, кондиционирање, транспорт, складиштење и одлагање могу да изложе паковање радиоактивног отпада вибрацијама и ударима. Одступања од редовног рада, током свих наведених фаза управљања радиоактивним отпадом могу контејнере изложити механичким оштећењима узрокованим падовима или ударима који могу изазвати значајна оштећења контејнера и испуштање радиоактивног материјала из њега.

Како контејнер често представља не само главну, већ и једину заштитну баријеру која спречава случајно ослобађање радиоактивног материјала од великог је значаја и да он може да издржи све предвиђене радне услове као и предвиђена одступања од нормалног рада. Такође, како се често исти контејнер користи током више фаза управљања радиоактивним отпадом он мора да издржи све претпостављене услове током свих ових фаза. Ово је посебно важно током привременог чувања код генератора радиоактивног отпада, кондиционирања и складиштења где често не постоје додатне инжењерске баријере које би преузеле улогу контејнера у случају његовог оштећења.

Контејнери за управљање радиоактивним отпадом обично се подвргавају тестовима у којима се испуштају са великих висина на равне површине или површине са шиљцима како би се испитала њихова чврстоћа на ударце и пробијања. Намера оваквих тестова је да обезбеди да радиоактивни садржај у контејнеру, у случају предвиђених догађаја, не може да исцури у довољним количинама да створи радиолошку опасност.

Механичка чврстоћа матрице је важан параметар у одређивању отпорности читавог паковања радиоактивног отпада на ударце.

Повећање дебљине зида контејнера обично повећава његову отпорност на ударце, а посебно за ударце на површине које нису равне и глатке. Изузетак од овог правила је

када се чврст радиоактивни отпад, смештен у контејнер који да има релативно чврст, дебео зид, као и глатку унутрашњу површину помера унутар контејнера. Тада при паду или удару контејнера може доћи до концентрисања силе на поклопцу довољне да одвоји поклопац од контејнера. Код контејнера са танким зидовима (дебљине 1–3 mm) овај ефекат нема значајан утицај. Овај ефекат може се спречити додавањем жлебова или прстенова који би спречили померање отпада унутар контејнера.

Варови који се налазе на или у близини горње или доње ивице контејнера су они који ће највероватније први попустити приликом удара. Ови варови, посебно они који се налазе у доњем делу контејнера, треба да се налазе што даље од његових ивица.

При пројектовању контејнера треба избегавати нагле и велике промене дебљине зида јер то такође може довести до концентрације оптерећења и оштећења контејнера. Такође, треба избегавати зарезе и било које друге елементе које могу повећати кртост контејнера, посебно при високим оптерећењима. Сви варови којима се спајају метални елементи морају бити непрекидни и јаки као матични материјал.

Дуктилно понашање материјала је веома пожељно током излагања спољној деформацији. Оно се, стога, мора узети у обзир у фази одабира материјала за израду контејнера као и приликом пројектовања и производње контејнера. Такође, у обзир се мора узети и било какво погоршање карактеристика материјала од ког је направљен контејнер и самог контејнера које је последица унутрашње или спољашње корозије. Посебно треба обратити пажњу на хетерогене облике отпада, нпр. енкапсулирани чврсти отпад, због потенцијала да комади отпада продру у зид контејнера приликом удара. Ако било који од комада у отпаду има оштре ивице, потребно је спречити пробијање зидова контејнера приликом смештања отпада у контејнер.

Треба обратити пажњу и на затварање или поклопац контејнера. Лоше затварање контејнера може довести до отварања контејнера и испуштања радиоактивних материја.

Под одређеним околностима, унутрашње структуре контејнера, као што су мешалица, цеви, носачи или унутрашња својства поклопца, могу изазвати пуцање или пробој контејнера приликом удара. Да би се смањила вероватноћа оваквих догађаја, ове структуре треба да буду постављене што даље од бочних зидова контејнера. Структуре које се налазе у близини или причвршћене за бочне зидове контејнера треба да буду заобљене, како би се избегао пробој контејнера приликом удара.

#### 4.3.2.8. Системи за сакупљање и одвођење гаса

Као што је већ речено постоји низ различитих механизма који могу довести до повећања притиска у контејнеру када је херметички затворен. У нормалним условима складиштења, транспорта и одлагања, гасови се могу ослобађати из отпада као резултат радиолизе, корозије и хемијске или биолошке разградње. Ови процеси значајно су бржи у случајевима када радиоактивни отпад генерише значајну количину топлоте. Такође, у истом случају, може доћи и до пораста притиска гаса услед ширења у не вентилираним контејнерима. При одређеним одступањима од редовног погона температура у паковању може постати довољно висока да покрене стварање паре. Контејнери који се користе у оваквим ситуацијама треба да имају филтрирани систем за уклањање генерисаног гаса који функционише на такав начин да ослобађа било какав створени притисак, ограничавајући отпуштање активности на прихватљиве нивое.



#### 4.3.2.9. Површинска контаминација

Да би се паковањем радиоактивног отпада могло сигурно и безбедно манипулисати, као и да би се могло складиштити или одлагати, нивои површинске контаминације треба да буду испод утврђених граница.

Испуњеност ових услова врши се контролним узорцима који се узимају сувим брисом на површини од најмање 300 cm<sup>2</sup>. Међутим, треба узети у обзир да ако би сва паковања радиоактивног отпада присутна у неком постројењу имала ниво контаминације близу граничних вредности, тада би манипулисање или транспорт ових паковања могли довести до контаминације појединих површина изнад прописаних граница. Стога је пожељно да са паковања радиоактивног отпада сва контаминација буде уклоњена колико је то разумно изводљиво.

Природа материјала и његова завршна обрада могу имати веома значајан утицај на лакоћу његове контаминације и деконтаминације. У општем случају, што је површина тврђа и сјајнија, то је мања вероватноћа да ће се контаминирати и, уколико се контаминира биће лакше извршити деконтаминацију.

#### 4.3.2.10. Захтеви које поставља дизајн одлагалишта

На перформансе контејнера утиче и окружење у складиштима и одлагалиштима, односно чиниоци као што су температура и влажност ваздуха у постројењу, ризик од поплаве или јачина поља зрачења унутар постројења.

Код неких концепата одлагања радиоактивног отпада контејнер неће бити узет у обзир као једна од баријера за задржавање радионуклида. Ово може бити случај:

- 1) када се одлаже веома ниско активни радиоактивни отпад
- 2) када се одлаже веома кратко живећи радиоактивни отпад
- 3) када се задржавање радионуклида обезбеђује инжењерским баријерама у одлагалишту.

У оваквим случајевима захтеви за издржљивост контејнера би се односили само за карактеристике контејнера од значаја за манипулацију. Механичка својства контејнера морају, међутим, бити у складу са пројектом одлагалишта и инжењерских баријера са којима долази у додир.

Код других дизајна одлагалишта контејнер представља једну од баријера за задржавање радионуклида. У овим случајевима контејнер треба да настави са обезбеђивањем адекватног задржавања радионуклида током временског периода након одлагања предвиђеног пројектом одлагалишта.

#### 4.3.2.11. Материјали контејнера и начин затварања

При избору дизајна контејнера и материјала коришћених за његову израду треба у обзир узети и прихватљивост и степен унутрашње и спољашње корозије током планираног периода складиштења и одлагања. Треба изабрати материјал који је отпоран на корозију или друге видове деградације или их узети у обзир на одговарајући начин. Деградација контејнера је сложен процес и њен обим зависи од дизајна контејнера, коришћених материјала, отпада у контејнеру и начина његовог кондиционирања, окружења у којем се контејнер налази и инжењерских баријера.

При одабиру контејнера за складиштење високо активног радиоактивног отпада у обзир, поред дизајна, дебљине зидова и материјала треба узети у обзир и количину топлоте коју генерише радиоактивни отпад и њен утицај на карактеристике одабраног дизајна и материјала.

Поред карактеристика самог контејнера, потребно је дефинисати и на који начин је контејнер најбоље затворити. Главни захтеви које начин затварања контејнера треба да испуни су:

- 1) Задржавање гасовитих и честичних радиоактивних материја;
- 2) спречавање уласка подземне воде и излуживања;
- 3) избегавање повишеног унутрашњег притиска услед генерисања гаса или утицаја топлоте;
- 4) избегавање експлозивних смеша гасова у празнинама;
- 5) Задржавање краткоживећих радиоактивних материја до њиховог распада.

Чиниоци које треба узети у обзир при избору материјала за израду контејнера за складиштење или одлагање радиоактивног отпада су:

- трајност контејнера на коју утичу механичка својства, отпорност на оштећења, дуктилност, отпорност на корозију;
- компатибилност са отпадом или са обликом отпада и то:
  - током процеса кондиционирања отпада, посебно ако се контејнер користи као посуда у којој се отпад кондиционира,
  - током периода складиштења,
  - након затварања одлагалишта;
- услови у окружењу контејнера током складиштења и одлагања;
- ограничења масе и запремине;
- улога у заштити од јонизујућег зрачења;
- транспортни захтеви;
- топлотна својства као што су топлотна проводљивост, специфична топлота, коефицијент линеарне експанзије, специфична емисивност;
- стабилност приликом излагања јонизујућем зрачењу;
- комплексност израде;
- трошкови и оптимизација трошкова.

## 5. Резултати и дискусија

У овом поглављу приказани су резултати и дата дискусија резултата анализе радијационе стабилности испитиваних полимерних, геополимерних и композитних материјала током складиштења и одлагања ислужених радиоактивних извора и радиоактивног отпада.

Анализирана је применљивост нових полимерних, геополимерних и композирних материјала у оквиру постојећих и планираних решења за складиштење или одлагање ислужених радиоактивних извора и радиоактивног отпада, која се користе у великом броју држава или су у фази развоја на националном и међународном нивоу и теже да буду успостављена као стандард и то:

- 1) Одлагање ислужених затворених извора зрачења у бушотине према концепту предложеном од стране Међународне агенције за атомску енергију
- 2) Складиштење и одлагање чврстог ниско активног и средње активног радиоактивног отпада у стандардну челичну бурад запремине 55 галона (216,5 l)
- 3) Одлагање витрификованог високо активног радиоактивног отпада

Испитивани материјали у фазама складиштења и одлагања радиоактивног отпада имају улогу испуне у контејнеру која представља баријеру која спречава излазак радионуклида из контејнера, обезбеђује додатну заштиту од зрачења, као и позиционирање ислужених радиоактивних извора и радиоактивног отпада у централни део контејнера како би се обезбедила униформна расподела дозе. Иако овај елемент контејнера има вишеструку функцију, он ће због једноставности у наставку дисертације бити називан испуном.

Три наведена решења представљају опције за управљање најчешћим типовима радиоактивног отпада. Овим решењима покривено је управљање највећим делом радиоактивног отпада који постоји у свету како у погледу запремине (ниско и средње активни), тако и по активности (високо активни), али и у погледу ризика који би носио евентуални безбедносни догађај (ислужени затворени извори зрачења). Преглед примене наведених решења у управљању различитим типовима радиоактивног отпада дат је у табели 5.1.

Сложеност и цена експеримената са радиоактивним материјалима, ограничен избор различитих извора зрачења, као и ограничења постављена сигурносним

захтевима у појединим случајевима, резултирали су развојем компјутерских кодова који су данас уобичајени за анализу ефеката зрачења у различитим материјалима, коришћењем симулација [153 – 159]. Проблеми са израчунавањем апсорбоване дозе на неприступачним местима, у дужем временском периоду или на местима где је непрактично директно мерити, превазилазе се коришћењем Монте Карло симулација транспорта зрачења и депоновања енергије. Додатна предност Монте Карло симулација је чињеница да се оне могу извести са онолико историја фотона или честица колико је потребно да би се обезбедила довољно ниска несигурност добијених резултата.

Табела 5.1. Преглед решења у управљању различитим типовима радиоактивног отпада.

Предложено решење		Одлагање ислужених затворених извора зрачења у бушотине	Складиштење и одлагање чврстог ниско и средње активног радиоактивног отпада у стандардну челичну бурад запремине 55 галона	Одлагање високо активног радиоактивног отпада
Ислужени радиоактивни извори (DSRS)		✓		
Радиоактивни отпад	Веома краткоживећи (VSLW)	Чување до достизања нивоа за ослобађање у животну средину		
	Веома ниско активни (VLLW)	Директно одлагање на наменске локације са инжењерским баријерама које спречавају да радионуклиди доспеју у животну средину		
	Ниско активни (LLW)		✓	
	Средње активни (ILW)		✓	
	Високо активни (HLW)			✓

За израчунавање енергије депоноване зрачењем и апсорбоване дозе коришћен је софтверски пакет MCNPX. MCNPX софтверски пакет је Монте Карло код за симулацију транспорта честица, чија је валидност доказана у мноштву студија у којим је апсорбована доза прорачунавана у зидовима и испунама различитих типова контејнера, укључујући контејнере за транспорт, складиштење и одлагање радиоактивног отпада [152, 160 – 165]. Непосредни резултат симулација које су спровођене за потребе дисертације је у свим случајевима била енергија депонована по јединици масе унутрашње испуне контејнера (тј. апсорбована доза), у јединицама MeV/g, по једном фотону емитованом из извора. Помоћу овако добијених резултата симулације, и узимањем у обзир вероватноће за емисију гама зрака, активности извора, времена излагања и карактеристика материјала у погледу њиховог одговора на излагање јонизујућем зрачењу израчуната је апсорбована доза за сваки од појединачних случајева и друге величине од значаја за оцену радијационе стабилности о којима ће бити више

речи у наставку. Симулације су извођене са најмање  $10^6$  историја, чиме је обезбеђено да релативна несигурност добијених резултата буде испод 0,05%.

## 5.1. Испитивани материјали

У поглављу 3. дат је преглед утицаја зрачења на материјале и на основу тога одабрани су материјали који према својим својствима представљају потенцијалне материјале који се могу користити као испуне контејнера за складиштење или одлагање радиоактивног отпада.

Материјали чија радијациона стабилност је анализирана у овом раду, од којих је у симулационим моделима била израђена испуна контејнера, су:

- полимерни материјали и то:
  - полиетилен високе густине (HDPE),
  - полистирен (PS),
  - полиетеретеркетон (PEEK),
  - полиетеримид (PEI),
  - полисулфон (PSU)
- геополимерни материјали и то:
  - геополимерни материјали код којих је преобладајући алкални катјон калијум ( $4\text{SiO}_2 \cdot 1\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 1\text{K}_2\text{O} \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ )
  - геополимерни материјали код којих је преобладајући алкални катјон натријум ( $4\text{SiO}_2 \cdot 1\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 1\text{Na}_2\text{O} \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ )
  - геополимерни материјали код којих је преобладајући алкални катјон цезијум ( $4\text{SiO}_2 \cdot 1\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 1\text{Cs}_2\text{O} \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ )
- композитни материјали и то:
  - полиетилен високе густине (HDPE) ојачан борним влакнима у масеним уделима од 10%, 30%, 50% и 70%.
  - полистирен (PS) ојачан борним влакнима у масеним уделима од 10%, 30%, 50% и 70%.
  - полиетеретеркетон (PEEK) ојачан борним влакнима у масеним уделима од 10%, 30%, 50% и 70%.
  - полиетеримид (PEI) ојачан борним влакнима у масеним уделима од 10%, 30%, 50% и 70%.
  - полисулфон (PSU) ојачан борним влакнима у масеним уделима од 10%, 30%, 50% и 70%.

Полимерни материјали моделовани су коришћењем података наведених у табели 5.2:

Табела 5.2. Подаци о полимерним материјалима.

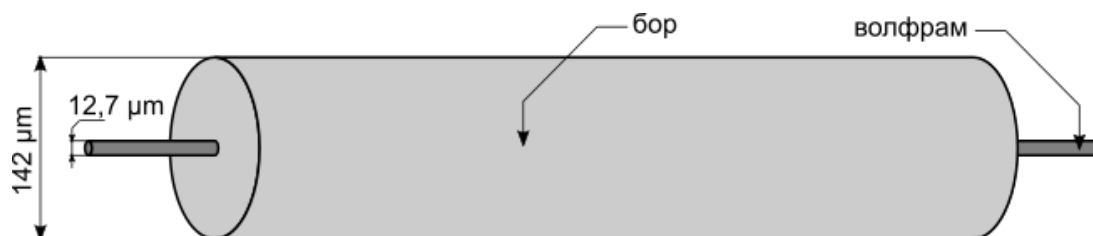
Полимерни материјал	Хемијска формула	Густина [g/cm <sup>3</sup> ]	Масени удео хемијских елемената				
			H	C	O	N	S
			[%]	[%]	[%]	[%]	[%]
HDPE	(C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> ) <sub>n</sub>	0,955	14,3716	85,6284	/	/	/
PS	(C <sub>8</sub> H <sub>8</sub> ) <sub>n</sub>	1,06	7,7421	92,2579	/	/	/
PEEK	(CH <sub>2</sub> O) <sub>n</sub>	1,32	4,1956	79,1562	16,6482	/	/
PEI	(C <sub>37</sub> H <sub>24</sub> O <sub>6</sub> N <sub>2</sub> ) <sub>n</sub>	1,27	4,0823	74,9919	16,1986	4,7272	/
PSU	(C <sub>27</sub> H <sub>22</sub> O <sub>4</sub> S) <sub>n</sub>	1,24	5,0112	73,2827	14,4614	/	7,2447

Геополимерни материјали моделовани су коришћењем података наведених у табели 5.3:

Табела 5.3. Подаци о геополимерним материјалима.

Геополимерни материјал	Густина [g/cm <sup>3</sup> ]	Масени удео хемијских елемената						
		Al [%]	O [%]	Si [%]	H [%]	Na [%]	K [%]	Cs [%]
1Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 4SiO <sub>2</sub> 1Na <sub>2</sub> O 12H <sub>2</sub> O	2,25	8,6975	61,8865	18,1062	3,8991	7,4107	/	/
1Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 4SiO <sub>2</sub> 1K <sub>2</sub> O 12H <sub>2</sub> O	2,26	8,2682	58,8317	17,2124	3,7066	/	11,981	/
1Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 4SiO <sub>2</sub> 1Cs <sub>2</sub> O 12H <sub>2</sub> O	3,05	6,4221	45,6955	13,3692	2,879	/	/	31,6342

Композитни материјали моделовани су тако да се састоје од полимерне матрице ојачане равномерно распоређеним борним влакнима која чине 10%, 30%, 50% или 70% укупне масе композитног материјала. Борна влакна моделована су као дуга влакна са језгром од волфрама пречника 12,7 μm и слојем бора дебљине 64,65 μm, односно укупног пречника 142 μm, као што је приказано на слици 5.1 [166]. За потребе симулације, композитни материјали су моделовани као непрекидна влакна равномерно распоређена по полимерној матрици без укрштања.



Слика 5.1. Модел борног влакна коришћен у симулацијама.

## 5.2. Методе и прорачуни

Енергија депонована у испуни контејнера током периода складиштења и одлагања отпада одређивна је на основу излаза симулација спроведених у програмском пакету MCNP. Енергија депонована у испуни контејнера налажена је применом бројача F6 овог пакета, који као излазе даје енергију депоновану по јединици масе и укупну депоновану енергију у задатој регији, при чему су обе вредности исказане по једном фотону емитованом из извора, као и релативну несигурност добијених резултата [167, 168]. Енергију депоновану у регији од интереса аналитички је могуће изразити као:

$$E_{F6} = \frac{\rho_a}{m} \int dE \int dt \int dV \int d\Omega \sigma_t(E) H(E) \psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E, t) \quad (5.1)$$

где је:

$E_{F6}$  – енергија депонована у посматраној запремини по једној емитованој честици или фотону

$\rho_a$  – концентрација атома [# / cm<sup>3</sup>]

$E$  – енергија честице или фотона

$t$  – време

$V$  – запремина регије у којој се одређује депонована енергија  
 $\Omega$  – јединични вектор правца  
 $\sigma_t(E)$  – тотални микроскопски пресек  
 $H(E)$  – енергија депонована у једној интеракцији  
 $\psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E, t)$  – угаони флуks где је  $(\vec{r}, \hat{\Omega}, E, t)$  вектор положаја честице

Како би се проценила стабилност посматраних материјала приликом излагања зрачењу, израчунаван је пораст притиска унутар контејнера, који је последица генерисања гаса услед радиолизе, Такође су израчунаване промене средње бројне молекулске масе (енг. *Number average molecular mass*,  $M_n$ ), средње масене молекулске масе (енг. *Weight average molecular mass*,  $M_w$ ) и z-средње молекулске масе (енг. *z-value average molecular mass*,  $M_z$ ).  $M_n$  представља аритметичку средину молекулских маса свих присутних молекула,  $M_w$  је допринос молекулској маси сваке поједине групе макромолекула у полимеру а  $M_z$  представља трећи момент молекулске масе и приказује присуство великих молекула. [15, 16]

### 5.2.1. Натпритисак у контејнеру услед радиолитичког генерисања гаса

Натпритисак унутар контејнера радиоактивног отпада у функцији времена може се описати једначином стања идеалног гаса:

$$p(t) = \frac{(n_0 + R_M t)RT}{V} \quad (5.2)$$

где је:

$n_0$  – почетни број молекула гаса унутар паковања радиоактивног отпада;  
 $t$  – време од затварања паковања радиоактивног отпада;  
 $R$  – универзална гасна константа;  
 $T$  – температура гаса унутар паковања радиоактивног отпада;  
 $V$  – празан простор унутар паковања радиоактивног отпада;  
 $R_M$  – моларна брзина генерисања гаса услед радиолизе

Моларна брзина генерисања гаса услед радиолизе може се описати следећом једначином:

$$R_M = \frac{E_d}{100} \cdot \frac{G(\text{gas})}{N_A} \quad (5.3)$$

где је:

$E_d$  – енергија апсорбована у посматраном материјалу у јединици времена [eV/s];  
 $G(\text{gas})$  – G-вредност за радиолитичко генерисање гаса;  
 $N_A$  – Авогадров број.

Енергија апсорбована у посматраном материјалу у јединици времена је временски зависна величина, обзиром да активност извора опада са временом, и рачуна се коришћењем излазног резултата симулације као:

$$E_d(t) = m \cdot F6 \cdot \gamma \cdot A_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (5.4)$$

где је:

$m$  – маса испуне

$F6$  – претходно описан излаз симулације у пакету MCNPX

$\gamma$  – вероватноћа емисије гама фотона или неутрона исказана по једном распаду (представља карактеристику извора)

$A_0$  – почетна активност радиоактивног извора (на пример у тренутку постављања извора у капсулу за одлагање)

$\lambda$  – константа радиоактивног распада

$t$  – време од постављања

Из једначина (5.3) и (5.4) следи да моларна брзина генерисања радиолитичког гаса такође зависи од времена ( $R_d = R_M(t)$ ) и израз (5.2) за натпритисак унутар паковања постаје:

$$p(t) = \frac{RT}{V} \cdot \left( n_0 + \int_0^t R_M(t) dt \right) \quad (5.5)$$

Почетни број молова гаса унутар паковања радиоактивног отпада,  $n_0$ , за паковање радиоактивног отпада затворено при притиску  $p_0 = 101$  кРа и температури  $T_0 = 298$  К је:

$$n_0 = \frac{p_0 V}{RT_0} \quad (5.6)$$

Ако сада заменимо једначине (5.3) и (5.6) у једначину (5.5) добијамо следећу једначину за натпритисак унутар паковања радиоактивног отпада:

$$p(t) = p_0 \cdot \frac{T}{T_0} + \frac{1}{100} \cdot \frac{G(\text{gas})}{N_A} \cdot \frac{RT}{V} \cdot \int_0^t E_d(t) dt \quad (5.7)$$

где се  $G(\text{gas})$  сматра константним у времену. Иако  $G(\text{gas})$  зависи од температуре према једначини (3.4), а температура унутар контејнера варира током времена, промена  $G(\text{gas})$  је занемарљива у очекиваном опсегу температура. Поред тога, утицај примећене промене  $G(\text{gas})$  на натпритисак је занемарљив у поређењу са утицајем других временски зависних величина у једначини (5.7).

Временска зависност натпритиска гаса изазваног зрачењем унутар контејнера добија се из једначине (5.7):

$$\Delta p(t) = p_0 \cdot \left( \frac{T}{T_0} - 1 \right) + \frac{1}{100} \cdot \frac{G(\text{gas})}{N_A} \cdot \frac{RT}{V} \cdot \int_0^t E_d(t) dt \quad (5.8)$$

што, узимајући у обзир једначину (5.4), постаје:

$$\Delta p(t) = p_0 \cdot \left( \frac{T}{T_0} - 1 \right) + \frac{1}{100} \cdot \frac{G(\text{gas})}{N_A} \cdot \frac{RT}{V} \cdot \frac{m \cdot F6 \cdot \gamma \cdot A_0}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (5.9)$$



Први од два сабирка на десној страни једначине (5.2) изражава повећање притиска искључиво због пораста температуре изазваног преносом топлоте из извора. Други сабирак, иако зависи од температуре, заправо се односи на пораст притиска услед стварања гаса радиолизом у полимерној испуни. Други сабирак има експлицитну зависност од времена, али први сабирак такође зависи од времена преко температуре.

Раније термодинамичке анализе преноса топлоте у контејнерима за одлагање радиоактивног материјала показале су да температура гаса унутар контејнера достиже максимум од око 75°C (тј.  $T_{max} = 348$  K) убрзо након затварања контејнера, а затим опада [131, 152, 164]. Наведени скок температуре одговара усвојеним активностима радиоактивних извора и радиоактивног отпада смештених у испитиване контејнере, које су дате у каснијим одељцима. У случају извора са активностима изнад граница које намеће оперативна радијациона сигурност, температуре у контејнеру би могле да буду и више. С обзиром да је време потребно да температура достигне ову максималну вредност (2–6 година) много краће од временских распона који су разматрани током истраживања (50 – 5000 година), претпостављено је да температура гаса унутар контејнера нагло расте до  $T_{max}$  у тренутку затварања контејнера. Приближно се може сматрати да температура гаса унутар контејнера опада по истом експоненцијалном закону као и активност извора [165, 169 – 171]:

$$T = (T_{max} - T_0) \cdot e^{-\lambda t} + T_0 \quad (5.10)$$

Када се ово уврсти у оба сабирка једначине (5.2), коначни израз за натпритисак гаса у контејнеру постаје:

$$\Delta p(t) = p_0 \cdot \left( \frac{T_{max}}{T_0} - 1 \right) e^{-\lambda t} + \frac{1}{100} \cdot \frac{G(\text{gas})}{N_A} \cdot \frac{RT_0}{V} \cdot \frac{m \cdot F6 \cdot \gamma \cdot A_0}{\lambda} e^{-\lambda t} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (5.11)$$

При ниским почетним активностима радиоактивног отпада, ширење гаса услед загревања има доминантан ефекат на натпритисак унутар контејнера, а промена натпритиска са временом је регулисана монотono опадајућим левим сабирком у једначини (5.11). Како активност  $A_0$  расте, утицај стварања радиолитичког гаса унутар испуне контејнера, изражен монотono растућим десним сабирком у једначини (5.11), постаје све израженији. За уски опсег умерених активности радиоактивног отпада, доприноси два сабирка су истог реда величине, што резултира тиме да функција временске зависности натпритиска  $\Delta p(t)$  има максимум, иза којег се полако смањује према коначној асимптотској вредности. За отпад са високом почетном активношћу, леви сабирак у једначини (5.11) је занемарљив у поређењу са десним и монотоност  $\Delta p(t)$  је одређена искључиво десним сабирком. У таквом случају,  $\Delta p(t)$  монотono расте и током времена достиже асимптотску горњу вредност зависну од почетне активности  $A_0$ , при чему леви сабирак у једначини (5.11) утиче само на брзину пораста. Шта се у овом контексту сматра ниском, умереном или високом активношћу зависи од конкретног материјала који је одабран за испуну контејнера.

За испитиване материјале могу се израчунати две границе активности радиоактивног отпада. Максимална почетна активност отпада за коју натпритисак унутар контејнера опада након почетног скока изазваног преносом топлоте (за који се, као што је речено, претпоставља да се дешава тренутно при затварању контејнера) добија се захтевајући да функција натпритиска дата једначином (5.11) има максимум у тренутку  $t = 0$ . Овај услов даје следећи израз за максималну почетну активност отпада:

$$(A_0)'_{max} = \frac{\left(1 - \frac{T_0}{T_{max}}\right) p_0}{\frac{1}{100} \cdot \frac{G(\text{gas})}{N_A} \cdot \frac{RT_0}{V} \cdot \frac{m \cdot F6 \cdot \gamma}{\lambda}} \quad (5.12)$$

Друга граница активности добија се изједначавањем асимптотске горње вредности  $\Delta p(t)$  са максималним подношљивим притиском гаса унутар контејнера за радиоактивни отпад:  $\lim_{t \rightarrow \infty} \Delta p(t) = p_{max}$ . Из овог услова следи следећи израз за максималну почетну активност отпада:

$$(A_0)''_{max} = \frac{p_{max}}{\frac{1}{100} \cdot \frac{G(\text{gas})}{N_A} \cdot \frac{RT_0}{V} \cdot \frac{m \cdot F6 \cdot \gamma}{\lambda}} \quad (5.13)$$

Из дефиниција двеју граница активности следи да је  $(A_0)''_{max} > (A_0)'_{max}$ . Прва од две границе  $((A_0)'_{max})$  спада у претходно поменути опсег умерених активности, док је друга  $((A_0)''_{max})$  највећа почетна активност отпада која се препоручује за испитивани контејнер са становишта натпритиска гаса. Треба напоменути да обе границе активности,  $(A_0)'_{max}$  и  $(A_0)''_{max}$ , зависе од запремине празног простора унутар контејнера ( $V$ ).

### 5.2.2. Промена средњих молекулских маса

Молекулске масе полимерних материјала су од великог значаја, јер од њих зависи знатан број физичких својстава полимерних материјала, као што су затезна чврстоћа, жилавост, отпорност на лом и абразију, температура стакластог прелаза, површински напон, формирање влакана и кинетика полимерних реакција. [172].

Зависности односа средњих молекулских маса пре и после излагања зрачењу од апсорбоване дозе у посматраном материјалу за највероватнију почетну расподелу молекулске масе дате су следећим једначинама:

$$\frac{M_n(0)}{M_n(D)} = 1 + \left(\frac{\tau}{\chi} - 1\right) u \chi D \quad (5.14)$$

$$\frac{M_w(0)}{M_w(D)} = 1 + \left(\frac{\tau}{\chi} - 4\right) u \chi D \quad (5.15)$$

$$\frac{M_z(0)}{M_z(D)} = \frac{(1 + u\tau D - 4u\chi D)^2}{1 + u\tau D} \quad (5.16)$$

где је:

$M_n(0)$  – почетна вредност  $M_n$

$M_n(D)$  – вредност  $M_n$  после излагања зрачењу

$M_w(0)$  – почетна масено средња молекулска маса

$M_w(D)$  – масено средња молекулска маса после излагања зрачењу

$M_z(0)$  – почетна z-средња молекулска маса

$M_z(D)$  – z-средња молекулска маса после излагања зрачењу

$\tau$  – вероватноћа за деградацију 1 мономерне јединице по 1 Gy апсорбоване дозе

$\chi$  – вероватноћа за умрежавање 1 мономерне јединице по 1 Gy апсорбоване дозе

$u$  – бројно средњи степен полимеризације

$D$  – апсорбована доза у Gy

Релације које повезују вероватноће за деградацију и умрежавање једне мономерне јединице по 1 Gy апсорбоване дозе (у ознаци  $\tau$  и  $\chi$ ) са G-вредностима за деградацију и умрежавање су:

$$G(S) = 9,65 \cdot 10^9 \frac{u\tau}{M_n(O)} \quad (5.17)$$

$$G(X) = 4,825 \cdot 10^9 \frac{u\chi}{M_n(O)} \quad (5.18)$$

Заменом једначина (5.17) и (5.18) у једначине (5.14) – (5.16) добијају се изрази за односе средњих молекулских маса  $M_n$ ,  $M_w$  и  $M_z$  пре и после излагања зрачењу:

$$\frac{M_n(0)}{M_n(D)} = 1 + \left( \frac{G(S)}{G(X)} - 1 \right) \frac{G(X)M_n(0)}{9,65 \cdot 10^9} D \quad (5.19)$$

$$\frac{M_w(0)}{M_w(D)} = 1 + \left( \frac{G(S)}{G(X)} - 4 \right) \frac{G(X)M_n(0)}{9,65 \cdot 10^9} D \quad (5.20)$$

$$\frac{M_z(0)}{M_z(D)} = \frac{\left( 1 + \frac{M_n(0)}{9,65 \cdot 10^9} (G(S) - G(X)) \cdot D \right)^2}{\left( 1 + \frac{G(S)M_n(0)}{9,65 \cdot 10^9} \cdot D \right)} \quad (5.21)$$

Односи трију молекулских маса су израчунавани са вредностима дозе  $D$  апсорбоване у унутрашњој испуни контејнера током временског интервала  $t$  од постављања извора (тј. отпада) у контејнер. Вредности дозе налажене су као:

$$D = \frac{F6 \cdot \gamma \cdot A_0}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (5.22)$$

За временски интервал  $t$  у једначини (5.22) узето је да износи 50 година у случају извора Co-60, 500 година у случају извора Cs-137, и 5000 година за извор AmBe.

### 5.3. Одлагање радиоактивних извора у бушотине

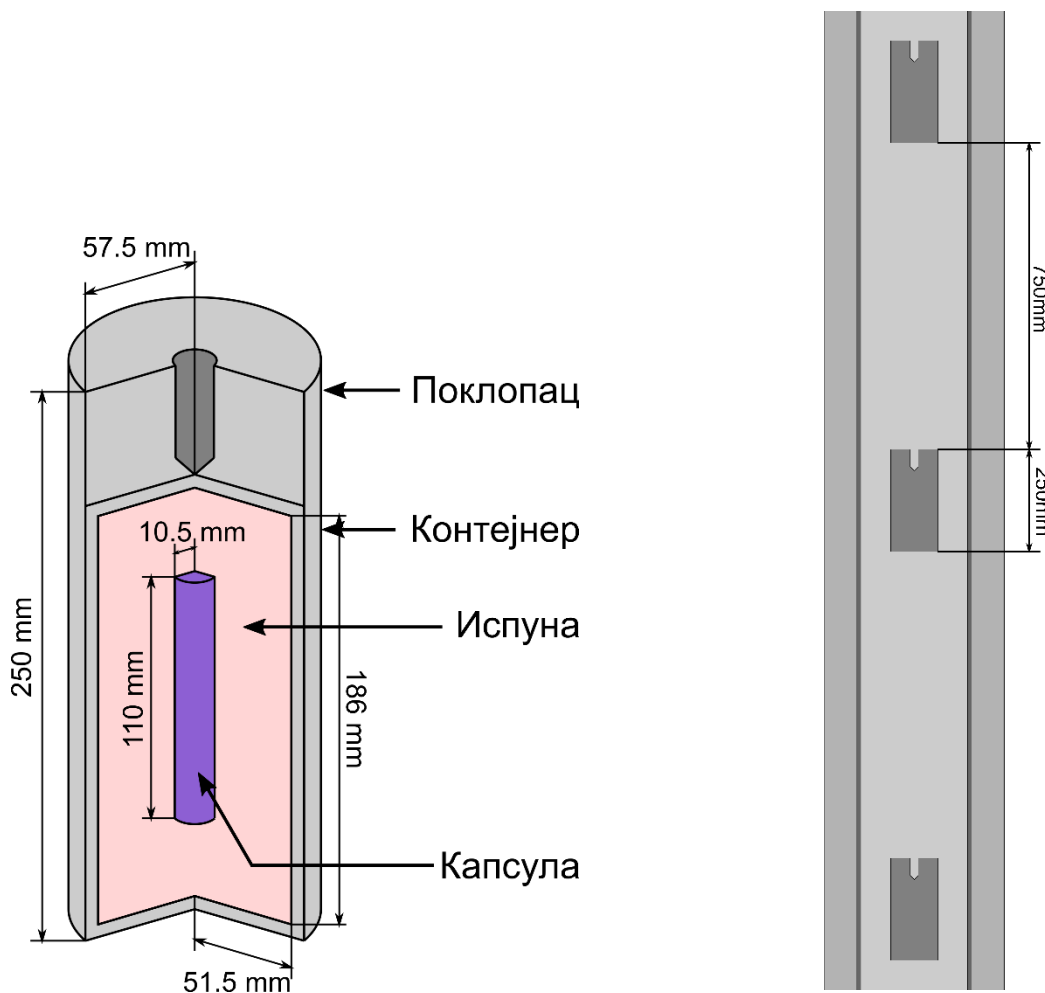
#### 5.3.1. Опис симулације

За потребе анализе стабилности полимерних, геополимерних и композитних материјала који би се могли користити као испуна контејнера за потребе одлагања радиоактивних извора у бушотине, по концепту претходно описаном у одељку 4.2.6.7 који је предложила Међународна агенција за атомску енергију, извршена је Монте Карло симулација коришћењем софтверског пакета MCNPX. [173] Симулирано је и анализирано излагање испуне стандардног контејнера коришћеног за потребе оваквог концепта одлагања са три врсте извора унутар контејнера – два извора који садрже гама емитере и (Co-60 и Cs-137) и AmBe неутронским извором. Ови извори одабрани су зато што се од гама и неутронских извора који налазе примене у медицини, привредни или научно-истраживачким делатностима управо они најчешће користе.

### 5.3.1.1. Геометријски модел

Геометрија и димензије капсуле, контејнера и осталих структура одлагалишта затворених извора у бушотини [152, 174, 175] верно су пренети у модел за симулацију. Модел за симулацију састоји се од 7 елемената, као што је приказано на слици 5.2 и то:

1. затворених радиоактивних извора,
2. капсуле у коју су извори кондиционирани,
3. испуне контејнера,
4. контејнера,
5. испуне одлагалишта,
6. зидова одлагалишта и
7. окружења одлагалишта.



Слика 5.2. Елементи геометријског модела за симулацију одлагања у бушотине.

Капсула у коју су кондиционирани затворени радиоактивни извори моделована је цилиндром спољашњег пречника 2,1 cm и висине 11 cm, затвореним са обе стране. Дебљина зидова капсуле је 3 mm, што даје унутрашњи пречник од 1,5 cm и висину од 10,4 cm. Материјал од ког је начињена капсула је нерђајући челик типа 304, који је моделован је као материјал густине  $8 \text{ g/cm}^3$  и следећег састава: угљеник (масени удео 0,04%), силицијум (0,5%), фосфор (0,023%), сумпор (0,015%), хром (19%), манган(1%), гвожђе (70,172%), никл (9,25%) [176 – 179].

Контејнер за одлагање затворених извора у бушотину моделован је цилиндром спољашњег пречника 11,5 cm и висине 25 cm, затвореним са обе стране. Дебљина зидова

контејнера је 6 mm, а на његовом врху се налази поклопац моделован цилиндром пречника једнаког пречнику контејнера и висине 5,2 cm. Све ово даје унутрашњи пречник од 10,3 cm и висину од 18,6 cm. На врху контејнера, у поклопцу, остављен је отвор пречника 4 cm и висине једнаке висини поклопца, који моделује место на које се качи хватаљка за спуштање контејнера у бушотину. За материјал од ког је начињен контејнер одабран је нерђајући челик типа 316L. Преглед димензија капсуле и контејнера дат је у табели 5.4.

Нерђајући челик тип 316L моделован је као материјал густине 8,03 g/cm<sup>3</sup> и следећег састава: угљеник (са масени удео 0,041%), силицијум (0,507%), фосфор (0,023%), сумпор (0,015%), хром (17%), манган (1,014%), гвожђе (66,9%), никл (12%) и молибден (2,5%) [176 – 179].

Табела 5.4. димензије капсуле и контејнера.

	Капсула [cm]	Контејнер [cm]
Спољашњи пречник	2,1	11,5
Унутрашњи пречник	1,5	10,3
Дебљина зида	0,3	0,6
Спољашња висина	11	25
Унутрашња висина	10,4	18,6

Између капсуле и контејнера налази се испуна, начињена од једног од материјала чије понашање у условима дуготрајног излагања зрачењу је испитивано. У изворном концепту одлагања затворених извора у бушотине као испуна је коришћен цементни материјал добијен мешањем дефинисане формулације цемента и воде. Како је капсула смештена на средину контејнера, то је дебљина испуне бочно 4,1 cm, односно по 3,8 cm изнад и испод капсуле. Испуна контејнера је, као и сâми контејнер и капсула, израђена независно, односно изливена изван контејнера и потом смештена у њега. Ово омогућава независну контролу израђеног елемента, чиме се обезбеђује да сваки елемент одлагалишта испуни захтеве квалитета пре него што преузме улогу једне од баријера.

Према предложеном концепту одлагања затворених извора у бушотине, испуна одлагалишта је цементни материјал добијен мешањем дефинисане формулације цемента и воде без додатог агрегата. У симулацијама за потребе дисертације, испуна одлагалишта је моделована цементним материјалом отпорним на сулфате, густине 2,3 g/cm<sup>2</sup> и следећег састава: водоник (са масеним уделом 1%), угљеник (0.1%), кисеоник (53,11%), натријум (1,6%), алуминијум (3,39%), силицијум (33,7%), калијум (1,3%), калцијум (4,4%) и гвожђе (1,4%). Како је у оваквој геометрији оса контејнера поклопљена са осом одлагалишта то је контејнер од зидова одлагалишта удаљен 2,25 cm.

Улога зидова одлагалишта у концепту одлагања затворених извора у бушотине више је да обезбеде једнак пречник одлагалишта целом дубином него да допринесу сигурности или конструкционим својствима. Зидови одлагалишта су, као и испуна контејнера, префабриковани, што значи да се не израђују се на лицу места, већ се користе као унапред припремљени елементи који се приликом бушења бушотине спајају и спуштају у њу. У концепту који је предложила Међународна агенција за атомску енергију предвиђено је да зидови одлагалишта буду од челика или од полиетилена високе густине. У симулацијама за потребе дисертације, као материјал од ког су израђени зидови одлагалишта предложен је и тестиран полиетилен високе густине. Унутрашњи пречник елемената од којих су израђени зидови бушотине је 16 cm а дебљина је 1 cm.

Окружење одлагалишта по правилу треба да буде чврста стена која ће обезбедити дугорочну стабилност одложеног отпада. Окружење одлагалишта за потребе симулација у овој дисертацији моделовано је гранитом.

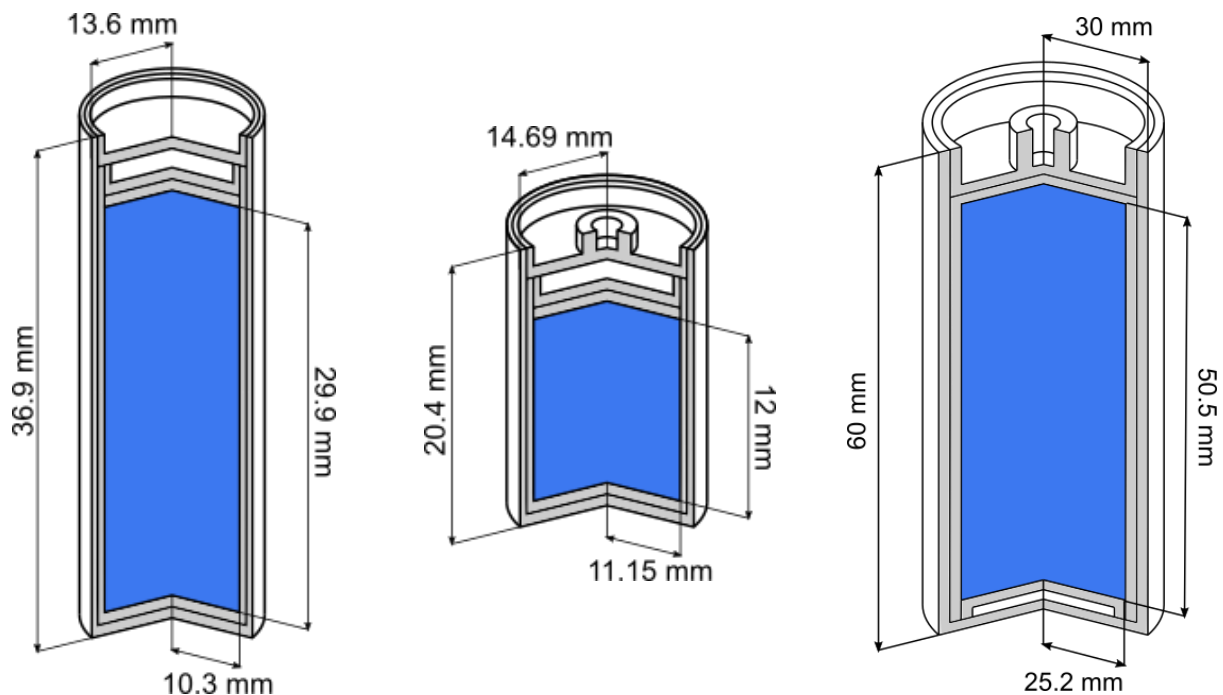
### 5.3.1.2. Извори зрачења

Извори зрачења састоје се од радиоактивног материјала у одговарајућој форми и капсуле у коју је радиоактивни материјал енкапсулиран. Ове капсуле се током кондиционирања смештају у друге капсуле, које су детаљно описане у претходном делу.

Све три наведене врсте извора ( $\text{Co-60}$ ,  $\text{Cs-137}$  и  $\text{AmBe}$ ) комерцијално су доступне у већем броју стандардних капсула [180 – 182]. Капсуле се израђују према димензијама које су захтеване конструкцијом појединачних уређаја у којима се извори користе, као и према димензијама самог радиоактивног извора унутар капсуле, што може бити последица технолошког или сигурносног захтева.

У симулацијама за потребе дисертације одабрани су комерцијално доступни радиоактивни извори у капсулама које садрже највећу активност а да притом димензије капсула омогућавају да буду смештене у капсуле за кондиционирање и одлагање. Ово није случај само код неутронских извора, за потребе одлагања неутронских извора, извор се смешта директно у слободан простор у испуни контејнера, а његова оригинална капсула служи као прва баријера при одлагању.

Радиоактивни извор који садржи радионуклид  $\text{Co-60}$  у металној форми састоји се од капсуле од нерђајућег челика (типа 304, пречника 13,6 mm и висине 36,9 mm) и радиоактивног материјала смештеног унутар капсуле (који има пречник 10,3 mm и висину 29,9 mm) [181]. Овакве изворе производи Научно-истраживачки институт за атомске реакторе (НИИАР) из Димитровграда, Руска Федерација и комерцијално су доступни под ознаком GC60T. Конструкција радиоактивног извора је таква да је радиоактивни материјал херметички затворен у капсулу од нерђајућег челика, која је потом херметички затворена у другу капсулу, такође од нерђајућег челика. Дебљина зида појединачне капсуле је 1,65 mm. На овај начин обезбеђене су две баријере које треба да спрече излазак радиоактивног материјала из извора. Конструкција радиоактивног извора који садржи радионуклид  $\text{Co-60}$  приказана је на слици 5.3.а. У симулацијама за потребе дисертације у капсулу за кондиционирање смештана су два оваква извора, колико, због димензија, највише и може да их стане.



Слика 5.3. Конструкција радиоактивног извора са радионуклидом (а)  $\text{Co-60}$ , (б)  $\text{Cs-137}$  и (в)  $\text{AmBe}$ .

Радиоактивни извор који садржи радионуклид Cs-137 у форми цезијум-хлорида (CsCl) састоји се од капсуле од нерђајућег челика типа 304, пречника 14,69 mm и висине 20,4 mm и радиоактивног материјала смештеног унутар капсуле који има пречник од 11,15 mm и висину од 12 mm [180 – 182]. Овакве изворе производи Производна организација Мајак, из Озерска, Руска Федерација и комерцијално су доступни под ознаком IGI-C-17.1. Као и код радиоактивних извора који садрже радионуклид Co-60, конструкција ових извора је таква да је радиоактивни материјал херметички затворен у капсулу од нерђајућег челика која је потом херметички затворена у другу капсулу, такође од нерђајућег челика. Дебљина зида појединачне капсуле је 1,77 mm. Конструкција радиоактивног извора који садржи радионуклид Cs-137 приказана је на слици 5.3.б. У симулацијама за потребе дисертације у капсулу за кондиционирање и одлагање смештано је пет оваквих извора, колико, због димезија, максимално и може да их стане.

Неутронски AmBe извор, који садржи смешу радиоактивног Am-241 у форми америцијум диоксида (AmO<sub>2</sub>) и стабилног Be-9, састоји се од капсуле од нерђајућег челика типа 304, пречника 30 mm и висине 60 mm, и радиоактивног материјала смештеног унутар капсуле који има пречник од 25,2 mm и висину између 46 mm и 50,5 mm зависно од произвођача [180 – 182]. У дисертацији усвојена је висина од 50,5 mm. Овакве изворе производи Производна организација Мајак, из Озерска, Руска Федерација и комерцијално су доступни под ознаком IBN-241-17 [180], а производио их је и АЕА Amerhsam International из Амершема у Уједињеном краљевству и били су доступни под ознакама X.14 или AMN.24 [183]. Као и код претходно описаних радиоактивних извора који садрже гама-емитујуће радионуклиде Co-60 и Cs-137, конструкција ових извора је таква да је радиоактивни материјал херметички затворен у капсулу од нерђајућег челика која је потом херметички затворена у другу капсулу, такође од нерђајућег челика. Дебљина зида појединачне капсуле је 1,2 mm. Конструкција радиоактивног извора Cs-137 приказана је на слици 5.3в.

Све три наведене капсуле израђене су од нерђајућег челика [180 – 182]. За ове потребе обично се користе нерђајући челици типа 304 или 316L. У симулацијама за потребе ове дисертације за моделовање радиоактивних извора који садрже радионуклиде Co-60 и Cs-137 коришћен је нерђајући челик типа 304, док је за моделовање неутронског извора AmBe коришћен нерђајући челик типа 316L. Преглед капсула у које су смештени радиоактивни извори и њихових карактеристика дат је у табели 5.5.

Табела 5.5. Карактеристике радиоактивних извора.

Радионуклид	Co-60	Cs-137	AmBe
Пречник капсуле	13,6 mm	14,69 mm	30 mm
Висина капсуле	36,9 mm	20,4 mm	60 mm
Пречник радиоактивног материјала	10,3 mm	11,15 mm	25,2 mm
Висина радиоактивног материјала	29,9 mm	12 mm	50,5 mm
Материјал од ког је израђена капсула	Нерђајући челик, тип 304	Нерђајући челик, тип 304	Нерђајући челик, тип 316L

Сва три радиоактивна извора моделована су као изотропни извори наведених димензија. Радиоактивни извор који садржи радионуклид Co-60 емитује фотоне

енергија 1,173 MeV и 1,332 MeV са једнаким вероватноћама, док радиоактивни извор који садржи радионуклид Cs-137 емитује фотоне енергије 0,662 MeV.

Неутронски AmBe извор емитује гама зраке и неутроне. Спектар гама зрака AmBe извора може се сматрати моноенергетским на 4,438 MeV [184]. Неутронски спектар преузет је из референтног међународног стандарда 8529-1:2001 [185] и дат је у табели 5.6.

Табела 5.6. Неутронски спектар AmBe извора.

Енергија [MeV]	Вероватноћа [/]	Енергија [MeV]	Вероватноћа [/]
4,14E-07	0,0144	5,68	0,0206
0,11	0,0334	5,89	0,0181
0,33	0,0313	6,11	0,0177
0,54	0,0281	6,32	0,0204
0,75	0,025	6,54	0,0183
0,97	0,0214	6,75	0,0163
1,18	0,0198	6,96	0,0168
1,4	0,0175	7,18	0,0168
1,61	0,0192	7,39	0,0188
1,82	0,0222	7,61	0,0184
2,04	0,0215	7,82	0,0169
2,25	0,0225	8,03	0,0143
2,47	0,0228	8,25	0,0097
2,68	0,0295	8,46	0,0065
2,9	0,0356	8,68	0,0043
3,11	0,0368	8,89	0,0037
3,32	0,0346	9,11	0,0038
3,54	0,0307	9,32	0,0051
3,75	0,03	9,53	0,0062
3,97	0,0269	9,75	0,0055
4,18	0,0286	9,96	0,0047
4,39	0,0318	10,18	0,0037
4,61	0,0307	10,39	0,0028
4,82	0,0333	10,6	0,0015
5,04	0,0304	10,82	0,0004
5,25	0,0274	1,03	0,0144
5,47	0,0233		

У сва три случаја бета честице су занемарене у симулацијама јер све бивају заустављене челичном капсулом самог извора.

### 5.3.2. Резултати симулације и анализа

У анализи натпритиска гаса унутар контејнера за одлагање усвојене су конзервативне претпоставке да нема цурења или продирања гаса из контејнера кроз његове зидове или спојеве, што одговара најнеповољнијем случају натпритиска услед настајања гаса у унутрашњој испуни. Празан простор између унутрашње испуне и зида контејнера или капсуле за одлагање, који настаје услед несавршености у производњи или склапању ових елемената, једнак је 0,01 cm<sup>3</sup>. Ова вредност је унутар опсега најстрожијих толеранција постављених међународним стандардима [186, 187] и такође



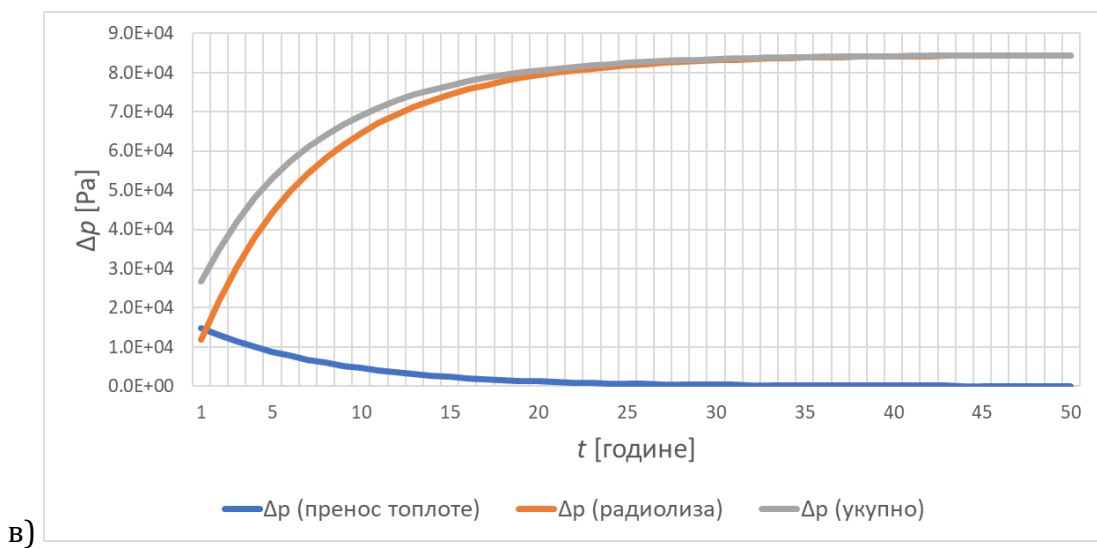
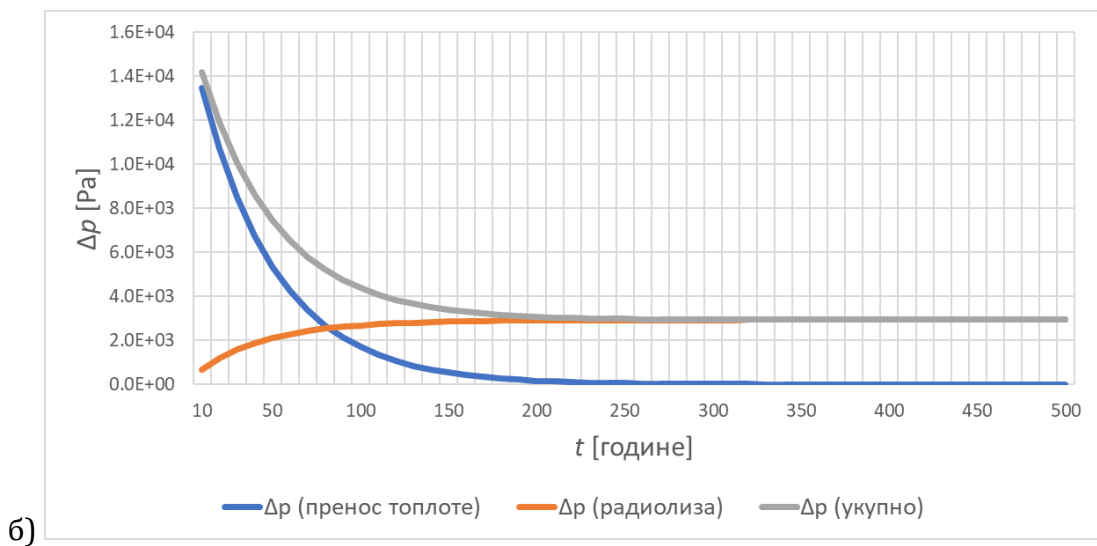
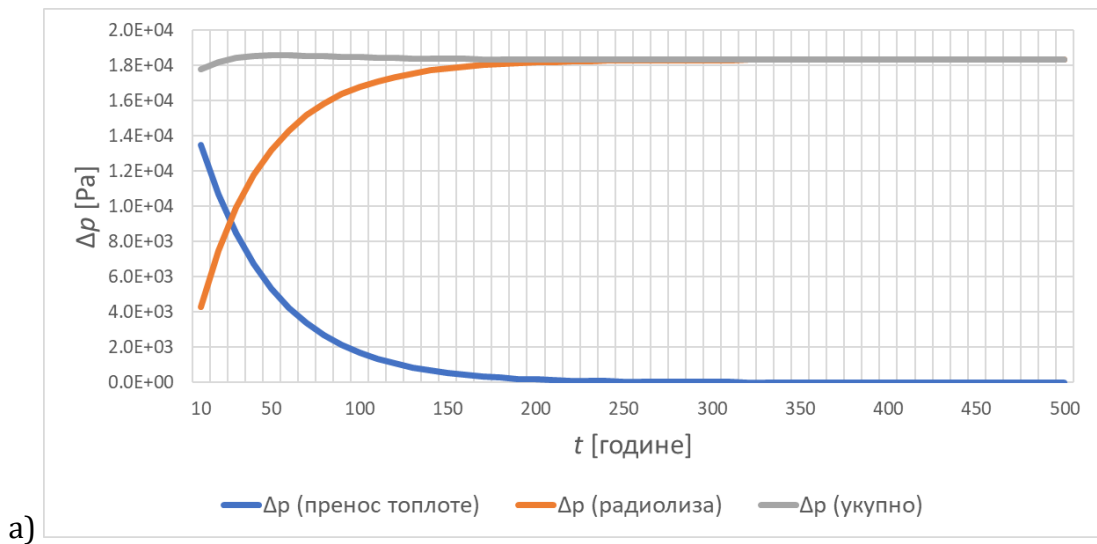
се може сматрати конзервативном проценом: што је мања запремина празнине унутар паковања, то је бржи пораст притиска гаса за било коју дату температуру. Наменско увођење празног простора унутар паковања за одлагање може значајно смањити натпритисак, чак и за материјале са изразитијим настајањем гаса, као што је HDPE. Овај приступ је већ примењен у капсулама затворених неутронских извора чији је рад заснован на ( $\alpha, n$ ) реакцијама, где се празан простор оставља да се попуни гасом хелијума формираном од алфа честица које не реагују.

Различити аспекти временске зависности натпритиска гаса у контејнеру анализирани су израдом великог броја  $\Delta p(t)$  графика на основу једначине (5.11) за све испитиване геополимере, полимере и њихове композите. Најупечатљивији од ових графика, који најјасније одражавају понашање испитиваних материјала, дати су на сликама 5.4 до 5.6, док је већина осталих графика изостављена ради јасноће, али су сви узети у обзир у анализама изнетим у овом одељку. Опсег временске осе на графиконима се разликује за три извора коришћена у симулацијама: њен распон је 50 година у случају извора Co-60, 500 година за извор Cs-137 и 5000 година за AmBe извор.

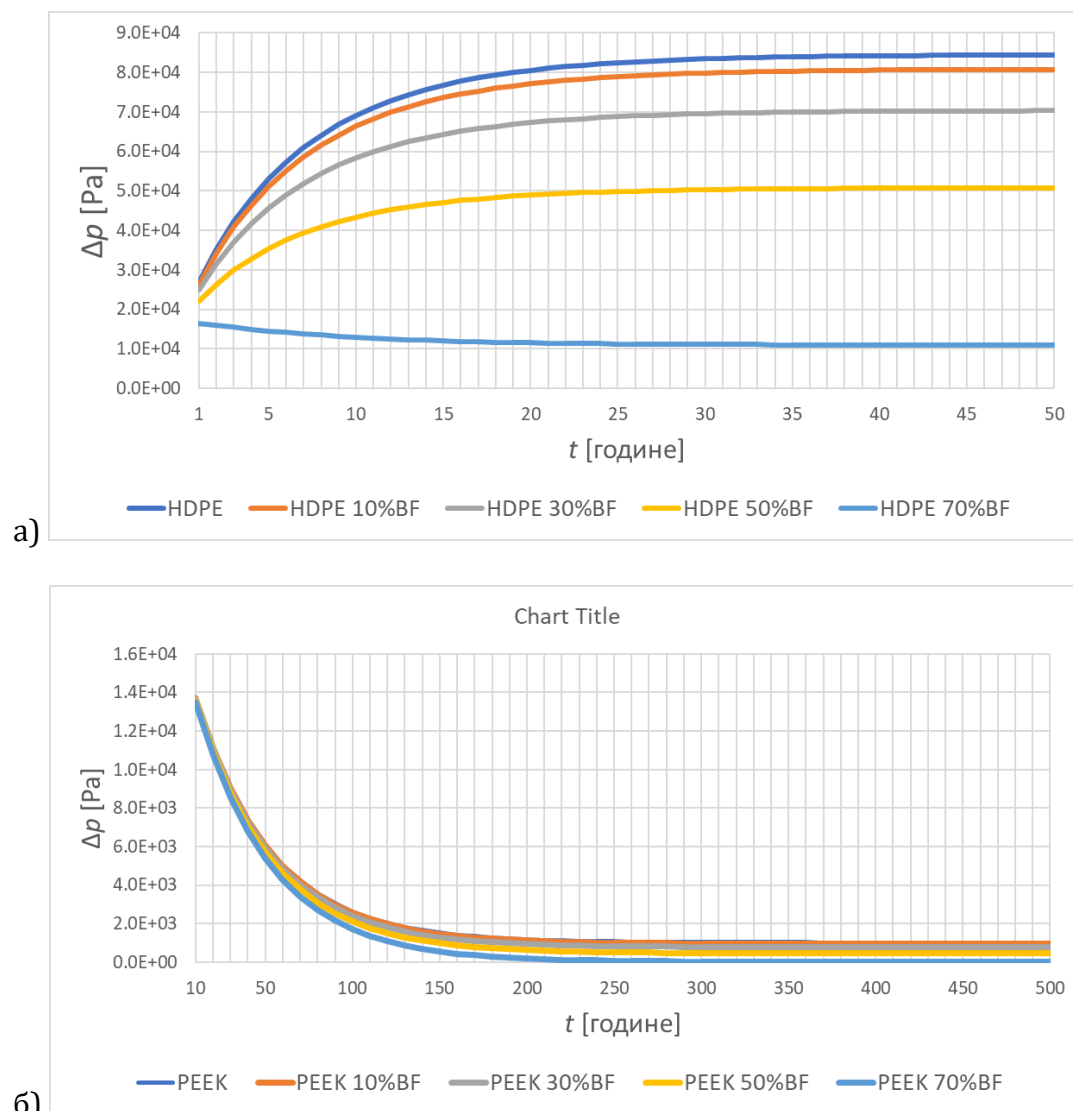
Релативни доприноси два сабирка у једначини (5.11) за натпритисак гаса унутар контејнера мењају се с временом, а такође зависе од материјала који се користи за испуну, као и од масеног удела борних влакана у њој. Ово је илустровано графицима на слици 5.4, који приказују ове доприносе као засебне криве, а такође и како се укупни натпритисак мења током времена. Допринос сабирка којим је исказан натпритисак услед преноса топлоте на свим овим графицима опада током времена, при чему нагиб опадања зависи само од времена полураспада извора, без обзира на врсту материјала испуне или удео борних влакана у њему. Други сабирак, који одговара натпритиску због радиолизе, расте с временом у свим случајевима, али се нагиб пораста разликује за различите материјале и изворе. Сходно томе, у зависности од материјала испуне и извора постављеног унутар капсуле контејнера, резултујући збирни натпритисак гаса у контејнеру може да остане скоро непромењен током времена (као што је случај за PSU испуну и Cs-137 извор), да се смањи (што је случај за PEI и PEEK испуне и било који од посматраних извора) или да порасте (HDPE испуна и Cs-137 извор), пре него што се успостави коначна стабилна вредност  $\Delta p$  кад се извор већ у великој мери распадне.

Резултујући збирни натпритисак гаса у контејнеру остаје непромењен за неојачани PSU и за PSU са 10% влакана бора кад је Cs-137 извор, као и за HDPE са 50% влакана бора кад је извор AmBe. Збирни натпритисак гаса у контејнеру расте с временом у следећим случајевима: HDPE са до 50% влакана бора и извором Co-60, HDPE (укључујући све његове композите) и PS са до 10% влакана бора и извор Cs-137, HDPE са до 30% борних влакана и извор AmBe и код сва три типа геополимерних материјала и извора Cs-137. У свим осталим случајевима укупни натпритисак гаса у контејнеру опада с временом.

Графици на слици 5.5 показују како се натпритисак гаса мења с временом за различите масене уделе влакана бора у испитиваним композитним испунама. За PEEK и PEI испуне, удео бора има мали утицај на натпритисак гаса, који се временом смањује на скоро исти начин без обзира на садржај влакана. За HDPE испуну, веће фракције борних влакана доводе до нижег натпритиска гаса, при чему облик криве зависи и од типа извора. За PS и PSU испуне, фракција борних влакана утиче на натпритисак гаса само када је извор Cs-137, а не у случају друга два извора коришћена у студији (Co-60 или AmBe).



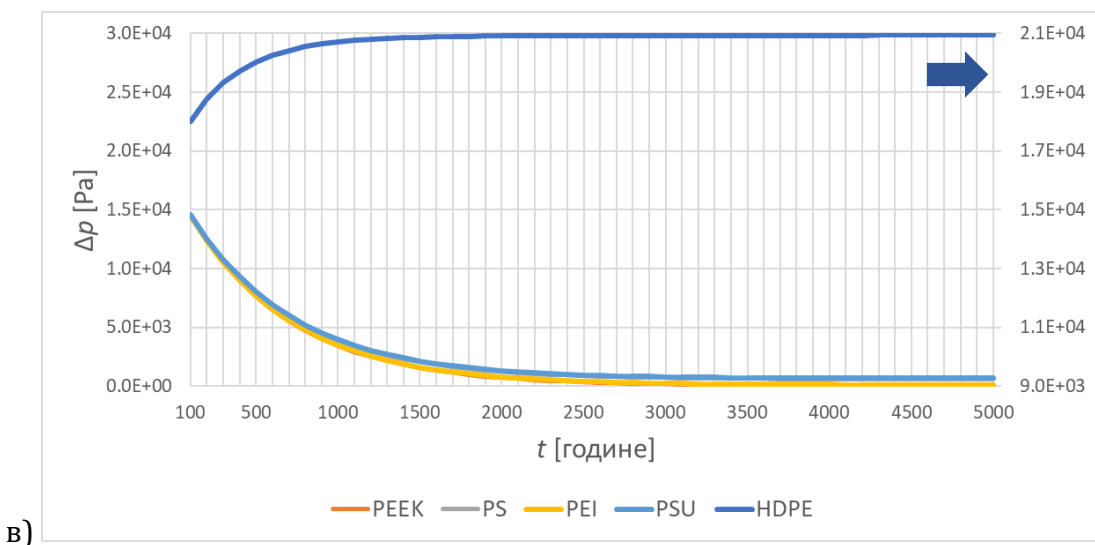
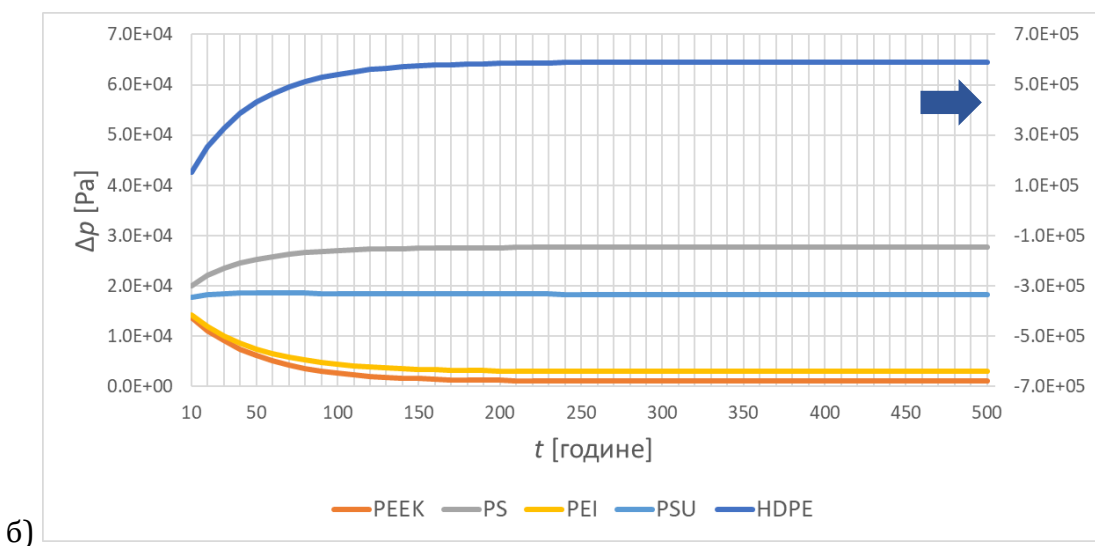
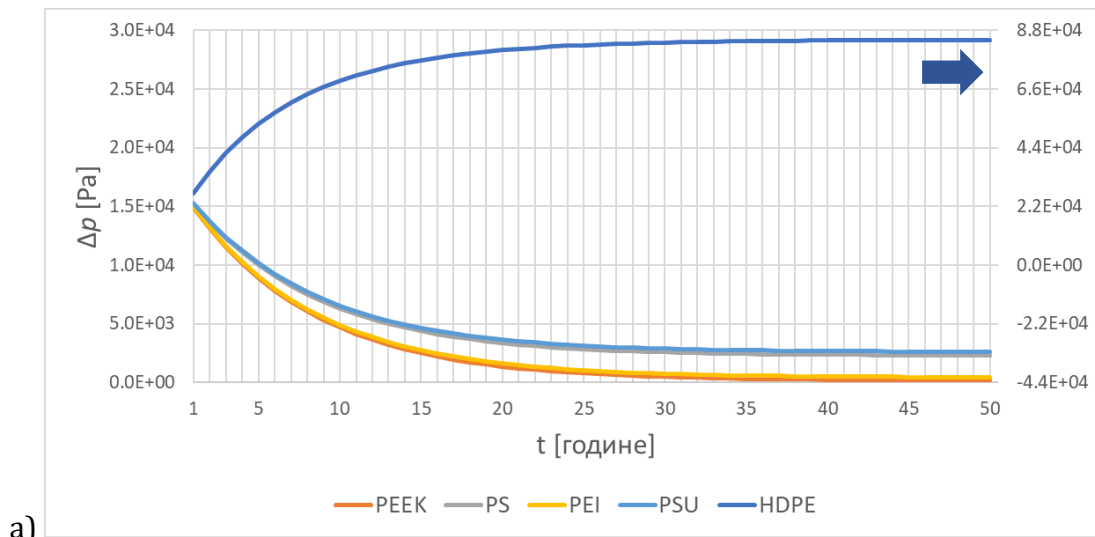
Слика 5.4. Зависност натпритиска гаса у контејнеру од времена – доприноси преноса топлоте и радиолите укупном натпритиску, а) полисулфон (PSU) без ојачања изложен Cs-137, б) Полиетеримид (PEI), без ојачања изложен Cs-137, в) Полиетилен високе густине (HDPE) без ојачања изложен Co-60.



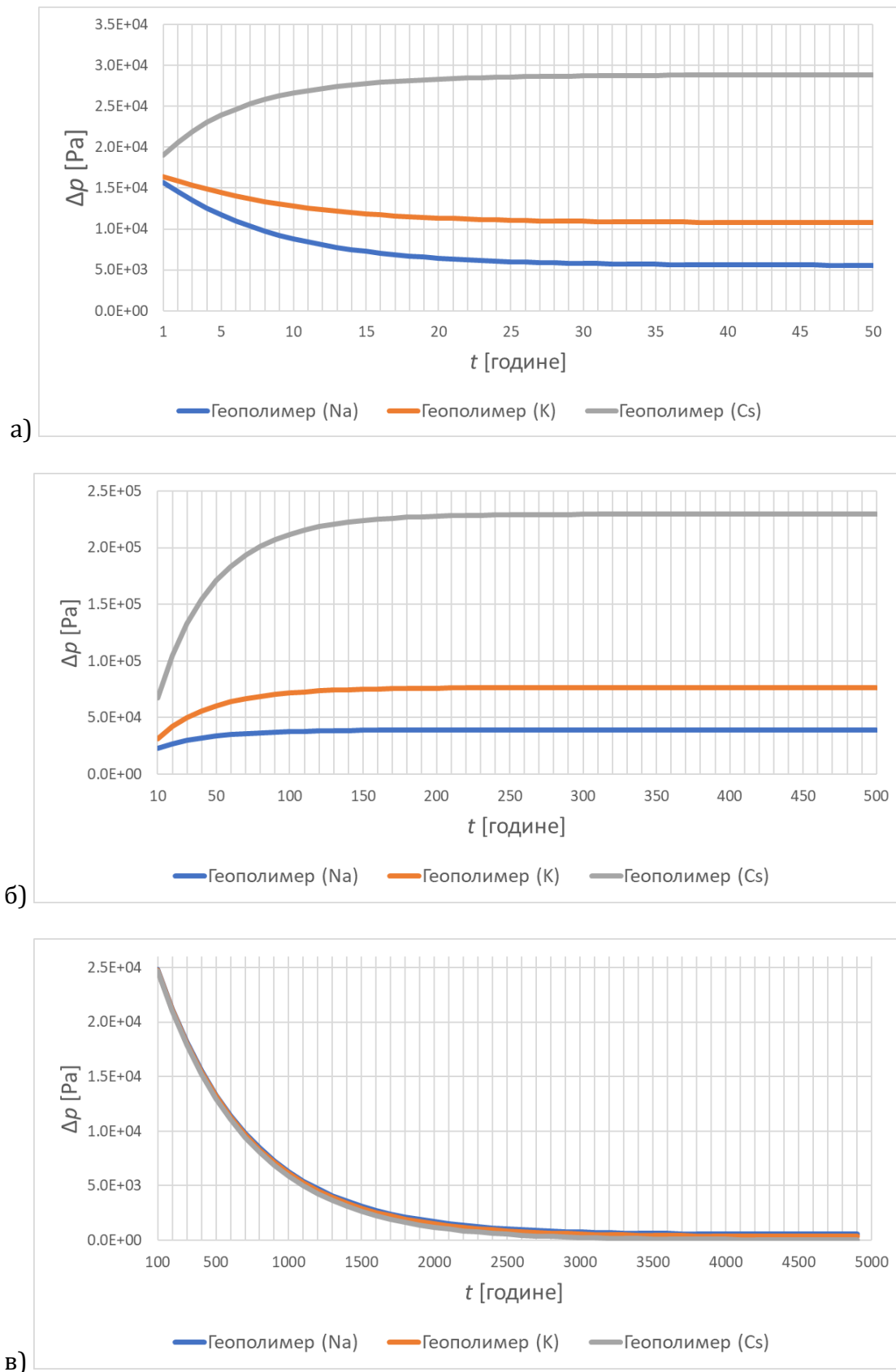
Слика 5.5. Зависност натпритиска гаса у контејнеру од времена – утицај удела борних влакана. а) полиетилен високе густине (HDPE) и композити засновани на њему изложени извору Co-60. б) Полиетеретеркетон (PEEK) и композити засновани на њему изложени извору Cs-137.

Поређење натпритисака гаса у контејнерима за испуне направљене од чистих полимера, без ојачања борним влакнима, приказано је на слици 5.6. HDPE развија највеће притиске гаса у контејнеру, који такође расту с временом. PEI и PEEK испуне производе најниже натпритиске за сва три испитивана извора. Код PS и PSU испуна, натпритисак гаса је много већи када су у капсулу смештени извори Cs-137, него у случају Co-60 или AmBe, а у случају PS натпритисак такође расте с временом. Од три извора коришћена у симулацијама, AmBe производи најниже натпритиске са свим испитиваним полимерним испунама.

На слици 5.7 приказан је однос натпритисака у контејнерима са испуном од геополимерних материјала. До појаве највећих натпритисака долази код геополимерних материјала код којих је предоминантни алкални катјон цезијум, потом код оних којим је алкални катјон калијум, док су најмањи натпритисци код оних са натријумом као алкалним катјоном. Натпритисци су највећи кад је унутар капсуле радиоактивни извор Cs-137, затим у случају Co-60 и потом за AmBe.



Слика 5.6. Зависност натпритиска гаса у контејнеру од времена за испуне направљене од чистих материјала (без ојачања): а) извор Co-60, б) извор Cs-137 и с) неутронски AmBe извор. Скала на десној страни односи се само на горњу криву на сваком графику (за HDPE).



Слика 5.7. Зависност натпритиска гаса у контејнеру од времена за геополимерне испуне: а) извор Co-60, б) извор Cs-137 и в) неутронски AmBe извор.

Према степену радиолитичког генерисања гаса, анализирани полимери се могу поређати по следећем опадајућем редоследу: HDPE > PSU > PS > PEI > PEEK. Редослед је

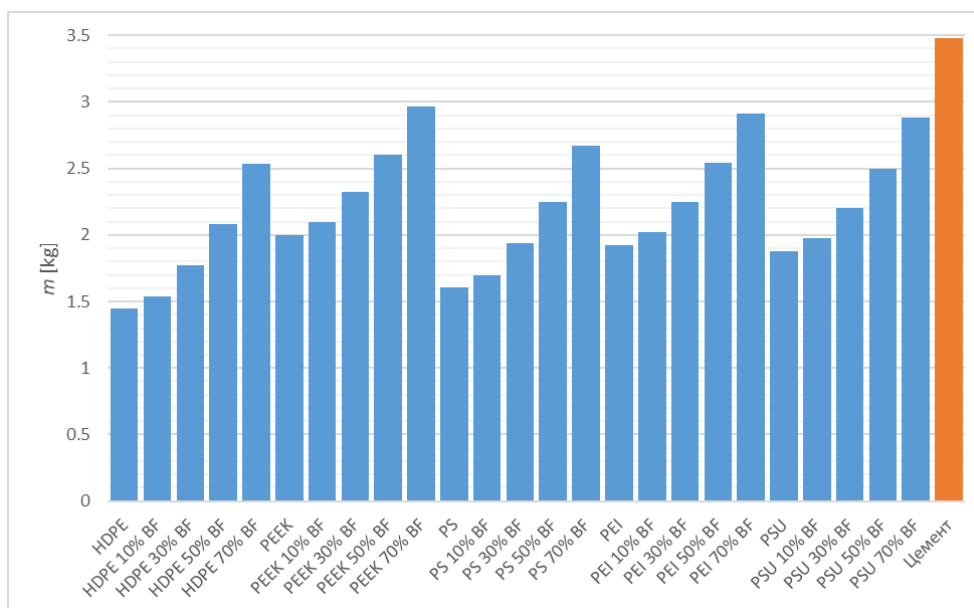
исти за композите на бази ових материјала. Количина генерисаног гаса опада са масеним уделом борних влакана у било ком од испитиваних композитних материјала. Ово је последица чињенице да се гас производи само у полимерној матрици. Већи удео борних влакана подразумева мању количину полимерног материјала у ком долази до еволуције гаса изазване зрачењем. Геополимерни материјали се према степену радиолитичког генерисања гаса могу поређати по следећем опадајућем редоследу: геополимерни материјали код којих је преобладајући алкални катјон  $Cs > K > Na$ .

Свеукупно, добијени резултати показују да натпритисак  $\Delta p$ , који потиче од производње радиолитичког гаса у унутрашњој испуни, достиже ред величине од највише  $10^5 Pa$ , што је реда почетног атмосферског притиска  $p_0$  у празном простору унутар паковања за одлагање у тренутку његовог затварања. Натпритисак је скоро занемарљив за PEI и PEEK након неколико времена полураспада извора разматраних у студији, јер је 2 или 3 реда величине нижи од почетног притиска.

Како су почетне активности радиоактивних извора унапред познате, посебна анализа двеју граница активности,  $(A_0)'_{max}$  и  $(A_0)''_{max}$ , у овом случају није вршена.

Релативне промене  $M_n$ ,  $M_w$  и  $M_z$  полимерних и композитних материјала, израчунате из једначина (5.19) – (5.21), износе испод 1% за сва три анализирана радиоактивна извора (Co-60, Cs-137 и AmBe) и временска интервала (50, 500 и 5000 година). Ове релативне промене су највеће у случају HDPE и на њему заснованих композита а најмање за PEEK и на њему засноване композите. Према степену промене средње молекулске масе испитивани полимери могу се поређати у следећи опадајући редослед: HDPE > PSU > PS > PEI > PEEK. Редослед је исти за композите на бази ових материјала. Разлике у промени молекулске масе између композита са различитим масеним уделом борних влакана су занемарљиве. Ови резултати показују да за све испитиване испуне средње молекулске масе остају релативно стабилне током периода који покрива предвиђено време институционалне контроле локације одлагалишта у бушотини након његовог затварања.

Паковања за одлагање са унутрашњим испунама од полимерних и композитних материјала су лакша за руковање, због мање масе, што пак није случај код геополимерних испуна. Поређење маса различитих материјала разматраних у дисертацији дато је на слици 5.8.



Слика 5.8. Поређење маса испуна од испитиваних полимерних и композитних материјала. Маса цементног материјала предвиђеног у раније предложеном решењу Међународне агенције за атомску енергију је дата наранџастом бојом ради поређења.

Масе унутрашњих испуна од одабраних полимерних материјала и композита су у распону од 1,44 до 2,97 kg. У поређењу са масом испуне од цементног материјала, која тежи око 3,48 kg, унутрашње испуне од испитиваних материјала су лакше за 14,7% до 58,5%.

## 5.4. Складиштење и одлагање радиоактивног отпада у бурадима запремине 55 галона

### 5.4.1. Опис симулације

За потребе анализе стабилности полимерних, геополимерних и композитних материјала који би се могли користити као испуна стандардног бурета запремине 55 галона, које се у великом броју држава користи као контејнер за складиштење и одлагање чврстог ниско и средње радиоактивног отпада, извршена је Монте Карло симулација коришћењем софтверског пакета MCNPX. [188]

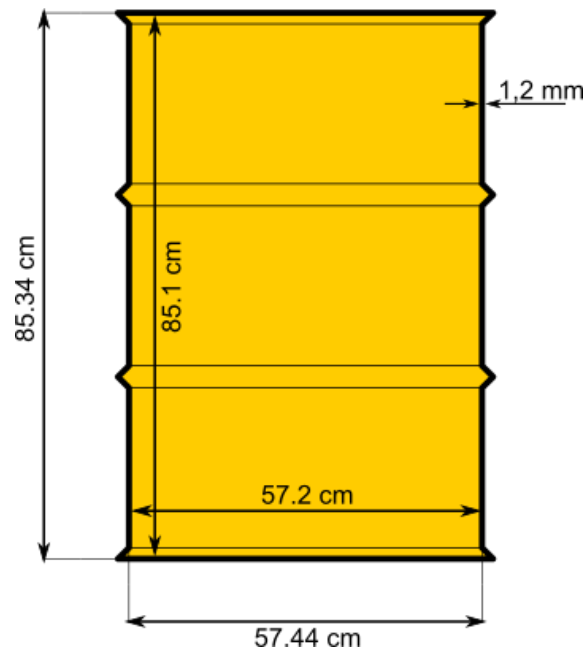
#### 5.4.1.1. Геометријски модел

Као контејнер за складиштење и одлагање радиоактивног отпада симулирано је стандардно буре запремине 55 галона. Контејнер, односно стандардно буре од угљеничног челика запремине 55 галона, моделовано је као цилиндар унутрашње висине 85,1 cm, унутрашњег пречника 57,2 cm, са зидовима дебљине 1,2 mm као што је дато у табели 5.7. [189]. Димензије овог типа контејнера дефинисане су ISO стандардом 15750 [189] и његов цртеж приказан је на слици 5.9.

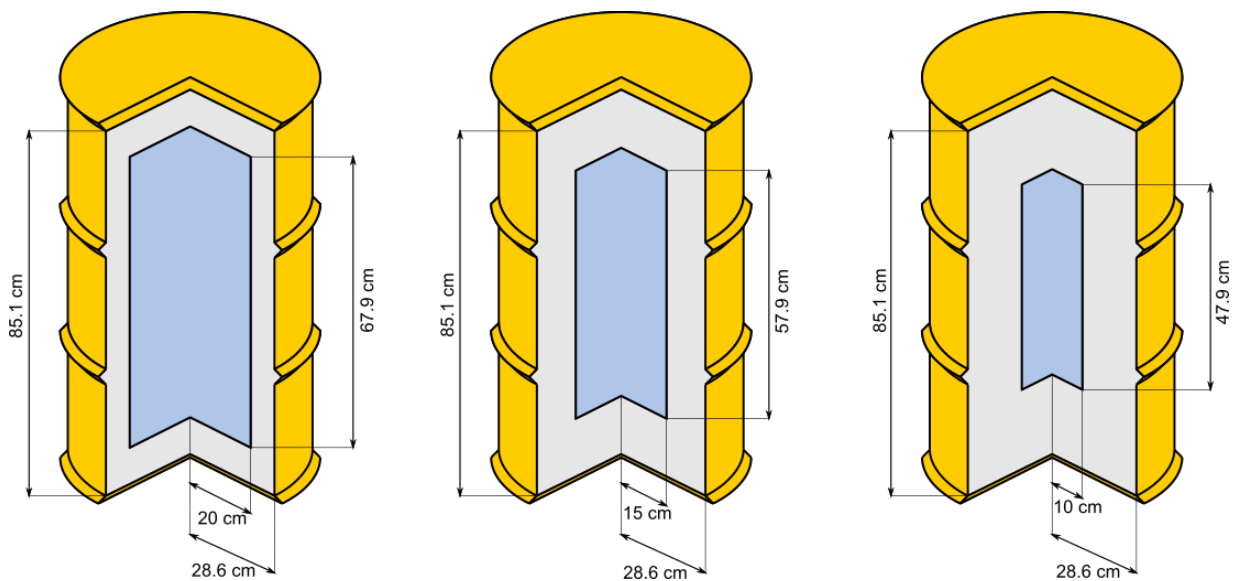
Табела 5.7. Димензије стандардног бурета запремине 55 галона.

Спољашњи пречник	57,44 cm
Унутрашњи пречник без додатне испуне	57,2 cm
Дебљина зида	0,12 cm
Спољашња Висина	85,34 cm
Унутрашња Висина	85,1 cm

У симулационом моделу у стандардно буре је са унутрашње стране стављена цилиндрична испуна, тако да у бурету остаје отвор за смештање радиоактивног отпада пречника 20, 30 или 40 cm. Димензије контејнера за сва три случаја назначене су на слици 5.10. Испуна се такође налази и на доњој и горњој страни контејнера, тако да је отпад у потпуности окружен њом, што би одговарало стању напуњеног, затвореног и запечаћеног контејнера. Радиоактивни отпад је моделован као цилиндар у центру контејнера, са димензијама идентичним централној шупљини унутар испуне. Другим речима, претпостављено је да отпад у потпуности испуњава шупљину. Разматрана су четири различита садржаја отпада: компактирани метални отпад (који је по саставу угљенични челик) и солидификовани течни радиоактивни отпад (солидификован додавањем цемента), са атомима Cs-137 или Co-60 униформно расподељеним по цилиндричној запремини отпада.



Слика 5.9. Димензије стандардног бурета од 55 галона.

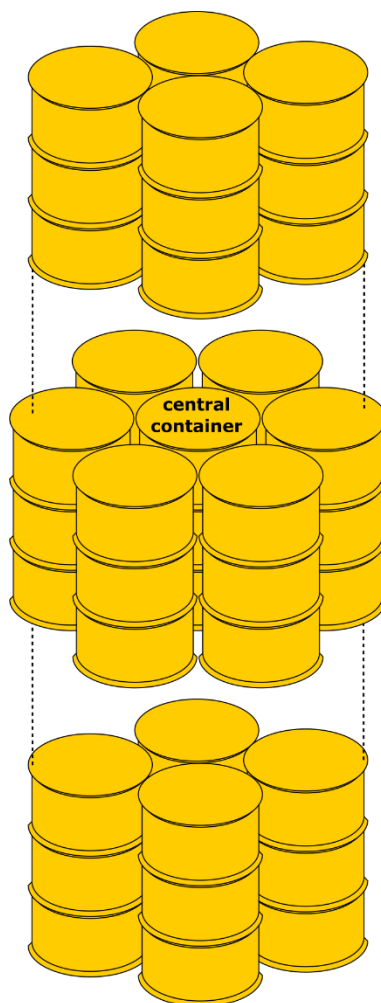


Слика 5.10. Стандардни контејнер од 55 галона са три различите ширине унутрашње испуне: модели коришћени у симулацијама.

При смештању у постројења за складиштење или одлагање радиоактивног отпада, контејнери се слажу у неку од конфигурација описаних у поглављу 4.6.2. Један од најчешћих начина слагања стандардних контејнера је слагање у пирамиду, које обезбеђује густо паковање контејнера у више нивоа без потребе за додатном опремом у виду полица или палета. У симулацијама за потребе ове дисертације је моделовано укупно 15 контејнера распоређених у три нивоа једне такве пирамиде. У свакој симулацији, свих 15 контејнера је имало исту геометријску структуру, а такође су садржали исти радиоактивни отпад. Средњи ниво је имао 7 контејнера, док су горњи и доњи слој имали по 4 контејнера (слика 5.11). Унутар сваког нивоа контејнери су постављени у хексагонални распоред тако да се једно буре ослања на четири бурета у доњем реду а заједно са још три суседна бурета из истог реда даје потпору бурету у реду изнад.. Суседни нивои су померени један у односу на други, како би централни контејнер



средњег нивоа био окружен што већим бројем других контејнера – укупно 14 најближих суседа. Унутрашња испуна овог централног контејнера била је циљна област за коју је рачуната апсорбована доза. Описано слагање контејнера изабрано је као најгори случај у погледу дозе у унутрашњој испуни централног контејнера, јер је обезбедило највећу густину слагања.



Слика 5.11. Слагање контејнера у три нивоа у симулационом моделу. Контејнери су постављени хексагонално унутар сваког нивоа. Апсорбована доза је рачуната у унутрашњој испуни централног контејнера средњег нивоа.

Апсорбована доза у унутрашњој испуни централног контејнера рачуната је за сваки материјал узет у разматрање као материјал од ког је начињена унутрашња испуна и за сваку врсту отпада. Допринос отпада из сâмог централног контејнера апсорбованој дози и допринос осталих 14 контејнера рачунати су засебно. Апсорбоване дозе су рачунате на различитим временским скалама за различите изворе коришћене у симулацијама. Ови временски распони су одабрани на основу времена полураспада извора. Тако је временски распон за Co-60 био 50 година, док је за Cs-137 био 500 година.

Разматрана су два различита случаја у погледу материјала који окружује наслагане контејнере. У првом случају, контејнери су били окружени ваздухом, као кад би се налазили у складишту. У другом случају, моделовано је да су контејнери смештени у постројење за одлагање, па су стога у симулацијама окружени цементном испуном.

#### 5.4.1.2. Извори зрачења

За потребе анализе применљивости полимерних, геополимерних и композитних материјала за испуну бурета за радиоактивни отпад запремине 55 галона, моделоване су четири врсте радиоактивног отпада:

- цементом солидификовани течни радиоактивни отпад који садржи радионуклид Co-60
- компактирани метални отпад који садржи радионуклид Co-60
- цементом солидификовани течни радиоактивни отпад који садржи радионуклид Cs-137
- компактирани метални отпад који садржи радионуклид Cs-137

Цементом солидификовани течни радиоактивни отпад моделован је ваљком пречника једнаког пречнику отвора у стандардном бурету са додатом испуном, као материјал густине  $2,3 \text{ g/cm}^3$  и следећег састава: водоник (са масеним уделом 1%), угљеник (0,1%), кисеоник (52,9%), натријум (1,6%), магнезијум (0,2%), алуминијум (3,34%), силицијум (33,7%), калијум (1,3%), калцијум (4,4%) и гвожђе (1,4%).

Компактирани метални радиоактивни отпад моделован је ваљком пречника једнаког пречнику отвора у стандардном бурету са додатом испуном, као угљенични челик, односно материјал густине  $7,82 \text{ g/cm}^3$  и следећег састава: угљеник (са масеним уделом 0,5%) и гвожђе (99,5%).

Преглед састава материјала од којих је начињен радиоактивни отпад у симулационом моделу коришћеном у овом делу студије дат је у табели 5.8.

Табела 5.8. Преглед састава материјала од којих је начињен радиоактивни отпад.

Елемент	Масени удео [%]	
	Цементом солидификовани течни радиоактивни отпад	Компактирани метални радиоактивни отпад
водоник	1	
угљеник	0,1	0,5
кисеоник	52,9	
натријум	1,6	
магнезијум	0,2	
алуминијум	3,34	
силицијум	33,7	
калијум	1,3	
калцијум	4,4	
гвожђе	1,4	99,5

#### 5.4.2. Резултати симулације и анализа

Први задатак у овом делу дисетације био је да се утврде и анализирају удели дозе апсорбоване у унутрашњој испуни посматраног контејнера који су последица излагања радиоактивном отпаду ускладиштеном унутар сâмог контејнера и који потичу од 14 контејнера којим је окружен, као што је описано у претходном одељку. За контејнере у складишту (окупрене ваздухом) са радиоактивним отпадом који садржи радионуклид Co-60, резултати симулације су показали да је 56–96% укупне апсорбоване дозе у

унутрашњој испуни последица излагања радиоактивном отпаду ускладиштеном унутар контејнера, док је остатак последица околних контејнера. За контејнере у одлагалишту (окожуе цементном испуном) који садрже исти радионуклид, 73–98% апсорбоване дозе је резултат излагања радиоактивном отпаду који се налази унутар посматраног контејнера. За радиоактивни отпад који садржи радионуклид Cs-137, проценат апсорбоване дозе која настаје услед излагања отпаду који се налази у посматраном контејнеру је већи и креће се од 62% до 99% за контејнере у складишту и од 80% до 99% за контејнере у одлагалишту. Допринос радиоактивног отпада у посматраном контејнеру апсорбованој дози у његовој унутрашњој испуни приказан је у табели 5.9 за све испитиване материјале, средине и врсте отпада. Опсеги процентуалних вредности у овој табели обухватају све три анализирани ширине испуне (видети слику 5.10 и пратећи текст), као и обе врсте отпада (компактирани метални отпад и цементом солидификовани течни отпад) за сваки од два радионуклида.

Табела 5.9. Допринос радиоактивног отпада ускладиштеног у посматраном контејнеру апсорбованој дози у унутрашњој испуни за различите материјале, средине и врсте отпада. BF = борна влакна.

материјал		ојачање	Co-60		Cs-137	
			складиштење	одлагање	складиштење	одлагање
Геополимери	Cs	/	82–96%	90–98%	90–99%	95–99%
	K	/	73–90%	85–95%	80–95%	91–98%
	Na	/	73–90%	85–95%	80–95%	91–98%
Полиетилен високе густине (HDPE)		/	56–70%	73–82%	62–76%	80–88%
		10% BF	56–70%	73–82%	62–77%	80–89%
		30% BF	57–71%	73–83%	63–78%	81–89%
		50% BF	58–72%	74–83%	64–79%	81–90%
		70% BF	60–73%	75–84%	66–80%	83–90%
Полиетеретеркетон (PEEK)		/	61–76%	76–86%	67–83%	83–92%
		10% BF	61–77%	76–86%	67–83%	83–92%
		30% BF	61–77%	77–87%	68–84%	84–93%
		50% BF	62–78%	77–87%	69–85%	85–93%
		70% BF	64–78%	78–87%	70–85%	85–93%
Полиетеримид (PEI)		/	60–75%	75–85%	66–82%	83–91%
		10% BF	60–75%	76–85%	66–82%	83–92%
		30% BF	61–76%	76–86%	67–83%	83–92%
		50% BF	62–77%	77–86%	68–83%	84–92%
		70% BF	63–78%	78–87%	69–84%	85–93%
Полистирен (PS)		/	57–72%	73–83%	63–78%	81–90%
		10% BF	57–71%	74–83%	63–78%	81–89%
		30% BF	58–72%	74–83%	64–79%	81–90%
		50% BF	59–73%	75–84%	65–80%	82–90%
		70% BF	61–74%	76–85%	66–80%	83–91%
Полисулфон (PSU)		/	59–75%	75–85%	66–81%	82–91%
		10% BF	60–75%	75–85%	66–82%	83–91%
		30% BF	60–76%	76–86%	67–82%	83–92%
		50% BF	61–76%	77–86%	68–83%	84–92%
		70% BF	63–77%	78–87%	69–84%	84–93%

Мањи допринос околних контејнера апсорбованој дози за контејнере у одлагалишту, у односу на оне у складишту, може се приписати цементној испуни између контејнера, која обезбеђује додатну заштиту од зрачења.

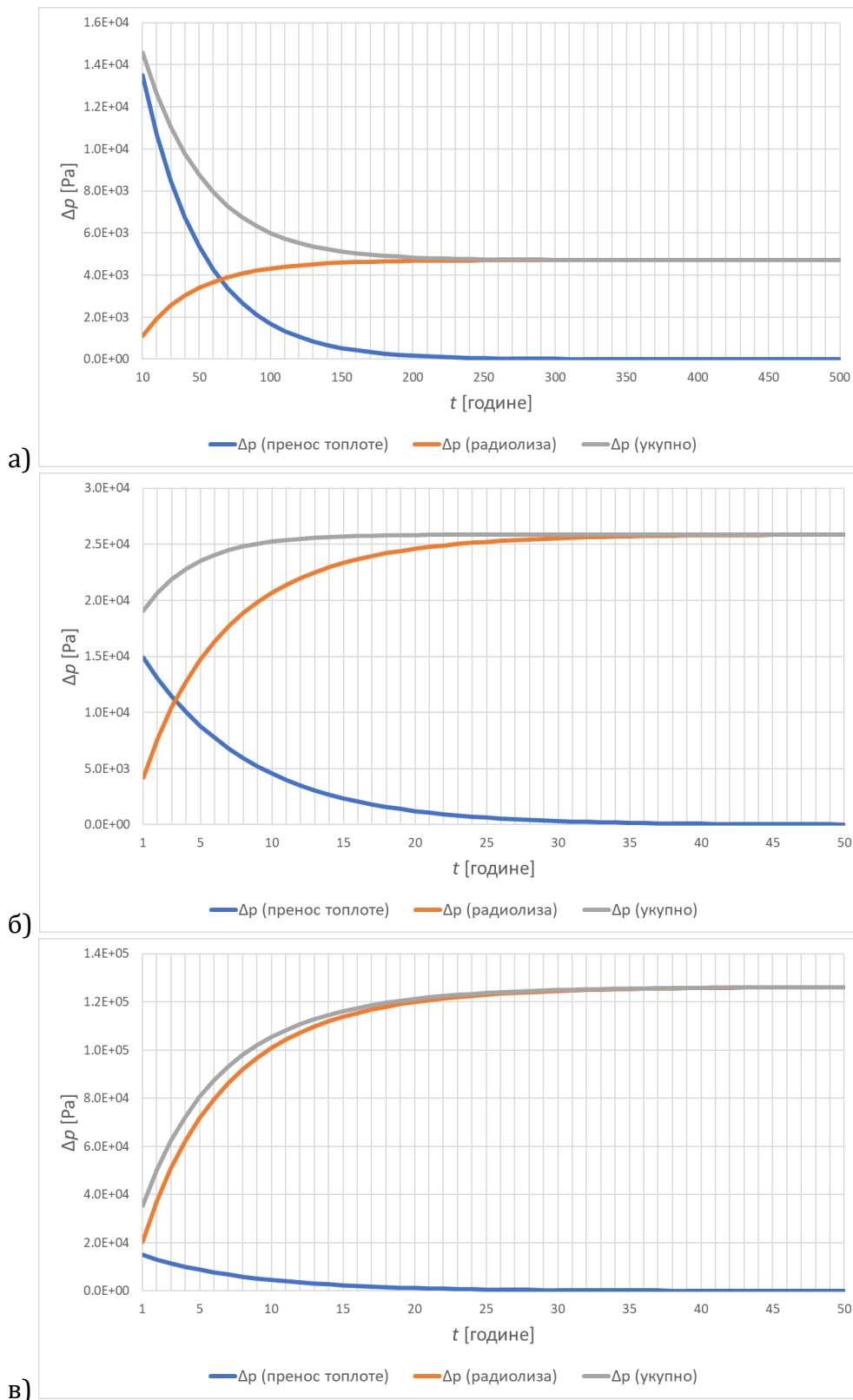
Овај део анализе послужио је и да се испитају својства испитиваних материјала у погледу заштите од зрачења. Резултати показују да је допринос радиоактивног отпада у посматраном контејнеру апсорбованој дози у његовој испуни највећи за испуне од геополимерних материјала, затим за композите на бази полимера и коначно за полимере без ојачања (у обе средине: складиште и одлагалиште), што показује да од испитиваних материјала геополимери имају најбоља својства у погледу заштите од зрачења. За испитиване композите на бази полимера, резултати очекивано показују да веће фракције борних влакана резултирају бољом заштитом од зрачења из околних контејнера.

Према проценту апсорбоване дозе која настаје као резултат излагању отпаду ускладиштеном у сâмом посматраном контејнеру, геополимери, полимери и композити на бази полимера који се разматрају у овој дисертацији могу се поређати следећим опадајућим редоследом: геополимерни материјали код којих је предоминантни алкални катјон Cs > код којих је K > код којих је Na > Полиетеретеркетон (PEEK) > Полиетеримид (PEI) > Полисулфон (PSU) > Полистирен (PS) > Полиетилен високе густине (HDPE). Композити на бази полимера прате исти редослед као и полимери који служе као њихове матрице.

Други задатак у овом делу дисертације био је да се анализира натпритисак гаса унутар бурета за све разматране материјале испуне. Усвојена је конзервативна претпоставка да нема цурења или продирања гаса из бурета, било кроз његове зидове, дно, поклопац, заптивку или варове. Ово одговара најгорем случају у погледу натпритиска изазваног гаса насталог радиолизом у испуни. Претпостављено је да је запремина празног простора између различитих унутрашњих делова контејнера, односно између отпада и испуне, или између испуне и зида контејнера, једнака 2000 cm<sup>3</sup>, што је мање од 1% укупне запремине контејнера. Овако усвојен, празан простор који настаје услед несавршености у производњи контејнера и његових елемената у складу је са најстрожијим толеранцијама постављеним међународним стандардима [186, 187]. У једном делу студије, описаном у наставку овог одељка, претпостављено је да је запремина празног простора 10 пута мања од ове вредности, како би се нагласио значај празног простора у погледу натпритиска.

Као што је већ речено, два сабирка на десној страни израза за временску еволуцију натпритиска гаса у контејнеру, датог једначином (5.11), одговарају компонентама натпритиска изазваним топлотом и радиолизом, респективно. Релативни доприноси ова два сабирка варирају током времена и зависе од материјала који се користи за испуну, од масеног удела ојачања борним влакнима у композитима на бази полимера, као и од активности радиоактивног отпада унутар контејнера. Графици на слици 5.12 приказују ове доприносе и њихов збир као засебне временски зависне криве. Анализа зависности натпритиска гаса у контејнеру од времена и активности извршена је израдом  $\Delta p(t)$  графика на основу једначине (5.11) за све испитиване геополимере, полимере и композите на бази полимера, са различитим активностима радиоактивног отпада који се налази у контејнеру. Од мноштва таквих графика направљених током студије, три карактеристична типа графика су приказана на слици 5.12 а)–в).

Поред температуре, сабирак који представља натпритисак услед преноса топлоте у једначини (5.11) зависи од времена протеклог од затварања контејнера и од времена полураспада (или константе распада) радионуклида садржаног у радиоактивном отпаду. Овај сабирак опада током времена, као што се види на сва три графика на слици 5.12.

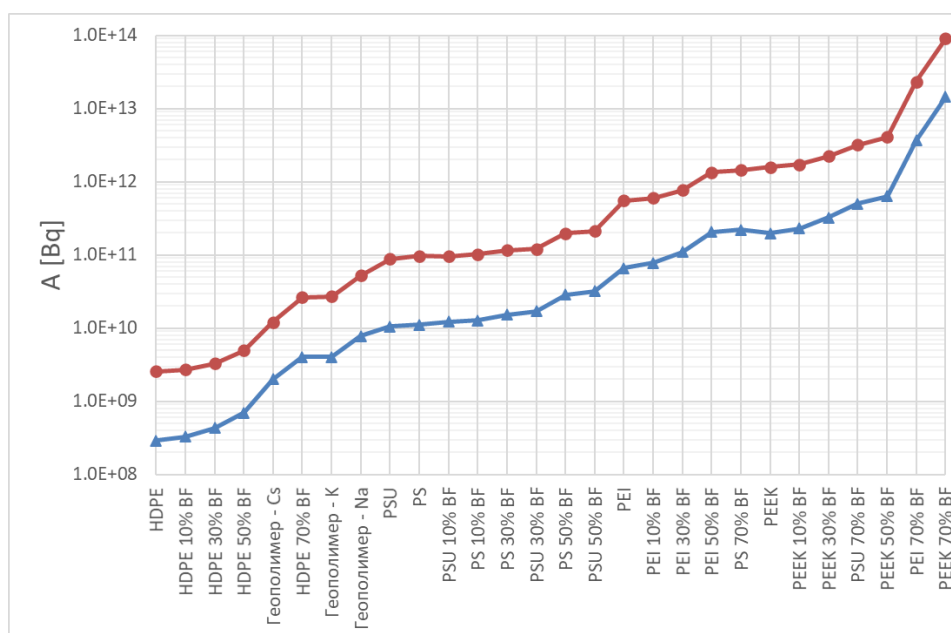


Слика 5.12. Временска зависност натпритиска у контејнеру. Приказана су три карактеристична типа графика  $\Delta p(t)$  на којим укупан натпритисак: а) монотono опада, као у приказаном случају полистирена (PS) без ојачања изложеног радиоактивном отпаду који садржи Cs-137 активности 10 GBq, б) достиже максималну вредност, а затим благо опада, као у приказаном случају полиетеретеркетона (PEEK) изложеног радиоактивном отпаду који садржи Co-60 активности 1 TBq и в) монотono расте, као у приказаном случају геополимера код којег је предоминантни алкални катјон калијум изложеног радиоактивном отпаду који садржи Co-60 активности 100 GBq.

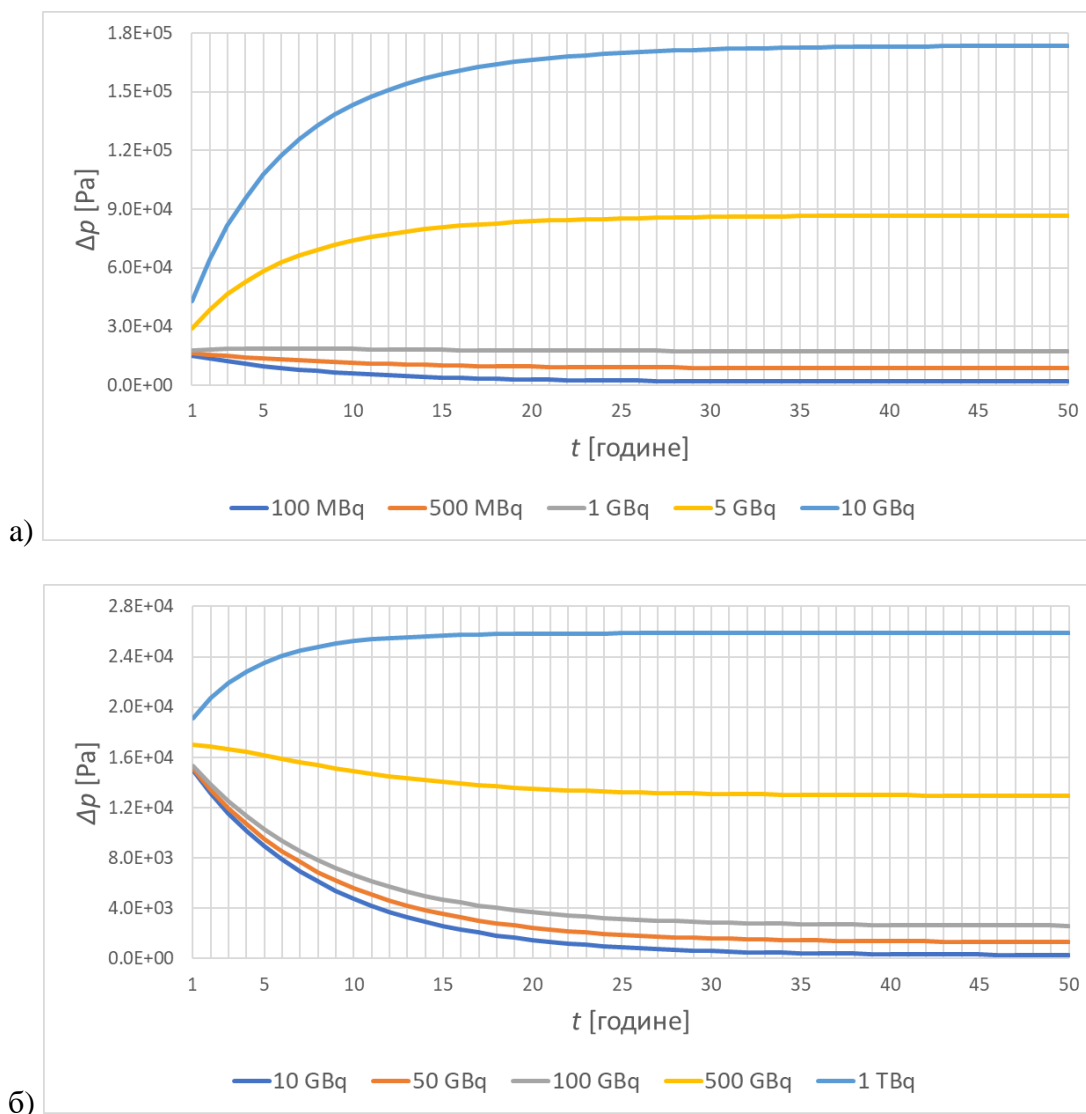
Сабирак који представља натпритисак услед радиоллизе, с друге стране, директно зависи од материјала испуне и од активности отпада унутар контејнера. Овај сабирак у свим случајевима расте с временом, при чему је нагиб успона различит за различите материјале и активности. Стога, укупни натпритисак гаса у контејнеру може да се смањи, повећа или остане скоро непромењен током времена, пре него што достигне стабилну асимптотску вредност када се радионуклиди у отпаду у знатној мери распаду. Које од ова три понашања натпритисак показује зависи од материјала испуне и од активности отпада. Графици одвојених сабирака се генерално могу поделити у два временска опсега – један где се оба сабирка мењају током времена (сабирак који представља натпритисак услед преноса топлоте се смањује, а сабирак радиоллизе повећава) и други где су оба сабирка скоро константна.

На слици 5.13. приказане су минималне и максималне вредности граничних активности  $(A_0)'_{max}$ , израчунате према једначини (5.12). Доњи скуп тачака на овом графикону обухвата минималне  $(A_0)'_{max}$  вредности за сваки од испитиваних материјала испуне. Ове вредности представљају границе активности испод којих је сигурно ставити радиоактивни отпад у контејнер без ризика од стварања превеликог радиолитичког натпритиска. Горњи скуп тачака обухвата максималне  $(A_0)'_{max}$  вредности, изнад којих доминира стварање радиолитичког гаса, које додаје натпритисак топлотној компоненти. У овом случају, стабилност паковања отпада зависиће од карактеристика контејнера и његових компоненти. За активности у опсегу између доњег и горњег скупа вредности, појава и еволуција натпритиска зависе од карактеристика отпада.

Минималне  $(A_0)'_{max}$  вредности на слици 5.13 (доњи скуп) одговарају солидификованом течном отпаду у контејнеру са централним отвором пречника 20 cm смештеном у складиште, где утицај околних контејнера није занемарљив. С друге стране, максималне  $(A_0)'_{max}$  вредности на слици 5.13 (горњи скуп) одговарају компактираном металном отпаду унутар контејнера са централним отвором пречника 40 cm који се налази у одлагалишту, где је утицај суседних контејнера безначајан. Различите минималне  $(A_0)'_{max}$  вредности одговарају или Co-60 или Cs-137 за различите испуне, иако се не примећује велика разлика између минималних  $(A_0)'_{max}$  вредности за један материјал кад се радионуклид промени. Исто важи и за максималне  $(A_0)'_{max}$  вредности. Испитивани материјали су распоређени дуж x осе графика на слици 5.13 у растући редослед према  $(A_0)'_{max}$  вредностима.



Слика 5.13. Минималне и максималне вредности границе активности  $(A_0)'_{max}$  за испитиване материјале.



Слика 5.14. Временска зависност натпритиска за различите активности отпада  $Co-60$  у контејнеру са унутрашњом испуном дебљине 20 cm од а) HDPE без ојачања и б) РЕЕК без ојачања.

Криве временске зависности натпритиска за различите активности отпада  $Co-60$  у контејнеру са унутрашњом испуном дебљине 20 cm израђеном од HDPE или РЕЕК-а приказане су на слици 5.14. Ова слика приказује графике укупног натпритиска гаса за компактирани метални отпад са активностима  $Co-60$  у распону од 10 MBq до 1 GBq смештен у контејнер са HDPE испуном дебљине 20 cm, и са активностима  $Co-60$  у распону од 10 GBq до 1 TBq у случају РЕЕК испуне од 20 cm. HDPE и РЕЕК су одабрани као материјали са код којих је промена натпритиска са повећањем активности најмање (HDPE) и највеће (РЕЕК). Као што се види на слици 5.14, при нижим активностима HDPE испуна производи веће вредности притиска од РЕЕК испуне.

Табела 5.10. Испитивани материјали разврстани у три групе према  $(A_0)''_{max}$  граничним активностима за контејнер са празним простором запремине 2000 cm<sup>3</sup>. Пречник централне цилиндричне шупљине је 20, 30 или 40 cm. BF = борна влакна.

Пречник отвора	$(A_0)''_{max}$		
	< 10 GBq	10 - 100 GBq	> 100 GBq
20 cm	HDPE (без ојачања, са ојачањем 10%, 30% и 50% борних влакана)	Геополимери код којих је преодминантан Cs Геополимери код којих је преодминантан K Геополимери код којих је преодминантан Na HDPE (са ојачањем 70% борних влакана) PSU (без ојачања)	PEEK (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PEI (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PS (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PSU (са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана)
30 cm	HDPE (без ојачања, са ојачањима 10%, 30% и 50% борних влакана)	Геополимери код којих је преодминантан Cs Геополимери код којих је преодминантан K Геополимери код којих је преодминантан Na HDPE (са ојачањима 70% борних влакана)	PEEK (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PEI (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PS (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PSU (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана)
40 cm	HDPE (без ојачања, са ојачањима 10% и 30% борних влакана)	Геополимери код којих је преодминантан Cs Геополимери код којих је преодминантан K HDPE (са ојачањима 50% и 70% борних влакана)	Геополимери код којих је преодминантан Na PEEK (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PEI (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PS (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PSU (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана)



Табела 5.11. Испитивани материјали разврстани у три групе према  $(A_0)''_{max}$  граничним активностима за контејнер са празним простором запремине 2000 cm<sup>3</sup>. Пречник централне цилиндричне шупљине је 20, 30 или 40 cm. BF = борна влакна

Пречник отвора	$(A_0)''_{max}$		
	< 10 GBq	10 - 100 GBq	> 100 GBq
20 cm	Геополимери код којих је преобладајући Cs Геополимери код којих је преобладајући K Геополимери код којих је преобладајући Na HDPE (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана), PSU (без ојачања),	PEI (pure, 10% and 30% BF) PS (pure, 10%, 30% and 50% BF) PSU (10%, 30% and 50% BF)	PEEK (pure, 10%, 30%, 50% and 70% BF) PEI (50% and 70% BF) PS (70% BF) PSU (70% BF)
30 cm	Геополимери код којих је преобладајући Cs Геополимери код којих је преобладајући K Геополимери код којих је преобладајући Na HDPE (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана),	PEI (без ојачања, са ојачањем 10% борних влакана) PS (без ојачања, са ојачањем 10%, 30% и 50% борних влакана) PSU (без ојачања, са ојачањем 10%, 30% и 50% борних влакана)	PEEK (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PEI (са ојачањем 30%, 50% и 70% борних влакана) PS (са ојачањем 70% борних влакана) PSU (са ојачањем 70% борних влакана)
40 cm	Геополимери код којих је преобладајући Cs Геополимери код којих је преобладајући K Геополимери код којих је преобладајући Na HDPE (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана),	PS (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, и 50% борних влакана) PSU (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, и 50% борних влакана)	PEEK (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PEI (без ојачања, са ојачањем 10%, 30%, 50% и 70% борних влакана) PS (са ојачањем 70% борних влакана) PSU (са ојачањем 70% борних влакана)

Вредности граничне активности  $(A_0)''_{max}$  израчунате према једначини (5.13) за запремине празног простора унутар контејнера од 2000 cm<sup>3</sup> и 200 cm<sup>3</sup> ( $\approx 1\%$  и  $0,1\%$  укупне запремине контејнера, респективно) и за максимални дозвољени натпритисак од  $\Delta p_{max} = 0,1$  МПа [190] приказани су у табелама 5.10 и 5.11. Ове табеле дају поређење испитиваних материјала на основу  $(A_0)''_{max}$  граничних активности разврставањем у три групе, и то на оне са  $(A_0)''_{max}$  мањим од 10 GBq, оне са  $(A_0)''_{max}$  између 10 и 100 GBq, и оне са  $(A_0)''_{max}$  изнад 100 GBq.

Резултати за случај када је запремина празног простора унутар контејнера 2000 cm<sup>3</sup> показују да су само испуне од HDPE, чисте или са масеним уделом бора од 10% и 30%, у сваком случају у групи са  $(A_0)''_{max} < 10$  GBq. За централни отвор пречника 20 и 30 cm, у овој групи је испуна од HDPE са масеним уделом борних влакана од 50%. С друге стране, испуне од PEEK, PEI, PSU и PS, чисте или са било којим од испитиваних масених удела борних влакана, су у сваком случају у групи са  $(A_0)''_{max} > 100$  GBq, осим чистог PSU у случају централног отвора од 20 cm. Сви остали материјали припадају групи са  $(A_0)''_{max}$  између 10 и 100 GBq.

Резултати за случај када је запремина празног простора унутар контејнера 200 cm<sup>3</sup> показују различиту дистрибуцију испитиваних материјала у исте три групе. Смањење запремине празног простора помера све истраживане геополимерне материјале у групу са  $(A_0)''_{max} < 10$  GBq. HDPE испуне су у овој групи за све фракције ојачања од борних влакана. РЕЕК испуне су, пак, у групи са  $(A_0)''_{max} > 100$  GBq за све фракције борних влакана, док су PEI, PSU и PS испуне у овој групи само за високе масене уделе борних влакана. PEI, PSU и PS, чисти и са нижим масеним уделом бора, сада су прешли у групу са  $(A_0)''_{max}$  између 10 и 100 GBq.

Релативне промене  $M_n$ ,  $M_w$  и  $M_z$  молекулске масе полимера и композита на бази полимера такође су израчунате, коришћењем једначина (5.19) до (5.21). Ове релативне промене, поред карактеристика разматраних материјала, зависе и од укупне активности радиоактивног отпада смештеног унутар контејнера. За активност радиоактивног отпада унутар контејнера од 100 ТВq, релативне промене су највеће у  $M_n$  молекулским масама и иду до 0,7%. Релативне промене у  $M_w$  и  $M_z$  молекулским масама за ове активности су занемарљиве (ниже од 0,03%). За исту активност радиоактивног отпада унутар контејнера, релативне промене све три молекулске масе PS, PSU, PEI, РЕЕК и свих композита заснованих на њима, у свим конфигурацијама и окружењима, су испод 0,04%. За HDPE и његове композите релативне промене молекулских маса су веће и иду до 0,7% за највеће разматране активности. Активности радиоактивног отпада унутар контејнера мање од 100 ТВq производе занемарљиве релативне промене  $M_n$ ,  $M_w$  и  $M_z$  молекулске масе полимера и композита на бази полимера.

Испитивани полимери се могу распоредити у следећи редослед према опадајућој промени средњих молекулских маса: HDPE > PSU > PS > PEI > РЕЕК. Редослед је исти за композите на бази ових полимера. Поређење релативних промена молекулских маса композита на бази полимера са различитим масеним уделом борних влакана показује да су разлике занемарљиве.

Изложени резултати показују да, за све разматране испуне и активности радиоактивног отпада, просечне молекулске масе остају релативно стабилне током периода који покрива предвиђено складиштење и институционалну контролу на локацији одлагалишта након његовог затварања.

## 5.5. Одлагање високо активног радиоактивног отпада

### 5.5.1. Опис симулације

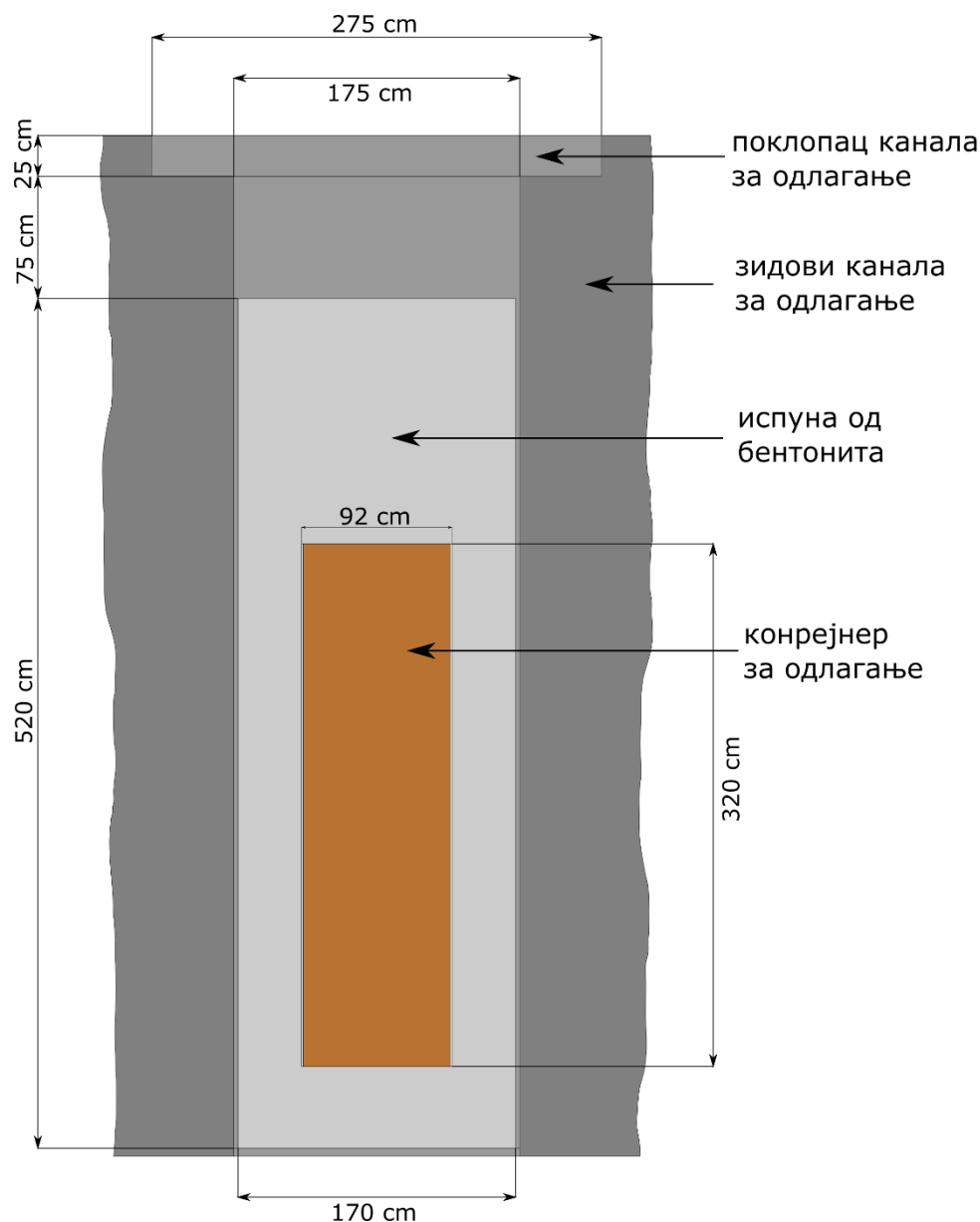
#### 5.5.1.1. Геометријски модел

Симулирана геометрија састоји се од следећих елемената:

1. Витрификовани високо активни радиоактивни отпад
2. Контејнер у који је смештен отпад (тзв. канистер)
3. Испуна котнејнера за одлагање (окружује канистер и израђена је од материјала чија стабилност се испитује)
4. Контејнер за одлагање (садржи испуну и канистер)
5. Испуна канала за одлагање (окружује контејнер за одлагање и израђена је од бентонита)
6. Зидови и поклопац одлагалишта

Сви наведени елементи, осим самог радиоактивног отпада, представљају инжењерске баријере које спречавају да радионуклиди из радиоактивног отпада доспеју

у животну средину. На слици 5.15 приказани су елементи одлагалишта високо активног радиоактивног отпада разматраног у овој дисертацији.

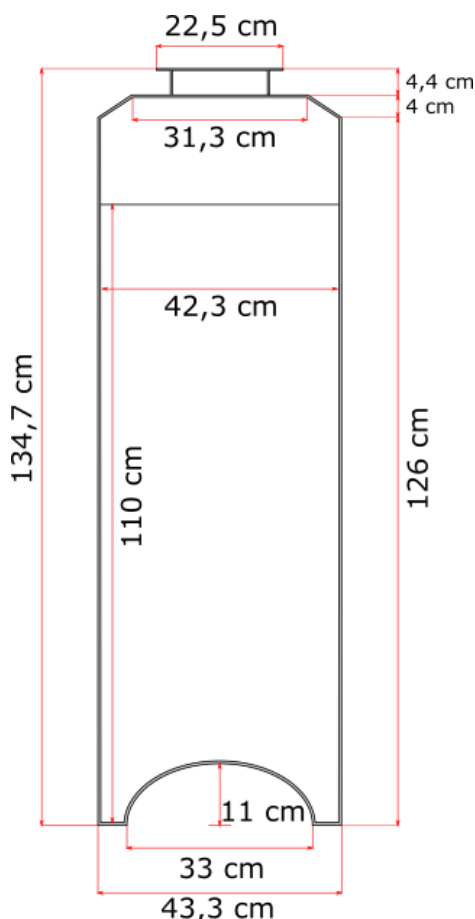


Слика 5.15. Елементи одлагалишта високо активног радиоактивног отпада.

Витрификовани високо активни радиоактивни отпад моделован је као цилиндар (пречника 42,3 cm и висине 110 cm, са полу-елипсоидним удубљењем у дну пречника 33 cm и висине 11 cm) који испуњава унутрашњост контејнера у који је смештен. Витрификовани високо активни радиоактивни отпад моделован је боросиликатним стаклом густине  $2,23 \text{ g/cm}^3$  у ком су имобилизовани радионуклиди и које има следећи састав: бор (са масеним уделом 4%), кисеоник (53,96%), натријум (2,82%), алуминијум (1,16%), силицијум (37,72%) и калијум (0,34%).

Контејнер у који је отпад смештен, тзв. канистер, моделован је као цилиндар (пречника 43,3 cm и висине 126 cm са дебљином зидова 5 mm) на чијем врху се налази зарубљена купа (пречника доње основе 43,3 cm, пречника горње основе 31,3 cm и висине 4 cm), са истом дебљином зидова. На врху зарубљене купе налази се отвор канистера (пречника 17,5 cm и висине 4,4 cm) са поклопцем (дебљине 3 mm и пречника 22,5 cm). У дну канистера налази се удубљење пречника 33 cm и висине 11 cm. Укупна висина овако конструисаног канистера је 134,7 cm. Канистер је израђен од нерђајућег челика типа 309.

Цртеж канистера у који је смештен високо активни радиоактивни отпад и његове димензије дате су на слици 5.16. [191, 192].



Слика 5.16. Канистер у који је смештен високо активни радиоактивни отпад.

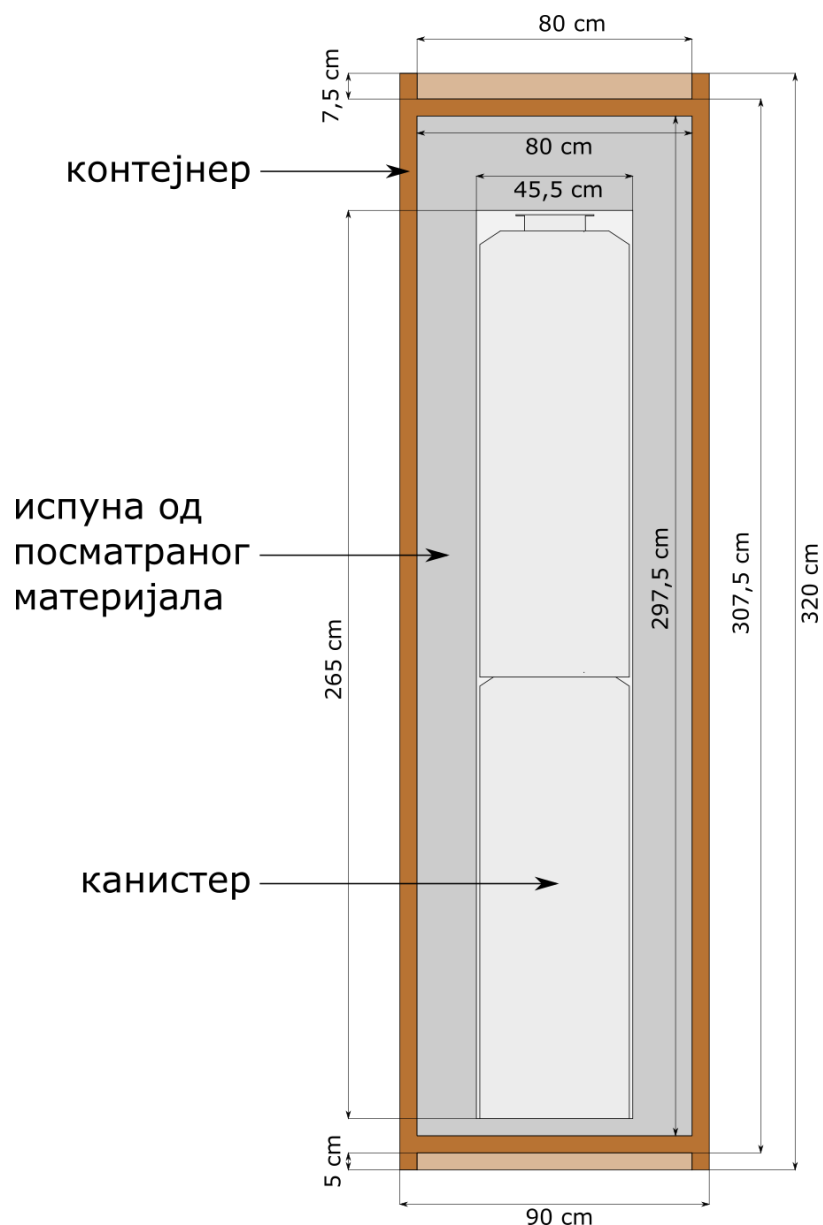
Нерђајући челик типа 309 моделован је као материјал густине  $7,9 \text{ g/cm}^3$  следећег састава: угљеник (са масеним уделом 0,2%), силицијум (2%), магнезијум (2%), фосфор (0,045%), сумпор (0,03%), хром (20%), никл (12%), гвожђе (63,725%).

Испуна контејнера која окружује канистер моделована је као цилиндар (пречника 80 cm и висине 297,5 cm) са отвором у средини (пречника 43,5 cm и висине 265 cm) у који су смештени канистери. Ова испуна сачињена је од материјала чија стабилност се испитује. Простор између испуне и канистера испуњен је ваздухом.

Контејнер за одлагање моделован је као цилиндар пречника 90 cm, висине 320 cm и дебљине зидова 5 cm сачињен од бабра густине  $8,96 \text{ g/cm}^3$ . У дну канистера налази се цилиндрично удубљење пречника 80 cm и висине 5 cm, док се на врху контејнера налази отвор пречника 80 cm и висине 7,5 cm за везивање опреме којом се контејнер спушта у одлагалиште. Цртеж контејнера у који су смештени канистери дат је на слици 5.17.

Између контејнера за одлагање и зидова одлагалишта налази се бентонитна испуна, моделована као цилиндар пречника 170 cm и висине 520 cm са отвором у средини пречника 92 cm и висине 320 cm у који је смештен контејнер.

Бентонит је моделован као материјал густине  $1,65 \text{ g/cm}^3$  следећег састава: водоник (са масеним уделом 4,04%), кисеоник (64,1%), натријум (0,84%), алуминијум (9,83%), силицијум (20,46%), калцијум (0,73%).



Слика 5.17. Контејнер у који су смештени канистери.

Зидови одлагалишта моделовани су гранитом, док је поклопац одлагалишта моделован као цилиндар пречника 275 cm и дебљине 25 cm сачињен од бетона заснованог на цементу отпорном на сулфате густине  $2,3 \text{ g/cm}^3$  следећег састава: водоника (са масеним уделом 1%), угљеник (0,1%), кисеоник (53,11%), натријум са (1,6%), алуминијум (3,39%), силицијум (33,7%), калијум (1,3%), калцијум (4,4%) и гвожђе са (1,4%).

#### 5.5.1.2. Извори зрачења

Високо активни радиоактивни отпад геометријски је моделован на начин описан у претходном одељку. За потребе симулација усвојена су два тока високо активног радиоактивног отпада који се разликују само по активности присутних радионуклида. Токови радиоактивног отпада представљају количине радиоактивног отпада које настају из истог постројења или процеса и имају заједничке карактеристике. Два конкретна тока усвојена у овој дисертацији слични су по већини својих својстава осим по садржају радионуклида. Усвојено је, за потребе симулација, да су у отпаду присутни

радионуклиди наведени у Табели 5.12, и да су униформно расподељени по читавој запремини отпада. [192]

Табела 5.13. Активности радионуклида присутних у два тока високо активног радиоактивног отпада.

Радионуклид	Активност по канистеру [ТВq]		Радионуклид	Активност по канистеру [ТВq]	
	Ток 1	Ток 2		Ток 1	Ток 2
H-3	4,28E+00	2,36E+00	Eu-154	5,95E+00	1,49E+01
Be-10	3,05E+01	2,38E-10	Eu-155	1,32E+00	1,17E+00
C-14	1,07E+00	0,00E+00	Pb-210	1,64E-07	5,40E-08
Cl-36	1,68E-03	2,10E-04	Po-210	1,61E-07	5,31E-08
Mn-54	1,27E-17	2,01E-16	Ra-226	3,27E-07	1,12E-07
Fe-55	1,38E-04	6,06E-06	Th-229	7,65E-11	3,91E-09
Co-60	2,91E-01	8,07E-03	Th-230	1,40E-05	5,52E-06
Ni-59	2,20E-03	3,23E-04	Pa-231	6,45E-07	8,71E-07
Ni-63	2,05E-01	3,06E-02	U-233	5,50E-08	8,73E-07
Se-79	7,35E-02	2,17E-02	U-234	1,21E-04	5,99E-05
Sr-90	1,14E+03	2,02E+03	U-235	2,41E-07	2,32E-07
Y-91	1,13E+02	2,59E-83	U-236	1,05E-06	3,00E-06
Zr-93	8,05E-02	1,40E-01	U-238	9,70E-06	3,89E-06
Zr-95	1,85E+02	6,16E-76	Np-237	5,35E-04	5,52E-03
Nb-93m	6,85E-02	1,18E-01	Pu-238	1,16E+00	4,82E-01
Nb-94	3,13E-05	3,70E-05	Pu-239	1,04E-02	4,46E-02
Tc-99	4,45E-01	1,05E+00	Pu-240	1,39E-02	2,17E-01
Ru-106	1,61E-05	4,08E-09	Pu-241	7,25E-02	2,08E+00
Pd-107	2,15E-03	2,12E-03	Pu-242	4,85E-06	2,89E-04
Ag-108m	6,25E-08	1,29E-06	Am-241	2,14E+01	6,69E+01
Sn-126	3,31E-02	4,93E-02	Am-242m	2,30E-01	5,59E-01
I-129	8,90E-06	1,83E-05	Am-243	7,65E-02	7,10E-01
Cs-134	2,95E-02	1,19E-02	Cm-242	1,90E-01	4,61E-01
Cs-135	3,97E-02	5,16E-02	Cm-243	3,38E-02	2,66E-01
Cs-137	1,64E+03	2,72E+03	Cm-244	5,55E-01	1,37E+01
Ce-144	1,42E-07	3,70E-10	Cm-245	3,70E-06	4,14E-03
Pm-147	1,27E+00	2,17E-01	Cm-246	3,90E-06	8,48E-04
Eu-152	1,59E-01	6,82E-02			

Активности појединачних радионуклида наведене у претходној табели су активности у време смештања високо активног радиоактивног отпада у канистере, а прорачунате после периода хлађења отпада како би се смањила генерисана топлота. [192]

### 5.5.2. Резултати симулације и анализа

Прва анализа урађена за овај случај је анализа натпритиска у контејнеру после његовог затварања. Натпритисак у контејнеру израчунат је уз помоћ једначине (5.11), за све посматране материјале, за периоде од 50, 500 и 5000 година. Наведени временски периоди одабрани су тако да покрију време потребно да се већина значајних

радионуклида садржаних у радиоактивном отпаду распадне до нивоа који немају значајан утицај. Ова анализа показала је да се натпритисци унутар контејнера крећу до вредности реда 102 kPa убрзо по затварању контејнера до занемарљивих вредности већ после 100 година од затварања контејнера. У табелама 5.14 и 5.15 приказане су вредности натпритиска унутар контејнера за различите материјале после 1, 10, 50, 100, 500, 1000 и 5000 година од затварања контејнера за оба тока отпада.

Табела 5.14. Вредности натпритиска унутар контејнера за различите материјале испуне после 1, 10, 50, 100, 500, 1000 и 5000 година од затварања контејнера за ток 1 високо активног радиоактивног отпада.

Материјал испуне	Ојачање [% BF]	1	10	50	100	500	1000	5000	
		[Pa]	[Pa]	[Pa]	[Pa]	[Pa]	[Pa]	[Pa]	
Геополимери	Cs	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,978E-01	1,094E-04	1,094E-04	1,094E-04
	K	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	5,425E-05	5,425E-05	5,425E-05
	Na	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	2,821E-05	2,821E-05	2,821E-05
Полиетилен високе густине (HDPE)	/	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,983E-01	6,124E-04	6,124E-04	6,124E-04
	10%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,982E-01	5,503E-04	5,503E-04	5,503E-04
	30%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,981E-01	4,282E-04	4,282E-04	4,282E-04
	50%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,979E-01	2,662E-04	2,662E-04	2,662E-04
	70%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	4,546E-05	4,546E-05	4,546E-05
Полиетеретеркетон (PEEK)	/	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	9,786E-07	9,786E-07	9,786E-07
	10%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	8,494E-07	8,494E-07	8,494E-07
	30%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	6,108E-07	6,108E-07	6,108E-07
	50%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	3,152E-07	3,152E-07	3,152E-07
	70%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,338E-08	1,338E-08	1,338E-08
Полиетеримид (PEI)	/	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	2,842E-06	2,842E-06	2,842E-06
	10%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	2,478E-06	2,478E-06	2,478E-06
	30%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,797E-06	1,797E-06	1,797E-06
	50%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	9,567E-07	9,567E-07	9,567E-07
	70%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	5,197E-08	5,197E-08	5,197E-08
Полистирен (PS)	/	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,631E-05	1,631E-05	1,631E-05
	10%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,451E-05	1,451E-05	1,451E-05
	30%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,227E-05	1,227E-05	1,227E-05
	50%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	6,573E-06	6,573E-06	6,573E-06
	70%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	8,311E-07	8,311E-07	8,311E-07
Полисулфон (PSU)	/	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,789E-05	1,789E-05	1,789E-05
	10%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,571E-05	1,571E-05	1,571E-05
	30%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,144E-05	1,144E-05	1,144E-05
	50%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	6,170E-06	6,170E-06	6,170E-06
	70%	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	3,807E-07	3,807E-07	3,807E-07

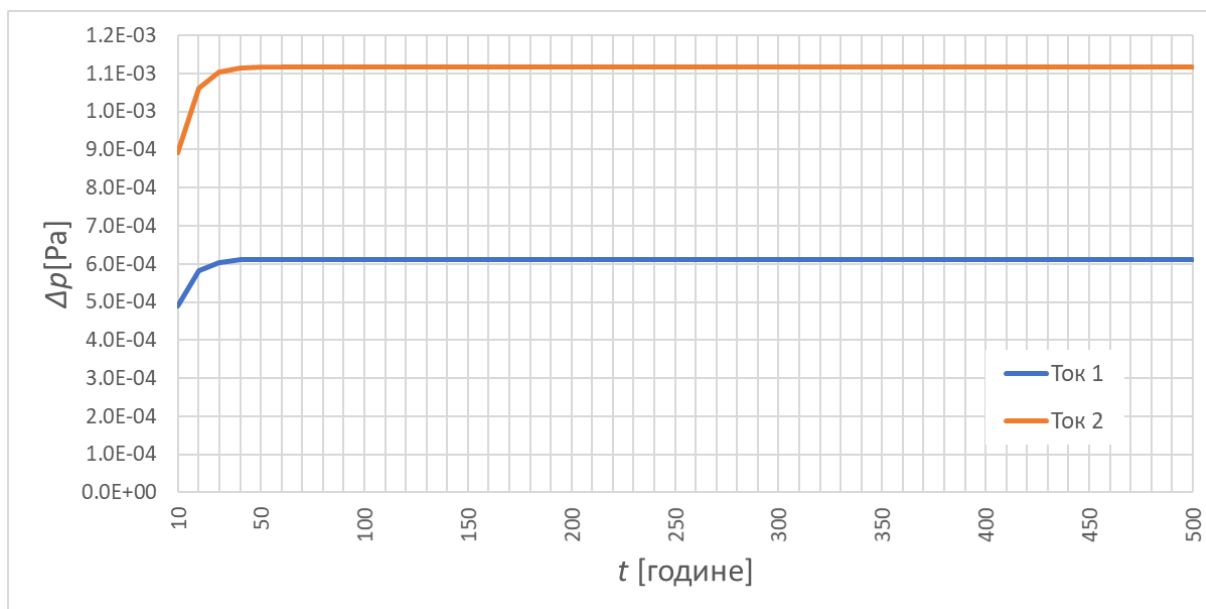
Из резултата ове анализе може се закључити да вредности натпритиска унутар контејнера за оба посматрана тока отпада и присутне активности, у случају сваког од анализираних материјала испуне, опадају с временом. Такође, натпритисак већ после 100 година опада до реда величине  $10^{-1}$  Pa, односно постаје практично занемарљив. С једне стране, ово је резултат смањења топлоте унутар контејнера услед радиоактивног распада, а с друге, недовољно високих активности радионуклида у радиоактивном отпаду које не могу да доведу до довољно израженог генерисања гаса услед радиолизе да би надмашио нивое натпритиска услед преноса топлоте.

Табела 5.15. Вредности натпритиска унутар контејнера за различите материјале испуне после 1, 10, 50, 100, 500, 1000 и 5000 година после затварања контејнера за ток 2 високо активног радиоактивног отпада.

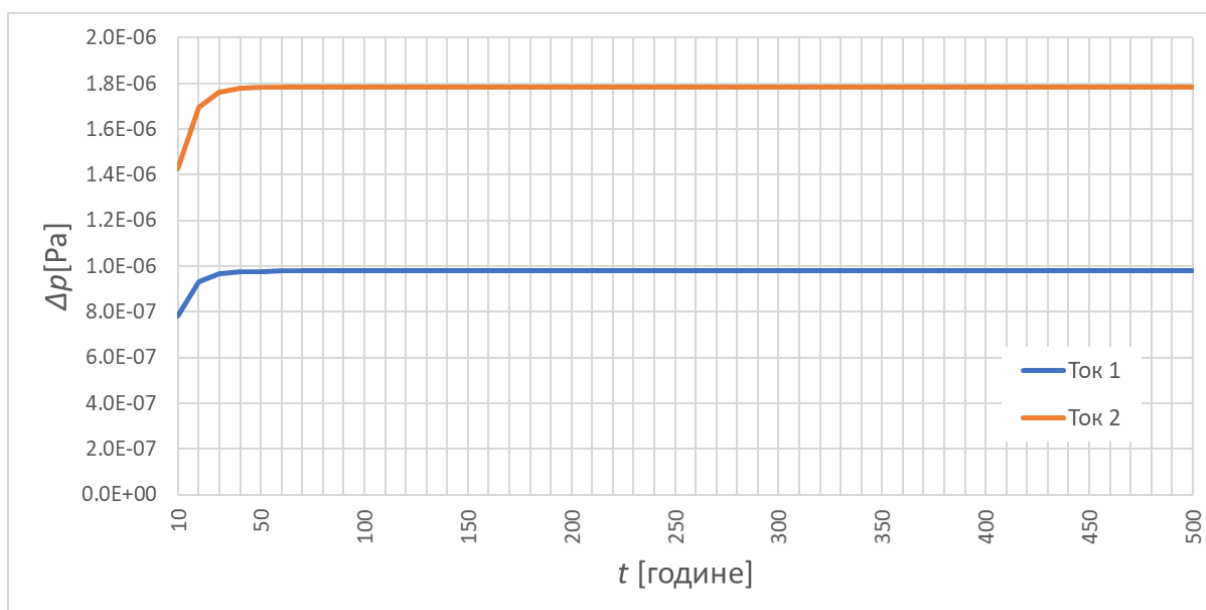
Материјал испуне		Ојачање [% BF]	1	10	50	100	500	1000	5000
			[Pa]	[Pa]	[Pa]	[Pa]	[Pa]	[Pa]	[Pa]
Геополимери	Cs	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,979E-01	1,989E-04	1,989E-04	1,989E-04
	K	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,978E-01	9,878E-05	9,878E-05	9,878E-05
	Na	/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	5,137E-05	5,137E-05	5,137E-05
Полиетилен високе густине (HDPE)		/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,988E-01	1,117E-03	1,117E-03	1,117E-03
		10%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,987E-01	1,002E-03	1,002E-03	1,002E-03
		30%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,984E-01	7,777E-04	7,777E-04	7,777E-04
		50%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,981E-01	4,820E-04	4,820E-04	4,820E-04
		70%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	8,204E-05	8,204E-05	8,204E-05
Полиетеретеркетон (PEEK)		/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,784E-06	1,784E-06	1,784E-06
		10%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,545E-06	1,545E-06	1,545E-06
		30%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,108E-06	1,108E-06	1,108E-06
		50%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	5,701E-07	5,701E-07	5,701E-07
		70%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	2,413E-08	2,413E-08	2,413E-08
Полиетеримид (PEI)		/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	5,183E-06	5,183E-06	5,183E-06
		10%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	4,510E-06	4,510E-06	4,510E-06
		30%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	3,260E-06	3,260E-06	3,260E-06
		50%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,731E-06	1,731E-06	1,731E-06
		70%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	9,369E-08	9,369E-08	9,369E-08
Полистирен (PS)		/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	2,976E-05	2,976E-05	2,976E-05
		10%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	2,641E-05	2,641E-05	2,641E-05
		30%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	2,229E-05	2,229E-05	2,229E-05
		50%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,187E-05	1,187E-05	1,187E-05
		70%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,500E-06	1,500E-06	1,500E-06
Полисулфон (PSU)		/	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	3,265E-05	3,265E-05	3,265E-05
		10%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	2,861E-05	2,861E-05	2,861E-05
		30%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	2,077E-05	2,077E-05	2,077E-05
		50%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	1,117E-05	1,117E-05	1,117E-05
		70%	2,235E+05	6,845E+04	3,562E+02	4,977E-01	6,867E-07	6,867E-07	6,867E-07

Разлика у резултатима за натпритисак за два тока високо активног радиоактивног отпада појављује се само у временским периодима када преовлађује натпритисак који је последица радиоллизе. Вредности натпритиска које су последица излагања току 2 радиоактивног отпада веће су, у периоду када је натпритисак услед радиоллизе доминантан, за 80,2% до 82,5% у зависности од материјала. На слици 5.18 упоређени су натпритисци гаса у контејнеру за два тока радиоактивног отпада, за случајеве када је испуна од полиетилена високе густине (слика 5.18а) и полиетеретеркетона (слика 5.18б), што су два материјала код којих је установљен највећи, односно најмањи утицај излагања зрачењу, респективно.





а)



б)

Слика 5.18. Натпритисци гаса у контејнеру за два тока радиоактивног отпада за а) полиетилен високе густине и б) полиетеретеркетон.

Анализа односа сабирака у једначини (5.11) – једног који одражава натпритисак услед преноса топлоте и другог који одражава натпритисак услед радиолизе, као што је протумачено у одељку 5.2.1 – показала је да, у случају оба тока високо активног радиоактивног отпада, у првих 120 година нема утицаја радиолизе на укупни натпритисак. Такође, после 280 година од затварања контејнера нема утицаја преноса топлоте на укупни натпритисак. Утврђено је и после колико година натпритисак услед преноса топлоте престаје да буде доминантан (односно када је сабирак који одражава натпритисак услед преноса топлоте већи од сабирка који одражава натпритисак услед радиолизе) и после ког времена је ситуација обрнута, што је за сваки од посматраних материјала и оба посматрана тока високо активног радиоактивног отпада исказано у табели 5.16.

Табела 5.16. Времена после којих, за различите материјале испуне, натпритисак услед радиоллизе постаје већи од натпритиска услед преноса топлоте.

Материјал испуне		Ојачање [% BF]	Време после ког натпритисак услед радиоллизе постаје већи од натпритиска услед преноса топлоте [год]	
			Ток 1	Ток 2
геополимери	Cs	/	170	160
	K	/	170	170
	Na	/	180	170
Полиетилен високе густине (HDPE)		/	160	150
		10%	160	150
		30%	160	150
		50%	160	160
		70%	180	170
Полиетеретеркетон (PEEK)		/	200	200
		10%	210	200
		30%	210	200
		50%	210	210
		70%	240	230
Полиетеримид (PEI)		/	200	190
		10%	200	190
		30%	200	200
		50%	210	200
		70%	230	220
Полистирен (PS)		/	180	180
		10%	180	180
		30%	190	180
		50%	190	190
		70%	210	200
Полисулфон (PSU)		/	180	180
		10%	180	180
		30%	190	180
		50%	190	190
		70%	210	210

У периоду од 120 до 280 година натпритисак се, у случају оба посматрана тока високо активног радиоактивног отпада креће у опсегу од  $10^{-2}$  до  $10^{-8}$  Ра, зависно од материјала испуне, док после 280 година не прелази вредности реда величине  $10^{-4}$  Ра. Поређења ради, натпритисак годину дана након затварања контејнера је реда величине 200 кРа. Узимајући ово у обзир може се закључити да је натпритисак у контејнеру због излагања испуне јонизујућем зрачењу занемарљив.

Друга анализа спроведена за одлагалиште високо активног радиоактивног отпада односи се на утицај појединачних радионуклида на укупну апсорбовану енергију у испуни направљеној од посматраних материјала и на натпритисак услед радиоллизе. Ова анализа показала је да у случају тока 1 високо активног радиоактивног отпада само шест радионуклида (Co-60, Cs-137, Eu-152, Eu-154, Y-91 и Zr-95) даје допринос апсорбованој енергији и натпритиску већи од 0,01% њихових вредности, док сви други радионуклиди заједно доприносе овим величинама мање од 0,01%. Код тока 2 високо

активног радиоактивног отпада број радионуклида који доприносе депонованој енергији и натпритиску унутар контејнера је још мањи и утицај имају само Cs-137 и Eu-154, док сви други радионуклиди заједно доприносе овим величинама мање од 0,01%. У оба случаја различитих токова високо активног радиоактивног отпада, утицај Cs-137 је далеко већи од утицаја свих осталих радионуклида.

У табели 5.17 наведени су доприноси појединачних радионуклида, садржаних у првом току високо активног радиоактивног отпада, енергији апсорбованој у испуни од испитиваних материјала, после 1, 10, 50, 100, 50, 1000 и 5000 година од затварања контејнера. Резултати наведени у овој табели исказани су за све испитиване материјале. Табела садржи податке само за радионуклиде који дају незанемаљив допринос.

Табела 5.17. Утицај појединачних радионуклида садржаних у току 1 високо активног радиоактивног отпада на апсорбовану енергију унутар испуне од испитиваних материјала, после 1, 10, 50, 100, 50, 1000 и 5000 година од затварања контејнера.

Радионуклид	Удео радионуклида у апсорбованој енергији унутар испуне од испитиваних материјала						
	1 година	10 година	50 година	100 година	500 година	1000 година	5000 година
Co-60	0,08%	0,06%	0,02%				
	-	-	-	0,02%	0,02%	0,02%	0,02%
Cs-137	0,10%	0,07%	0,03%				
	94,21%	98,69%	99,43%	99,56%	99,61%	99,60%	99,58%
Eu-152	-	-	-	-	-	-	-
	94,72%	99,03%	99,62%	99,71%	99,73%	99,73%	99,71%
Eu-154	0,02%	0,02%	0,01%	0,01%	0,01%	0,01%	0,01%
Y-91	0,38%	0,32%	0,17%	0,13%	0,12%	0,12%	0,12%
	-	-	-	-	-	-	-
Zr-95	0,78%	0,65%	0,35%	0,27%	0,24%	0,24%	0,24%
	0,97%	0,11%	0,03%		0,02%	0,02%	
Eu-154	-	-	-	0,03%	-	-	0,03%
	1,15%	0,14%	0,04%		0,03%	0,03%	
Zr-95	3,59%	0,42%				0,09%	
	-	-	0,13%	0,10%	0,09%	-	0,11%
	3,73%	0,44%				0,10%	

Анализа утицаја појединачних радионуклида садржаних у току 1 високо активног радиоактивног отпада показала је да се утицај Cs-137 на апсорбовану енергију, у случају свих посматраних материјала креће до 94% до 95% непосредно по затварању контејнера до преко 99% већ после 100 година од затварања контејнера. Од других радионуклида који утичу на апсорбовану енергију, утицај Zr-95 се креће од 3,5% до 4% на почетку периода одлагања и већ после прве деценије опада до испод 1%, код Co-60, Eu-152 и Eu-154 утицај је испод 1% током времена одлагања, док је утицај Y-91 на почетку одлагања нешто изнад 1%, али већ после 50 година постаје занемарљив.

У табели 5.18 наведени су доприноси појединачних радионуклида, садржаних у току 2 високо активног радиоактивног отпада, енергији апсорбованој у испуни од испитиваних материјала после 1, 10, 50, 100, 50, 1000 и 5000 година од затварања контејнера. Табела садржи податке само за радионуклиде који дају незанемаљив допринос.

Табела 5.18. Утицај појединачних радионуклида садржаних у току 1 високо активног радиоактивног отпада на апсорбовану енергију унутар испуне од испитиваних материјала после 1, 10, 50, 100, 50, 1000 и 5000 година од затварања контејнера.

Радионуклид	Удео радионуклида у апсорбованој енергији унутар испуне од посматраних материјала						
	1 година	10 година	50 година	100 година	500 година	1000 година	5000 година
Cs-137	98,75%	99,01%	99,47%	99,59%	99,63%	99,63%	99,63%
	-	-	-	-	-	-	-
Eu-154	99,38%	99,51%	99,74%	99,80%	99,82%	99,82%	99,82%
	0,61%	0,48%	0,26%	0,20%	0,18%	0,18%	0,18%
	-	-	-	-	-	-	-
	1,24%	0,98%	0,53%	0,41%	0,37%	0,37%	0,37%

У случају тока 2 високо активног радиоактивног отпада, анализа утицаја појединачних радионуклида садржаних у овом току показала је да незанемарљив утицај имају само два радионуклида и то Cs-137 и Eu-154. Утицај Cs-137 креће се од 98,75% до 99,38% после прве године од затварања контејнера до преко 99% већ после 10 година. Утицај Eu-154 је у поређењу са утицајем Cs-137 знатно мањи и креће се до 1,24% у првој години од затварања контејнера до испод 1% након 10 година.

Табела 5.19. Утицај појединачних радионуклида садржаних у току 1 високо активног радиоактивног отпада на натпритисак гаса унутар контејнера.

Материјал испуне		Ојачање [% BF]	Радионуклид					
			Co-60	Cs-137	Eu-152	Eu-154	Y-91	Zr-95
Геополест	Cs	/	0,08%	82,73%	0,02%	0,64%	3,89%	12,64%
	K	/	0,08%	82,85%	0,02%	0,63%	3,81%	12,60%
	Na	/	0,08%	82,85%	0,02%	0,63%	3,81%	12,60%
Полиетиле н високе густине (HDPE)	/	/	0,08%	83,04%	0,02%	0,61%	3,69%	12,56%
	10%	0,08%	82,87%	0,02%	0,63%	3,78%	12,62%	
	30%	0,08%	82,62%	0,02%	0,64%	3,92%	12,71%	
	50%	0,09%	82,35%	0,02%	0,66%	4,08%	12,80%	
	70%	0,09%	82,02%	0,02%	0,69%	4,30%	12,88%	
Полиетеретеркетон (PEEK)	/	/	0,08%	82,99%	0,02%	0,62%	3,72%	12,58%
	10%	0,08%	82,77%	0,02%	0,63%	3,84%	12,66%	
	30%	0,08%	82,50%	0,02%	0,65%	4,00%	12,74%	
	50%	0,09%	82,23%	0,02%	0,67%	4,17%	12,82%	
	70%	0,09%	81,95%	0,02%	0,70%	4,34%	12,90%	
Полиетери мид (PEI)	/	/	0,08%	83,00%	0,02%	0,62%	3,71%	12,57%
	10%	0,08%	82,81%	0,02%	0,63%	3,83%	12,63%	
	30%	0,08%	82,51%	0,02%	0,65%	3,99%	12,74%	
	50%	0,09%	82,25%	0,02%	0,67%	4,16%	12,81%	
	70%	0,09%	81,92%	0,02%	0,70%	4,34%	12,93%	
Полистирен (PS)	/	/	0,08%	83,03%	0,02%	0,62%	3,70%	12,56%
	10%	0,08%	82,85%	0,02%	0,63%	3,79%	12,63%	
	30%	0,08%	82,68%	0,02%	0,64%	3,89%	12,68%	
	50%	0,09%	82,61%	0,02%	0,35%	4,12%	12,82%	
	70%	0,09%	82,03%	0,02%	0,69%	4,31%	12,86%	
Полисулфон (PSU)	/	/	0,08%	83,05%	0,02%	0,61%	3,69%	12,55%
	10%	0,08%	82,87%	0,02%	0,63%	3,79%	12,62%	
	30%	0,08%	82,58%	0,02%	0,65%	3,95%	12,72%	
	50%	0,09%	82,32%	0,02%	0,67%	4,12%	12,79%	
	70%	0,09%	81,97%	0,02%	0,69%	4,33%	12,89%	

У табели 5.19 наведени су доприноси појединачних радионуклида, садржаних у току 1 високо активног радиоактивног отпада, натпритиску гаса унутар контејнера. Табела садржи податке само за радионуклиде који дају незанемаљив допринос.

Ова анализа показала је да је у случају тока 1 високо активног радиоактивног отпада утицај Cs-137 највећи и да се креће у распону од 82% до 83%, зависно од материјала испуне. Од других радионуклида, Zr-95 има утицај од око 13%, Y-91 између 3,5% и 4,5%, док Co-60, Eu-152 и Eu-154 имају утицаје мање од 1%.

У табели 5.20 наведени су доприноси појединачних радионуклида, садржаних у току 2 високо активног радиоактивног отпада, на натпритисак гаса унутар контејнера. Табела садржи податке само за радионуклиде који дају незанемаљив допринос.

Табела 5.20. Утицај појединачних радионуклида садржаних у току 2 високо активног радиоактивног отпада на натпритисак гаса унутар контејнера.

материјал		Ојачање [% BF]	Радионуклид	
			Cs-137	Eu-154
геоло лиме	Cs	/	98,83%	1,16%
	K	/	98,85%	1,14%
	Na	/	98,85%	1,14%
Полиетиле н високе густине (HDPE)		/	98,88%	1,11%
		10%	98,86%	1,13%
		30%	98,83%	1,17%
		50%	98,78%	1,21%
		70%	98,73%	1,26%
Полиетере теркетон (PEEK)		/	98,87%	1,12%
		10%	98,84%	1,15%
		30%	98,81%	1,19%
		50%	98,76%	1,23%
		70%	98,72%	1,27%
Полиетери мид (PEI)		/	98,88%	1,12%
		10%	98,85%	1,14%
		30%	98,81%	1,18%
		50%	98,77%	1,22%
		70%	98,72%	1,28%
Полистире н (PS)		/	98,88%	1,11%
		10%	98,86%	1,13%
		30%	98,83%	1,16%
		50%	99,36%	0,63%
		70%	98,73%	1,26%
Полисулфо н (PSU)		/	98,88%	1,11%
		10%	98,86%	1,14%
		30%	98,82%	1,17%
		50%	98,78%	1,21%
		70%	98,72%	1,27%

У случају тока 2 високо активног радиоактивног отпада, утицај Cs-137 се, у зависности од материјала испуне, креће у распону од 98,7% до 99,3%. Поред Cs-137,

значајан утицај на натпритисак унутар контејнера има још само Eu-154 са уделима од 0,63% до 1,28%. Сви остали радионуклиди заједно имају утицај мање од 0,01%.

С обзиром да је у случају одлагања високо активног радиоактивног отпада натпритисак који настаје као последица радиолизе далеко мањи од натпритиска који настаје услед преноса топлоте, није имало смисла анализирати две границе активности,  $(A_0)'_{max}$  и  $(A_0)''_{max}$  (дефинисане у одељку 5.2.1)

Трећа анализа која је споведена односила се на промене молекулских маса испитиваних полимерних и композитних материјала испуне услед излагања јонизујућем зрачењу, на начин описан у одељку 5.2.1. Ова анализа је показала да током читавог посматраног периода од 5000 година не долази до промене било које од три средње молекулске масе ( $M_n$ ,  $M_w$  или  $M_z$ ).

## 6. Закључак

У дисертацији је испитивана применљивост полимерних, геополимерних и композитних материјала у управљању радиоактивним отпадом. Анализирана је могућност да од ових материјала буде израђена испуна у контејнерима за складиштење или одлагање ислужених радиоактивних извора, ниско, средње и високо активног радиоактивног отпада.

Примењивост полимерних, геополимерних и композитних унутрашњих испуна у контејнерима за:

- одлагање затворених радиоактивних извора у бушотине,
- складиштење и одлагање ниско и средње активног радиоактивног отпада и
- одлагање високо активног радиоактивног отпада

анализирана је са становишта радијационих ефеката који се у овим материјалима јављају као последица трајне изложености зрачењу емитованом из извора или отпада смештеног у контејнере. Идентификована су два потенцијално критична ефекта зрачења, која су потом квалитативно и квантитативно испитивана: повећање притиска гаса у унутрашњости контејнера услед дејства зрачења на материјал испуне и промена молекулске масе полимерног материјала испуне услед изложености зрачењу.

Материјали за унутрашњу испуну контејнера за одлагање анализирани у дисертацији су сви комерцијално доступни. Истраживањем су обухваћени:

- геополимерни материјали код којих је преобладајући алкални катјон калијум, натријум или цезијум,
- полимерни материјали: полиетилен високе густине (HDPE), полистирен (PS), полиетар кетон (PEEK), полиетеримид (PEI) и полисулфон (PSU),
- композитни материјали ојачани борним влакнима који имају један од претходно наведених полимера као матрицу.

Радијациона стабилност испитиваних материјала анализирана је применом Монте Карло симулација транспорта фотона и честица. У симулацијама су коришћени детаљни геометријски и физички модели услова који карактеришу сваки од три разматрана типа контејнера, како би се одредиле енергије зрачења депоноване у унутрашњим испунама ових контејнера. Резултати симулација су затим коришћени за израчунавање натпритиска гаса унутар контејнера, насталог услед производње гаса

радиолизом у материјалу испуне и због загревања гаса топлотом потеклом од радиоактивног извора или отпада. Помоћу вредности енергија апсорбованих у испунама контејнера, добијених из симулација, израчунаване су и промене молекулске масе испитиваних полимера и композита на бази полимера.

Модел у симулацијама садржали су детаљне представе и саставе сваке од компоненти: радиоактивног извора или отпада, контејнера у који је извор/отпад смештен (са свим конструкционим деловима) и околне средине. У свим разматраним случајевима претпостављано је да не долази до цурења гаса из контејнера или његовог продирања кроз испуну, зидове или спојеве контејнера, што представља најнеповољнији случај у погледу натпритиска гаса у контејнеру.

У случају услужених радиоактивних извора, у симулационом моделу коришћена су три радиоактивна извора: Co-60, Cs-137 и AmBe. У случају ниско и средње активног радиоактивног отпада, радиоактивни отпад у симулацијама је моделован као компримовани метални отпад и цементом солидификовани течни отпад, за које је претпостављено да садрже равномерно расподељене атоме Co-60 или Cs-137. Ово је дало четири могуће комбинације за изворе зрачења. У случају високо активног радиоактивног отпада, радиоактивни отпад у симулацијама је моделован као витрификовани отпад који садржи равномерно расподељене атоме већег броја краткоживећих и дугоживећих радионуклида који настају у оквиру нуклеарног горивног циклуса.

Резултати добијени анализом коришћења испитиваних материјала у одлагању затворених радиоактивних извора у бушотине показују да су, што се тиче могућих неповољних ефеката излагања јонизујућем зрачењу, испитивани геополимерни, полимерни, и композитни материјали погодни за употребу као унутрашње испуне у контејнерима за одлагање у бушотине, под условима претпостављеним у симулацијама. Анализа заснована на симулацијама спроведеним у дисертацији показује да радијациони ефекти у разматраним материјалима не доводе до значајнијег повећања притиска гаса у контејнерима, као и да ови материјали не доживљавају промене молекулске масе које би компромитовале њихове механичке или заштитне особине чак ни након дуготрајне изложености зрачењу.

Резултати добијени анализом коришћења испитиваних материјала у складиштењу и одлагању ниско и средње активног отпада, као и у одлагању високо активног радиоактивног отпада, показују да су, што се тиче могућих неповољних радијационих ефеката, испитивани полимери, геополимери и композити на бази полимера погодни кандидати за израду испуна у контејнерима намењеним овим применама. Испитивање натпритиска гаса унутар контејнера показује да испуне од испитиваних материјала не производе значајније повећање притиска током временских интервала обухваћених прорачунима (50, 500 и 5000 година). Додатно је показано да су промене молекулске масе изазване излагањем зрачењу у испитиваним полимерима и композитима занемарљиве под претпостављеним условима излагања, што сугерише да ће ови материјали да задрже своја механичка својства чак и након дуготрајног излагања зрачењу ниско, средње и високо активног радиоактивног отпада који је разматран у дисертацији.

У случају складиштења и одлагања ниско и средње активног радиоактивног отпада, релативне промене молекулске масе полимера и композита на бази полимера занемарљиве су и за граничне активности, при којим се јавља максимални допустиви натпритисак гаса унутар контејнера за ниско и средње активни радиоактивни отпад. Извори чије активности достижу граничне вредности прорачунате у дисертацији могу се, дакле, смештати у ове контејнере без штетног утицаја на молекулске масе материјала испуне.



Резултати до којих се дошло у дисертацији могу се користити за успостављање критеријума за пријем отпада, као и при установљавању оперативних услова и ограничења за ислужене радиоактивне изворе, радиоактивни отпад и постројења за њихово складиштење и одлагање. Граничне активности које су у дисертацији израчунате за различите материјале испуне и услове рада могу се усвојити као лимити активности за паковања радиоактивног отпада, чиме би се обезбедило да не буде негативног утицаја ускладиштеног отпада на полимерне, геополимерне и композитне испуне.

Контејнери за складиштење или одлагање радиоактивног отпада са испунама израђеним од испитиваних полимерних или композитних материјала имали би мању масу од стандардних контејнера са испунама од цемента. Манипулација таквим контејнерима била би једноставнија и поузданија: смањила би се могућност случајног испуштања и оштећења контејнера, чиме би се повећала сигурност управљања радиоактивним отпадом. Осим тога, производња префабрикованих испуна за контејнере била би лакша ако би се уместо бетона користили полимерни или на њима засновани композитни материјали.

Генерални закључак студије спроведене у дисертацији је да се испитивани полимерни, геополимерни и композитни материјали могу користити као испуна контејнера за складиштење и одлагање ислужених радиоактивних извора, ниско, средње и високо активног радиоактивног отпада. У светлу овог закључка реално је очекивати да ће ови материјали наћи примену у будућим реализацијама решења за складиштење и одлагање радиоактивног отпада и ислужених радиоактивних извора.

## Референце

- [1] ICRP, Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, Br. J. Radiol. Suppl. 6., 1955.
- [2] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, IAEA Safety Glossary: 2018 Edition, Vienna: IAEA, 2019.
- [3] The Council of the European Union, „Council Directive 2013/59/Euratom of 5 December 2013 laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, and repealing Directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom,“ *OJ L 13*, pp. 1-73, 2014.
- [4] П. Осмокровић, Основи нуклеарне физике, Београд: Академска мисао, 2008.
- [5] H. Cember и Thomas Johnson, Introduction to Health Physics: Fourth Edition, McGraw-Hill Medical, 2008.
- [6] [На мрежи]. Available: <https://physics.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?mal>.
- [7] G. F. Knoll, Radiation Detection and Measurement, 4th Edition, John Wiley & Sons, Inc., 2010.
- [8] Canberra Nuclear, Alpha PIPS Detectors - Properties and Applications, Application note, 1993.
- [9] M. F. L'Annunziata, Radioactivity: Introduction and History, Elsevier Science, 2007.
- [10] [На мрежи]. Available: <http://oregonstate.edu/instruct/ch374/ch418518/Chapter%208%20Beta%20Decay-rev.pdf>.
- [11] Л. Маринков, Основи нуклеарне физике, друго издање, Нови Сад: Универзитет у Новом Саду, Природно-математички факултет, Департман за физику, 2010.
- [12] J. E. Turner, Atoms, Radiation, and Radiation Protection, Third, Completely Revised and Enlarged Edition, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2007.
- [13] IUPAC, Compendium of Chemical Terminology, 2nd ed. (the "Gold Book"). Compiled by A. D. McNaught and A. Wilkinson. Online version (2019-) created by S. J. Chalk, Blackwell Scientific Publications, Oxford, 1997.
- [14] М. Плавшић, Полимерни Материјали, Београд: Научна књига, 1996.
- [15] В. Јовановић и С. Самарџија-Јовановић, Полимери и полимерни материјали, Београд: Академска Мисао, 2018.
- [16] Г. Ђирић-Марјановић, Физичка хемија макромолекула, Београд: Универзитет у Београду, Факултет за физичку хемију, 2015.
- [17] A. D. Jenkins, P. Kratochvíl, R. F. T. Stepto и U. W. Suter, "Glossary of basic terms in polymer science, IUPAC Recommendations, 1996.
- [18] J. V. Alemán, A. V. Chadwick, J. He, M. Hess, K. Horie, R. G. Jones, P. Kratochvil, I. Meisel, I. Mita, G. Moad, S. Penczek и R. F. T. Stepto, Definitions of terms relating to the structure and processing of sols, gels, networks and Inorganic-organic hybrid materials, IUPAC Recommendations, 2007.
- [19] J. G. Drobny, Handbook of Thermoplastic Elastomers, 2nd Edition, William Andrew, 2014.
- [20] A. Z. El-Sonbati, Thermoplastic Elastomers, InTech, 2012.
- [21] J. E. Mark, Polymer Data Handbook, Oxford University Press, 1999.
- [22] J. G. Drobny, Ionizing Radiation and Polymers. Principles, Technology and Applications, William Andrew, 2012.

- [23] A. Charlesby, *Atomic Radiation and Polymers*, London: Pergamon Press, 1960.
- [24] A. Singh и J. Silverman, *Radiation Processing of Polymers*, Munich: Hanser, 1992.
- [25] E. Reichmanis, C. W. Frank и J. H. O'Donnell, *Irradiation of Polymeric Materials*, American Chemical Society, 1993.
- [26] A. Chapiro, *Radiation Chemistry of Polymeric Systems*, New York: Interscience, 1962.
- [27] J. W. T. Spinks и R. J. Woods, *An introduction to radiation chemistry*, Wiley - Interscience, 1990.
- [28] J. E. Mark, *Physical Properties of Polymers Handbook*, 2nd Edition, Springer, 2007.
- [29] S. Yongxia и C. G. Andrzej, *Applications of ionizing radiation in materials processing*, Wasraw: Institute of Nuclear Chemistry and Technology, 2017.
- [30] H. A. El-Sayed, T. Sasuga, M. Nishii и Seguchi T., „Irradiation effects on aromatic polymers: 1. Gas evolution by gamma irradiation,“ *Polymer*, т. 33, бр. 14, pp. 2897 - 2903, 1992.
- [31] M. C. Senake Perera и D. J. T. Hill, „Radiation Chemical Yields : G Values,“ y *The Wiley Database of Polymer Properties*, John Wiley & Sons, 2003, pp. II/481 - II/497.
- [32] E. Richaud, L. Audouin, X. Colin, B. Fayolle и J. Verdu, „New Developments in the Field of Radiochemical,“ *Current Topics in Ionizing Radiation Research*, pp. 817 - 840, 2010.
- [33] S. Devasahayam, D. J. T. Hill и A. T. Whittaker, „G -Values for Scission and Crosslinking on gamma - Radiolysis of Ultem at 303 K,“ *High Performance Polymers*, т. 15, бр. 3, pp. 259 - 267, 2003.
- [34] I. Brereton, S. Devasahayam, D. J. T. Hill и A. K. Whittaker, „Towards identifying the new structures formed on the gamma-radiolysis of Ultem,“ *Radiation Physics and Chemistry*, т. 69, бр. 1, pp. 65 - 77, 2004.
- [35] J. R. Brown и J. H. O'Donnell, „Effects of gamma radiation on two aromatic polysulfones,“ *Journal of Applied Polymer Science*, т. 19, бр. 2, pp. 405 - 417, 1975.
- [36] P. B. Navle, *Influence of gamma radiation on the cure characteristics and physico\_chemical properties of HTPB\_base elastomers and their energetic composites (PhD Thesis)*, Pune, Maharashtra: Savitribai Phule Pune University, 1994.
- [37] G. Spadaro, „Gamma-radiation ageing of a low density polyethylene. Effects of irradiation temperature and dose rate,“ *European Polymer Journal*, т. 29, бр. 6, pp. 851-854, 1993.
- [38] D. W. Clegg и A. A. Collyer, *Irradiation effects on polymers*, Elsevier Applied Science, 1991.
- [39] M. Dole, *The radiation chemistry of macromolecules (Vol. II)*, New York: Academic Press, 1973.
- [40] M. Dole, *The Radiation Chemistry of Macromolecules. Volume I*, New York: Academic Press, 1972.
- [41] H. J. Mathieu, Y. Chevolut, H. Kausch, N. Anjum, B. Gupta, D. Léonard, L. A. Pruitt, L. Ruiz-Taylor и M. Scholz, *Radiation Effects on Polymers for Biological Use*, Berlin Heidelberg: Springer-Verlag, 2003.
- [42] B. L. Anderson, M. K. Sheaffer и L. E. Fischer, *Hydrogen Generation in TRU Waste Transportation Packages*, Lawrence Livermore National Laboratory, 2000.
- [43] US Nuclear Regulatory Commission, *NUREG/CR-6673 Hydrogen Generation in TRU Waste Transportation Packages*, Washington: US Nuclear Regulatory Commission, 2000.
- [44] Robatel Technologies, LLC, *RT-100 Safety Analysis Report, Rev. 4*, North Bethesda, Maryland: US Nuclear Regulatory Commission, 2014.

- [45] Washington TRU Solutions, LLC, RH-TRU Payload Appendices rev. 5, North Bethesda, Maryland: US Nuclear Regulatory Commission, 2011.
- [46] P. Anand Nagaraja, Hospital Sterilization, New Delhi: Jaypee Brothers Medical Publishers, 2011.
- [47] K. Arshak и O. Korostynska, Advanced Materials and Techniques for Radiation Dosimetry, Norwood, MA: Artech House, 2006.
- [48] W. Schnabel, Polymer Degradation-Principles and Practical Applications, New York: Macmillan Publishing Company, Inc., 1981.
- [49] K. T. Gillen и R. L. Clough, „A kinetic model for predicting oxidative degradation rates in combined radiation-thermal environments,” *Journal of Polymer Science Part A: Polymer Chemistry*, т. 23, бр. 10, p. 2683—2707, 1985.
- [50] Georgia Institute of Technology, Radiation Effects on Organic Materials in Nuclear Plants, Electric Power Research Institute, 1981.
- [51] J. H. O'Donnell и D. F. Sangster, Principles of Radiation Chemistry, New York: American Elsevier Publishing Company, Inc., 1970.
- [52] J. Davidovits, Geopolymer Chemistry and Applications, 4th edition, Institut Geopolymere, 2015.
- [53] J. L. Provis, Modelling the formation of geopolymers. PhD thesis, Chemical and Biomolecular Engineering,, University of Melbourne, 2006.
- [54] M. e. a. Rowles, „<sup>29</sup>Si, <sup>27</sup>Al, <sup>1</sup>H and <sup>23</sup>Na MAS NMR Study of the Bonding Character in Aluminosilicate Inorganic Polymers,” *Appl. Magn. Reson.*, т. 32, бр. 4, p. 663–689, 2007.
- [55] V. Cantarel, T. Motooka и I. Yamagi, JAEA-Review: Geopolymers and Their Potential Applications in the Nuclear Waste Management Field - A Bibliographical Study, Japan Atomic Energy Agency, 2017.
- [56] W. Loewenstein, „The distribution of aluminum in the tetrahedra of silicates and aluminates,” *Am. Mineral.*, Том. %1 од %239, No. 1-2, p. 92–96, 1954.
- [57] D. e. a. Massiot, „Topological, Geometric, and Chemical Order in Materials: Insights from Solid-State NMR,” *Acc. Chem. Res.*, т. 46, бр. 9, p. 1975–1984, 2013.
- [58] W. Loewenstein, „The distribution of aluminum in the tetrahedra of silicates and aluminates,” *Am. Mineral.*, т. 39, бр. 1-2, p. 92–96, 1954.
- [59] T. e. a. Bakharev, „Resistance of alkali-activated slag concrete to carbonation,” *Cem. Concr. Res.*, т. 31, бр. 9, p. 1277–1283, 2001.
- [60] S. e. a. Bernal, „Accelerated carbonation testing of alkali-activated binders significantly underestimates service life: The role of pore solution chemistry,” *Cem. Concr. Res.*, т. 42, бр. 10, p. 1317–1326, 2012.
- [61] S. e. a. Bernal, „Effect of silicate modulus and metakaolin incorporation on the carbonation of alkali silicate-activated slags,” *Cem. Concr. Res.*, т. 40, бр. 6, p. 898–907, 2010.
- [62] M. e. a. Criado, „Alkali activation of fly ashes. Part 1: Effect of curing conditions on the carbonation of the reaction products,” *Fuel*, т. 84, бр. 16, p. 2048–2054, 2005.
- [63] A. e. a. Palomo, „Chemical stability of cementitious materials based on metakaolin,” *Cem. Concr. Res.*, т. 29, бр. 7, p. 997–1004, 1999.
- [64] A. e. a. Fernandez-Jimenez, „Durability of alkali-activated fly ash cementitious materials,” *J. Mater. Sci.*, т. 42, бр. 9, p. 3055–3065, 2007.
- [65] A. e. a. Allahverdi, „Sulfuric acid attack on hardened paste of geopolymer cements Part 1. Mechanism of corrosion at relatively high concentrations,” *Ceram.-Silik.*, т. 49, бр. 4, p. 225–229, 2005.

- [66] A. e. a. Allahverdi, „Nitric acid attack on hardened paste of geopolymeric cements - Part 2,“ *Ceram.-Silik.*, т. 45, бп. 4, p. 143–149, 2001.
- [67] A. e. a. Allahverdi, „Nitric acid attack on hardened paste of geopolymeric cements - Part 1,“ *Ceram.-Silik.*, т. 45, бп. 3, p. 81–88, 2001.
- [68] J. e. a. Bell, „Formation of Ceramics from Metakaolin-Based Geopolymers. Part II: K-Based Geopolymer,“ *J. Am. Ceram. Soc.*, т. 92, бп. 3, p. 607–615, 2009.
- [69] J. e. a. Bell, „Formation of Ceramics from Metakaolin-Based Geopolymers: Part I - Cs-Based Geopolymer,“ *J. Am. Ceram. Soc.*, т. 92, бп. 1, p. 1–8, 2009.
- [70] C. e. a. Chlique, „XRD Analysis of the Role of Cesium in Sodium-Based Geopolymer,“ *J. Am. Ceram. Soc.*, т. 98, бп. 4, p. 1308–1313, 2015.
- [71] P. e. a. Duxson, „Understanding the relationship between geopolymer composition, microstructure and mechanical properties,“ *Colloids Surf. Physicochem. Eng. Asp.*, т. 269, бп. 1-3, p. 47–58, 2005.
- [72] J. e. a. Bell, „Nanoporosity in Aluminosilicate, Geopolymeric Cements,“ *Microsc. Microanal.*, т. 10, бп. S02, p. 590–591, 2004.
- [73] P. e. a. Duxson, „Effect of Alkali Cations on Aluminum Incorporation in Geopolymeric Gels,“ *Ind. Eng. Chem. Res.*, т. 44, бп. 4, p. 832–839, 2005.
- [74] V. Bénavent, *Caractérisation de la porosité des géopolymères: Evolution temporelle et étude de l’eau confinée*, thesis (in French), Université de Montpellier, 2016.
- [75] P. e. a. Steins, „Structural Evolution during Geopolymerization from an Early Age to Consolidated Material,“ *Langmuir*, т. 28, бп. 22, p. 8502–8510, 2012.
- [76] A. e. a. Poulesquen, „Rheological behavior of alkali-activated metakaolin during geopolymerization,“ *J. Non-Cryst. Solids.*, т. 357, бп. 21, p. 3565–3571, 2011.
- [77] J. e. a. Phair, „Effect of silicate activator pH on the leaching and material characteristics of waste-based inorganic polymers,“ *Miner. Eng.*, т. 14, бп. 3, p. 289–304, 2001.
- [78] W. e. a. Wang, „Synthesis and mechanical properties of metakaolinite-based geopolymer,“ *Colloids Surf. Physicochem. Eng. Asp.*, т. 268, бп. 1-3, p. 1–6, 2005.
- [79] C. e. a. White, „Evolution of Local Structure in Geopolymer Gels: An In Situ Neutron Pair Distribution Function Analysis,“ *J. Am. Ceram. Soc.*, т. 94, бп. 10, p. 3532–3539, 2011.
- [80] S. La Caer, „Water Radiolysis: Influence of Oxide Surfaces on H<sub>2</sub> Production under Ionizing Radiation,“ *Water*, т. 3, бп. 1, pp. 235-253, 2011.
- [81] C. Fourdrin, H. Aarrachi, C. Latrille, S. Esnouf, F. Bergaya и S. Le Caer, „Water Radiolysis in Exchanged-Montmorillonites: The H<sub>2</sub> Production Mechanisms,“ *Environmental Science & Technology*, т. 47, бп. 16, p. 9530—9537, 2013.
- [82] I. Draganic и Z. Draganic, *The Radiation Chemistry of Water*, New York and London: Academic Press, 1971.
- [83] P. Bouniol и E. Bjergbakke, „A comprehensive model to describe radiolytic processes in cement medium,“ *Journal of Nuclear Materials*, т. 372, бп. 1, pp. 1-15, 2008.
- [84] J. A. LaVerne и S. M. Pimblott, „New Mechanism for H<sub>2</sub> Formation in Water,“ *J. Phys. Chem.*, т. 104, pp. 9820-9822, 2000.
- [85] C. Ferradini и J.-P. Jay-Gerin, „The effect of pH on water radiolysis: A still open question — A minireview,“ *Research on Chemical Intermediates*, т. 26, бп. 6, p. 549—565, 2000.
- [86] S. Le Caer, P. Rotureau, F. Brunet, T. Charpentier, G. Blain, J. P. Renault и J.-C. Mialocq, „Radiolysis of Confined Water: Hydrogen Production at a High Dose Rate,“ *ChemPhysChem*, т. 6, бп. 12, p. 2585—2596, 2005.

- [87] P. Bouniol, B. Muzeau и V. Dauvois, „Experimental evidence of the influence of iron on pore water radiolysis in cement-based materials,” *Journal of Nuclear Materials*, т. 437, бр. 1-3, p. 208—215, 2013.
- [88] D. Lambertin, C. Boher, A. Dannoux-Papin, K. Galliez, A. Rooses и F. Frizon, „Influence of gamma ray irradiation on metakaolin based sodium geopolymer,” *Journal of Nuclear Materials*, т. 443, бр. 1-3, p. 311—315, 2013.
- [89] C. Boher, I. Martin, S. Lorente и F. Frizon, „Experimental investigation of gas diffusion through monomodal materials. Application to geopolymers and Vycor® glasses,” *Microporous and Mesoporous Materials*, т. 184, pp. 28-36, 2014.
- [90] М. Вујисић, Дозиметрија и заштита од зрачења (скрипта), Београд: Универзитет у Београду, Електротехнички факултет, 2018.
- [91] A. O. Allen, „Radiation Chemistry of Aqueous Solutions,” *Journal of Physical Chemistry*, т. 52, бр. 3, p. 479—490, 1948.
- [92] J. A. LaVerne и R. H. Schuler, „Decomposition of water by very high linear energy transfer radiations,” *Journal of Physical Chemistry*, т. 87, бр. 23, p. 4564—4565, 1983.
- [93] J. A. LaVerne, „The Production of OH Radicals in the Radiolysis of Water with He-4 Ions,” *Radiation Research*, т. 118, бр. 2, p. 201—210, 1989.
- [94] J. A. LaVerne, „Radical and molecular yields in the radiolysis of water with carbon ions,” *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part C. Radiation Physics and Chemistry*, т. 34, бр. 1, p. 135—143, 1989.
- [95] J. A. LaVerne, „Track Effects of Heavy Ions in Liquid Water,” *Radiation Research*, т. 153, бр. 5, p. 487—496, 2000.
- [96] G. Y. Gerasimov, „Ionizing-Radiation Ignition of a Hydrogen–Air Mixture,” *High Energy Chemistry*, т. 36, бр. 6, pp. 370-373, 2002.
- [97] D. Dautzenberg, „Gamma-radiolysis of hydrogen—Oxygen-mixtures— Part I. Influences of temperature, vessel wall, pressure and added gases (N<sub>2</sub>, Ar, H<sub>2</sub>) on the reactivity of H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>-mixtures,” *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part C. Radiation Physics and Chemistry*, т. 33, бр. 1, pp. 61-67, 1989.
- [98] D. Chartier, J. Sanchez-Canet, L. Bessette, S. Esnouf и J. Renault, „Influence of formulation parameters of cement based materials towards gas production under gamma irradiation,” *Journal of Nuclear Materials*, т. 511, p. 183—190, 2018.
- [99] F. Chupin, *Caractérisation de l'effet des irradiations sur les géopolymères*, Paris: Université Pierre et Marie Curie, 2015.
- [100] L. Frances, M. Grivet, J.-P. Renault, J.-E. Groetz и D. Ducret, „Hydrogen radiolytic release from zeolite 4A/water systems under  $\gamma$  irradiations,” *Radiation Physics and Chemistry*, т. 110, pp. 6-11, 2015.
- [101] R. C. Murty, „Effective Atomic Numbers of Heterogeneous Materials,” *Nature*, т. 207, бр. 4995, pp. 398-399, 1965.
- [102] M. L. Taylor, R. L. Smith, F. Dossing и R. D. Franich, „Robust calculation of effective atomic numbers: The Auto-Zeff software,” *Medical Physics*, т. 39, бр. 4, pp. 1769-1778, 2012.
- [103] N. Deng, H. An, H. Cui, Y. Pan, B. Wang, L. Мао и J. Zhai, „Effects of gamma-ray irradiation on leaching of simulated <sup>133</sup>Cs+ radionuclides from geopolymer wastefoms,” *Journal of Nuclear Materials*, т. 459, pp. 270-275, 2015.
- [104] P. Duxson, G. C. Lukey и J. S. v. Deventer, „The thermal evolution of metakaolin geopolymers: Part 2 – Phase stability and structural development,” *Journal of Non-Crystalline Solids*, т. 353, бр. 22-23, pp. 2186-2200, 2007.

- [105] P. Duxson, G. C. Lukey и J. S. J. van Deventer, „Evolution of Gel Structure during Thermal Processing of Na-Geopolymer Gels,” *Langmuir*, т. 22, бр. 21, р. 8750—8757, 2006.
- [106] J. Hiet, Motifs structuraux dans des verres modèles pour le stockage des actinides, Université d’Orleans, 2009.
- [107] International Atomic Energy Agency, IAEA Safety Glossary: Terminology Used in Nuclear Safety and Radiation Protection, 2018 Edition, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2018.
- [108] International Atomic Energy Agency, Predisposal Management of Radioactive Waste, IAEA Safety Standards Series No. GSR Part 5, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2009.
- [109] International Atomic Energy Agency, Disposal of Radioactive Waste, IAEA Specific Safety Requirements, No. SSR-5, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2009.
- [110] О. Цирај-Бјелац и М. Вујовић, Управљање радиоактивним отпадом, Београд: Академска Мисао, 2017.
- [111] Euratom, Food and Agriculture Organization, International Atomic Energy Agency, International Labour Organization, International Maritime Organization, OECD Nuclear Energy Agency, Pan American Health Organization, UNEP, World Health Organization, Fundamental Safety Principles, IAEA Safety Standards Series No. SF-1, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2006.
- [112] International Atomic Energy Agency, Radioactive Waste Management Objectives, IAEA Nuclear Energy Series No. NW-0, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2011.
- [113] International Atomic Energy Agency, Principles of Radioactive Waste Management Safety Fundamentals, Safety Series No. 111-F, Vienna: International Atomic Energy Agency, 1995.
- [114] International Atomic Energy Agency, Radiation protection and safety of radiation sources: international basic safety standards, IAEA safety standards series, GSR Part 3, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2014.
- [115] International Atomic Energy Agency, Nuclear Energy Basic Principles, IAEA Nuclear Energy Series No. NE-BP, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2008.
- [116] International Atomic Energy Agency, Classification of radioactive waste, IAEA General Safety Guide No. GSG-1, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2009.
- [117] International Atomic Energy Agency, Classification of Radioactive Waste, IAEA Safety Series No. 111-G-1.1, 1994: International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [118] International Atomic Energy Agency, Decommissioning of facilities, IAEA safety standards series, No. GSR part 6, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2014.
- [119] International Atomic Energy Agency, Guides Policies and Strategies for the Decommissioning of Nuclear and Radiological Facilities, IAEA Nuclear Energy Series NW-G-2.1, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2011.
- [120] International Atomic Energy Agency, State of the Art Technology for Decontamination and Dismantling of Nuclear Facilities, Technical reports series, No. 395, Vienna: International Atomic Energy Agency, 1999.
- [121] International Atomic Energy Agency, Technologies for Remediation of Radioactively Contaminated Sites, IAEA-TECDOC-1086, Vienna: International Atomic Energy Agency, 1999.

- [122] International Atomic Energy Agency, Radiological Characterization of Shut Down Nuclear Reactors for Decommissioning Purposes, Technical Reports Series 389, Vienna: International Atomic Energy Agency, 1998.
- [123] International Atomic Energy Agency, Decommissioning Strategies for Facilities Using Radioactive Material, Safety Reports Series No. 50, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2007.
- [124] International Atomic Energy Agency, Remediation of Sites with Mixed Contamination of Radioactive and Other Hazardous Substances, Technical Reports Series 442, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2006.
- [125] International Atomic Energy Agency, Managing Low Radioactivity Material from the Decommissioning of Nuclear Facilities, Technical Reports Series, 462, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2008.
- [126] International Atomic Energy Agency, Handling and Processing of Radioactive Waste from Nuclear Applications, IAEA Technical Reports Series No. 402, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2001.
- [127] International Atomic Energy Agency, Mobile Processing Systems for Radioactive Waste Management. IAEA Nuclear Energy Series No. NW-T-1.8, ,, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2014.
- [128] International Atomic Energy Agency, Application of Membrane Technologies for Liquid Radioactive Waste Processing. IAEA Technical Reports Series No. 431, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2004.
- [129] International Atomic Energy Agency, Application of Ion Exchange Processes for the Treatment of Radioactive Waste and Management of Spent Ion Exchanges. IAEA Technical Reports, Series No. 408, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2002.
- [130] International Atomic Energy Agency, Methods for the minimization of radioactive waste from decontamination and decommissioning of nuclear facilities. IAEA Technical Reports Series No. 401, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2001.
- [131] International Atomic Energy Agency, Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, 2018 Edition, IAEA Safety Standards Series No. SSR-6 (Rev. 1), Vienna: International Atomic Energy Agency, 2018.
- [132] International Atomic Energy Agency, Application of Thermal Technologies for Processing of Radioactive Waste, IAEA TECDOC-1527, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2006.
- [133] International Atomic Energy Agency, Techniques for solidification of high-level wastes, IAEA Technical Report Series No. 176, Vienna: International Atomic Energy Agency, 1977.
- [134] M. I. Ojovan, Handbook of Advanced Radioactive Waste Conditioning Technologies, Woodhead Publishing Limited, 2011.
- [135] M. I. Ojovan и W. E. Lee, An Introduction to Nuclear Waste Immobilisation, Amsterdam: Elsevier Science Publishers, 2015.
- [136] M. I. Ojovan и W. E. Lee, Developments in Glassy Nuclear Wasteforms, New York: Nova Science Publishers, 2007.
- [137] R. Spence и C. Shi, Stabilization/Solidification of Hazardous, Radioactive, and Mixed Wastes, CRC Press, 2005.
- [138] International Atomic Energy Agency, Design and operation of high level waste vitrification facilities, Vienna: IAEA, 1997.



- [139] International Atomic Energy Agency, Interim Storage of Radioactive Waste Packages, Technical reports series 390, Vienna: International Atomic Energy Agency, 1998.
- [140] International Atomic Energy Agency, Handling, Conditioning and Storage of Spent Sealed Radioactive Sources, IAEA-TECDOC-1145, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2000.
- [141] International Atomic Energy Agency, The Safety Case and Safety Assessment for Predisposal Management of Radioactive Waste, IAEA Safety Standards Series No. GSG-3, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2013.
- [142] International Atomic Energy Agency, Methodology for Safety Assessment Applied to Predisposal Waste Management, IAEA-TECDOC 1777, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2005.
- [143] International Atomic Energy Agency, Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances into the Environment, IAEA Safety Report Series No. 19, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2001.
- [144] International Atomic Energy Agency, Disposal of radioactive waste, IAEA safety standards series, SSR-5, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2011.
- [145] International Atomic Energy Agency, Geological Disposal of Radioactive Waste: Technological Implications for Retrievability, IAEA Nuclear Energy Series, NW-T-1.19, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2009.
- [146] International Atomic Energy Agency, Planning and design considerations for geological repository programmes of radioactive waste, IAEA TECDOC No. 1755, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2014.
- [147] International Atomic Energy Agency, Scientific and Technical Basis for the Near Surface Disposal of Low and Intermediate Level Waste, IAEA Technical Reports Series No. 412, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2002.
- [148] International Atomic Energy Agency, Scientific and Technical Basis for the Geological Disposal of Radioactive Wastes, IAEA Technical Reports Series No. 413, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2003.
- [149] International Atomic Energy Agency, Safety Assessment Methodologies for Near Surface Disposal Facilities (ISAM), Vol. 1 Review and Enhancement of Safety Assessment Approaches and Tools, Vol. 2 Test Cases, Vienna: International Atomic Energy Agency, 2004.
- [150] W. E. Lee, M. I. Ojovan и C. M. Jantzen, Radioactive Waste Management and Contaminated Site Clean-up, Woodhead Publishing Limited, 2013.
- [151] International Atomic Energy Agency, Disposal Options for Disused Radioactive Sources, Technical Reports Series No. 436, Vienna: IAEA, 2005.
- [152] International Atomic Energy Agency, BOSS: Borehole Disposal of Disused Sealed Sources, IAEA-TECDOC-1644, Vienna: IAEA, 2011.
- [153] Y. Sun и A. G. Chmielewski, „Applications of Ionizing Radiation in Materials Processing,“ т. 1, Warsaw, Institute of Nuclear Chemistry and Technology, 2017, pp. 167-182.
- [154] W. R. Rogers, „Sterilisation of Polymer Healthcare Products,“ Shrewsbury, Rapra Technology Limited, 2005, pp. 165-171.
- [155] C. Vasile и G. E. Zaikov, „Focus on Natural and Synthetic Polymer Science,“ Nova Science Publishers, 2006, pp. 1-30.
- [156] D. J. T. Hill, K. A. Milne, J. H. O'Donnell, и P. J. Pomery, „A Recent Advance in the Determination of Scission and Cross-Linking Yields of Gamma-Ray Irradiated

- Polymers," *y Irradiation of Polymers*, Washington DC, ACS Symposium Series, American Chemical Society, 1996.
- [157] M. Inokuti и M. Dole, „Analysis of Molecular Weight Changes and Gel Data of Some Irradiated Vinyl Polymers," *The Journal of Chemical Physics*, т. 38, бр. 12, 1963.
- [158] S. A. Dupree и S. K. Fraley, *A Monte Carlo Primer: A Practical Approach to Radiation Transport*, Springer US, 2002.
- [159] A. Haghghat, *Monte Carlo Methods for Particle Transport*, CRC Press, 2014.
- [160] S. Cota, G. Hiromoto, H. Gharbieh и A. Silva, „Preliminary post-closure safety assessment for a borehole-type repository for disused sealed radioactive sources in Brazil," *Progress in Nuclear Energy*, т. 103, pp. 74 - 80, 2018.
- [161] H. A. P. Sucipta, „Planning and concept of borehole disposal technology for disposal of disused sealed radiation sources from using in health and industry," *Journal of Physics Conference Series*, т. 1436, 2020.
- [162] N. Van Der Merwe, „Mobile hot cell and borehole disposal integration for high activity disused radioactive sealed sources (DSRS) conditioning and final disposal," *Physica Medica*, т. 41, 2017.
- [163] S. Yeboah, T. T. Akiti и J. J. Fletcher, „Numerical modeling of radionuclide migration through a borehole disposal site," т. 3, бр. 1, 2014.
- [164] H. W. Bonin, V. T. Bui, J.-F. Legault, A. R. Davey, T. B. Douglas, C. C. S. Duriez и G. B. MacGregor, „High Polymer Composites for Containers for the Long-Term Storage of Spent Nuclear Fuel and High Level Radioactive Waste," *y Proc. 18th CNAOCNS Annual Conf.*, Toronto, Ontario, 1997.
- [165] H. W. Bonin, J. R. Van Tine и V. T. Bui, „A Container Based on Polymer Composite Materials for the Ultimate Disposal of Spent Nuclear Fuel and Radioactive Waste," *Nuclear Technology*, т. 169, бр. 2, pp. 150-179, 2010.
- [166] „Boron Fiber," *Specialty Materials*, [На мрежи]. Available: <https://www.specmaterials.com/boron-fiber-test-page>.
- [167] D. E. Pelowitz, *MCNPX Users Manual Version 2.7.0 LA-CP-11-00438*, 2011.
- [168] П. Маринковић и М. Вујисић, *Физика Монте Карло симулација транспорта фотона са применама у медицини*, Београд: Академска мисао, 2020.
- [169] S. Finsterle, R. A. Muller, R. Baltzer, J. Prayer и J. W. Rector, „Numerical Evaluation of Thermal Effects from Nuclear Waste Disposed in Horizontal Drillholes," *y ANS conference proceedings, International High-Level Radioactive Waste Management (IHLRWM) Conference*, Knoxville, TN, April 14-18, 2019.
- [170] S. Finsterle, R. A. Muller, R. Baltzer, J. Prayer и J. W. Rector, „Thermal Evolution near Heat-Generating Nuclear Waste Canisters Disposed in Horizontal Drillholes," *Energies*, т. 4, бр. 12, 2019.
- [171] T. W. Hicks и S. P. Watson, „A Potential Methodology for Determining a Tolerable Separation Distance Between Disposal Areas Containing Different Types of Waste," *Galson Sciences Ltd*, December 2015.
- [172] D. J. T. Hill, K. A. Milne, J. H. O'Donnell и P. J. Pomery, „A Recent Advance in the Determination of Scission and Cross-Linking Yields of Gamma-Ray Irradiated Polymers," *y Irradiation of Polymers*, Washington DC, ACS Symposium Series; American Chemical Society, 1996.
- [173] M. Vujovic и M. Vujisic, „Applicability of polymer and composite inner linings in containers for borehole disposal of sealed radioactive sources – A simulation-based study of radiation effects," *Progress in Nuclear Energy*, т. 137, 2021.

- [174] International Atomic Energy Agency, Borehole Disposal Facilities for Radioactive Waste, IAEA Safety Standards Series No. SSG-1, Vienna: IAEA, 2009.
- [175] International Atomic Energy Agency, Generic Post-closure Safety Assessment for Disposal of Disused Sealed Radioactive Sources in Narrow Diameter Boreholes, IAEA-TECDOC-1824, Vienna: IAEA, 2017.
- [176] R. S. Detwiler, R. J. McConn, T. F. Grimes, S. A. Upton и E. J. Engel, Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling PNNL-15870 Revision 2, Richland, WA: Pacific Northwest National Laboratory, 2021.
- [177] „MatWeb,“ [На мрежи]. Available: <https://www.matweb.com/search/DataSheet.aspx?MatGUID=abc4415b0f8b490387e3c922237098da&ckck=1>. [Последњи приступ 16 4 2022].
- [178] „Engineering Edge,“ [На мрежи]. Available: [https://www.engineersedge.com/stainless\\_steel.htm](https://www.engineersedge.com/stainless_steel.htm). [Последњи приступ 16 4 2022].
- [179] „United Performance Metals,“ [На мрежи]. Available: <https://www.upmet.com/products/stainless-steel/304304l>. [Последњи приступ 16 4 2022].
- [180] „Catalogue Ionising Sources and Bulk Isotopes,“ Federal State Unitary Enterprise “Mayak” Production Association of the State Atomic Energy Corporation “Rosatom”, 2020. [На мрежи]. Available: <https://www.pomayak.ru/upload/iblock/7cd/7cd0794a88683e306aeecc4065d0dc3d.pdf>.
- [181] „Radioactive Sources and Radiochemicals Catalogue,“ Joint Stock Company “State Scientific Center – Research Institute of Atomic Reactors”, Enterprize of of the State Atomic Energy Corporation “Rosatom”, [На мрежи]. Available: [http://www.niiar.ru/sites/default/files/katalog\\_rn\\_en\\_s](http://www.niiar.ru/sites/default/files/katalog_rn_en_s).
- [182] „Industrial Radiation Sources Product Information,“ Eckert & Ziegler Isotope Products, [На мрежи]. Available: [https://www.ezag.com/fileadmin/ezag/user-uploads/pdf/isotope/5\\_industrial\\_sources.pdf](https://www.ezag.com/fileadmin/ezag/user-uploads/pdf/isotope/5_industrial_sources.pdf).
- [183] A. Saeed, S. Nafee, S. Shaheen, G. Ahmed, Y. Alhadeethi, S. Kemal и M. A. N. Razvi, „Calculating the ambient dose equivalent of fast neutrons using elemental composition of human body,“ *Applied Mathematics and Computation*, т. 274, pp. 604-610, 2016.
- [184] I. Murata, I. Tsuda, R. Nakamura, S. Nakayama, M. Matsumoto и H. Miyamaru, „Neutron and gamma-ray source-term characterization of AmBe sources in Osaka University,“ *Progress in Nuclear Science and Technology*, т. 4, pp. 345-348, 2014.
- [185] British Standard, International Standard BS ISO 8529-1:2001 Reference Neutron Radiations - Part 1: Characteristics and methods of production, British Standards Institution, 2001.
- [186] International Standardization Organization, ISO 286-1:2010(en) Geometrical product specifications (GPS) — ISO code system for tolerances on linear sizes — Part 1: Basis of tolerances, deviations and fits, ISO, 2010.
- [187] I. S. Organization, ISO 286-2:2010(en) Geometrical product specifications (GPS) — ISO code system for tolerances on linear sizes — Part 2: Tables of standard tolerance classes and limit deviations for holes and shafts, ISO, 2010.
- [188] M. Vujovic и Vujisic Milos, „Radiation Compatibility of Geopolymer, Polymer and Composite Materials for Use as Inner Shielding in Radioactive Waste Containers – A Simulation-Based Study,“ *Nuclear Technology*, 2022 (accepted, in publication).

- [189] International Standardization Organization, ISO 15750-1:2008, Packaging - Steel drums - Part 1: Removable head (open head) drums with a minimum total capacity of 208 l, 210 l and 216,5 l, ISO, 2008.
- [190] D. Quigley, F. Simmons, M. Funtamukkula, J. Robertson, S. Bigger, D. Freshwater и D. Matz-Seigel, „Over-Pressurized Drums: Their Causes and Mitigation,“ *Journal of Chemical Health and Safety*, т. 17, бр. 5, pp. 24-28, 2010.
- [191] United Kingdom Nirex Limited, „TECHNICAL NOTE - Outline Design for a Reference Repository Concept for UK High Level Waste/Spent Fuel,“ UK Nirex Ltd, 2005.
- [192] United Kingdom Nirex Limited, „Nirex Report no. N/085 Identification and Description of UK Radioactive Wastes and Materials Potentially Requiring Long-term Management,“ UK Nirex Ltd, 2003.

## Биографија

Милан Вујовић рођен је 19. маја 1986. године у Шапцу. Електротехнички факултет Универзитета у Београду уписује 2005. године. Основне студије на смеру за Физичку електронику, модул за биомедицинско и еколошко инжењерство завршава 2010. године и исте године уписује мастер студије на истом модулу које завршава 2011. године. Докторске студије на модулу за нуклеарну, медицинску и еколошку технику, уписује у школској 2011/12. години.

Од марта 2011. године Милан Вујовић је запослен у Агенцији за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Србије која децембра 2018. године прераста у Директорат за радијациону и нуклеарну сигурност и безбедност Србије на местима специјалисте, руководиоца групе и начелника одељења.

Током свог професионалног ангажовања, Милан Вујовић био је ангажован на већем броју значајних послова у које, између осталог, спадају оцена сигурности за комплексна радијациона и нуклеарна постројења, анализа и праћење стања у постројењима у другим земљама која у редовним или акциденталним ситуацијама могу имати последице по нашу земљу, учествовање у изради закона, подзаконских аката и стратегија, и координисање пројеката Међународне агенције за атомску енергију.

Своје знање и искуство у области управљања радиоактивним отпадом Милан Вујовић је, заједно са проф. др Оливером Цирај-Бјелац, преточио у уџбеник Управљање радиоактивним отпадом који је одобрен од стране Електротехничког факултета Универзитета у Београду, и први је уџбеник у нашој земљи који обрађује ову тематику.

Поред свог ангажовања у регулаторном телу наше земље, Милан Вујовић је учествовао на више десетина стручних радионица и техничких састанака Међународне агенције за атомску енергију и већи број пута био ангажован у као експерт у експертским мисијама и на консултантским састанцима ове организације.

## Изјава о ауторству

Име и презиме аутора Милан Вујовић

Број индекса 5026/2011

### Изјављујем

да је докторска дисертација под насловом

Радијациона стабилност полимерних, геополимерних и композитних материјала за

примене у управљању радиоактивним отпадом

- резултат сопственог истраживачког рада;
- да дисертација у целини ни у деловима није била предложена за стицање друге дипломе према студијским програмима других високошколских установа;
- да су резултати коректно наведени и
- да нисам кршио/ла ауторска права и користио/ла интелектуалну својину других лица.

### Потпис аутора

У Београду, 26.04.2022



образац изјаве о истоветности штампане и електронске верзије докторског рада

## Изјава о истоветности штампане и електронске верзије докторског рада

Име и презиме аутора Милан Вујовић

Број индекса 5026/2011

Студијски програм Нуклеарна, медицинска и еколошка техника

Наслов рада Радијациона стабилност полимерних, геополимерних и композитних материјала за примене у управљању радиоактивним отпадом

Ментор др Милош Вујисић, ванредни професор

Изјављујем да је штампана верзија мог докторског рада истоветна електронској верзији коју сам предао/ла ради похрањивања у **Дигиталном репозиторијуму Универзитета у Београду**.

Дозвољавам да се објаве моји лични подаци везани за добијање академског назива доктора наука, као што су име и презиме, година и место рођења и датум одбране рада.

Ови лични подаци могу се објавити на мрежним страницама дигиталне библиотеке, у електронском каталогу и у публикацијама Универзитета у Београду.

**Потпис аутора**

У Београду, 26.04.2022

  
\_\_\_\_\_

образац изјаве о коришћењу

## Изјава о коришћењу

Овлашћујем Универзитетску библиотеку „Светозар Марковић“ да у Дигитални репозиторијум Универзитета у Београду унесе моју докторску дисертацију под насловом:

Радијациона стабилност полимерних, геополимерних и композитних материјала за  
примене у управљању радиоактивним отпадом

која је моје ауторско дело.

Дисертацију са свим прилозима предао/ла сам у електронском формату погодном за трајно архивирање.

Моју докторску дисертацију похрањену у Дигиталном репозиторијуму Универзитета у Београду и доступну у отвореном приступу могу да користе сви који поштују одредбе садржане у одабраном типу лиценце Креативне заједнице (Creative Commons) за коју сам се одлучио/ла.

1. Ауторство (CC BY)
2. Ауторство – некомерцијално (CC BY-NC)
3.  Ауторство – некомерцијално – без прерада (CC BY-NC-ND)
4. Ауторство – некомерцијално – делити под истим условима (CC BY-NC-SA)
5. Ауторство – без прерада (CC BY-ND)
6. Ауторство – делити под истим условима (CC BY-SA)

(Молимо да заокружите само једну од шест понуђених лиценци. Кратак опис лиценци је саставни део ове изјаве).

Потпис аутора

У Београду, 26.04.2022



---