

EXTRÉM NAGY BORÁT TARTALMÚ FOLYÉKONY RADIOAKTÍV HULLADÉKOK FENNTARTHATÓ ALKÁLI AKTIVÁLT SZILÁRDÍTÁSI RECEPTÚRÁJÁNAK KIFEJLESZTÉSE MÉSZKŐ-PORTLANDCEMENT SEGÍTSÉGÉVEL



Baranyi Attila - Dr. Kopecskó Katalin

<https://doi.org/10.32969/VB.2025.2.1>

A Paksi Atomerőműben bevezetésre került a Radioaktív Hulladék Cementező Üzem (RHCÜ), amely működése során a különböző folyékony radioaktív hulladékokat meghatározott típusú kötőanyagokkal keverik össze, majd a cementpépet szilárd radioaktív hulladékokat tartalmazó acél konténerekbe töltik. Az így elkészült ún. kompakt hulladékcsomagok (KHCS) egy minősítési folyamat után végleges tárolásra kerülnek a Bataapátiban található Nemzeti Radioaktív-hulladék-tárolóban (NRHT).

A korábbi tapasztalatok azt mutatták, hogy a radioaktív hulladékok felhasználásával készült keverékek tulajdonságai jelentős mértékben függenek az alkalmazott cement minőségétől, még azonos típusú cementek esetén is. Az üzem folyamatos, fenntartható működéséhez tehát elengedhetetlen az előírt cement folyamatos hozzáférhetősége.

Tekintettel arra, hogy a cementipar a globális szén-dioxid-kibocsátás mintegy 8%-áért felelős, ez a körülmény alapvetően meghatározza a cementgyártás jövőbeli irányait. Az európai zöld megállapodás értelmében ugyanis az Európai Unió tagállamai vállalták, hogy 2050-re Európa eléri a klímasegítségét. A szén-dioxid kvóták mértékének emelkedésével és a kibocsátási határértékek szigorításával egész Európában megfigyelhető a portlandcementek háttérbe szorulása és a mészkő-portlandcementek, valamint a kompozit cementek térnyerése, amely bár környezetkímélő megoldás, de a RHCÜ szempontjából komoly technológiai nehézségeket okoz. A kompozit-portlandcementekben felhasznált cement kiegészítőanyagok (kohósalak, pernye, mészkőliszt) mind másképpen módosítják pl. a kivérzési hajlamot, a kötési időt, valamint a zsugorodást, és ezáltal a repedésképződést is.

Vizsgálataink eredményeképpen sikerült a folyékony radioaktív hulladékokat (LRW) metakaolinnal kevert, alkáli aktivált mészkő-portlandcement segítségével szilárdítani, amelyben a repedésképződési hajlamot polipropilén mikroszálakkal és zeolittal csökkentettük. Ezekkel a receptúrákkal előreláthatóan hosszú távon is fenntartható, minden technológiai és hulladék átvételi követelménynek megfelelő keverékösszetételekhez jutottunk.

KULCSSZAVAK: radioaktív hulladék, receptúra tervezés, mészkő-portlandcement, alkáli aktiválás, szálerősítés, zeolit

1. BEVEZETÉS

A Paksi Atomerőműben működő Radioaktív Hulladék Cementező Üzem (RHCÜ) segítségével a különböző típusú LRW-k (bepárlási maradékok, iszapok, dekontamináló oldatok, használt ioncserélő gyanták) felhasználásával készült cementpépet állítanak elő, amelyet szilárd radioaktív hulladékokat tartalmazó acél konténerekbe öntenek. A CHEMCOMEX a.s. (kivitelező) által elkészített receptúrák minden LRW fajtára meghatározott összetételű cement és metakaolin típust írnak elő a technológiai és hulladék átvételi követelmények teljesülése céljából (Süssmilch et al., 2022). A jelenleg szilárdítás alatt álló LRW típus egy olyan bepárlási maradék (sűrítmény), amelynek receptúrája csak portlandcementet, metakaolint és sűrítményt tartalmaz. A

vizsgált sűrítmény cementezés szempontjából leglényegesebb tulajdonságai az 1. táblázatban láthatók.

Ezek közül legfontosabb az erősen lúgos kémhatás mellett az extrém nagy borát koncentráció, amely kötéskeletető hatással rendelkezik, mivel a cement hidratációja során keletkező portlandit ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) reakcióba lép az oldatban lévő borátokkal és amorf kalcium diborát csapadékot képez:



amely részlegesen, vagy teljesen befedi a cementszemcséket. A hidratációs reakció előrehaladtával a pórusoldatban lévő alkálifém ionok hatására felszabaduló hidroxid ionok a diborát réteget feloldják, így a felszabaduló nagy mennyiségű kalcium ionok hirtelen gyors kötést okozhatnak (Csetényi és Glasser,

1. táblázat: A szilárdítás alatt álló bepárlási maradék főbb tulajdonságai

pH	Nitrát [g/dm ³]	Borát [g/dm ³]	Mólarány (NaOH/ H ₃ BO ₃)	Sűrűség [kg/ dm ³]	Szárazanyag [g/dm ³]	⁶⁰ Co [Bq/dm ³]	¹³⁷ Cs [Bq/dm ³]
12	22,59	189	1,11	1,229	362,60	1,45·10 ⁵	1,17·10 ⁶

1995; Davraz, 2010; Champenois et al., 2015). A másik tényező, amelyet figyelembe kell venni a cement kötésevel kapcsolatban, az a nagy szárazanyag tartalom, amely alapján korrigálni kell a víz-kötőanyag (v/k) tényezőt. A gyakorlatban előnyösebb a radioaktív hulladék-kötőanyag tényező (R/k) alkalmazása.

A kivitelező a jelenlegi cementezendő hulladék esetében a 0,57 R/k tényezőt találta optimálisnak a cementpéppel kapcsolatos követelmények szempontjából, amelynek eléréséhez a Duna-Dráva Cement Kft. (DDC) Beremendi Gyárában gyártott CEM I 42,5 N típusú portlandcementet és a cseh gyártmányú Ekonrad Metasil típusú metakaolint írta elő 25% arányban.

A RHCÜ folyamatos, megbízható működése szempontjából tehát alapvető az üzem kötőanyag-ellátásbiztonsága. Napjainkban azonban a portlandcementek gyártásának folyamatos megszűnése tapasztalható. Ennek az oka, hogy a cementgyártás kb. 600 kg/t cement szén-dioxid kibocsátást eredményez (IEA) és a világ cementgyártása a világ szén-dioxid kibocsátásának 8%-áért felelős (Cembureau, 2024). A globális felmelegedésért felelős üvegházhatású gázok csökkentése érdekében az Európai Unió (EU) tagállamai az európai klímarendeleettel és az ún. zöld megállapodással (Európai Bizottság, 2019) kötelezettséget vállaltak arra, hogy a nettó szén-dioxid kibocsátásukat 2030-ra legalább 55%-kal csökkentik, amelyet az „Irány az 55%!” (Fit for 55) intézkedéscsomagban rögzítettek (Európai Bizottság, 2021). Végsősoron az EU célja, hogy Európa a világon elsőként klímasemleges kontinenssé váljon, amelyet szén-dioxid kvótákkal és vámmal igyekszik elérni.

A „zöld átállás” (Green transition) egyik következménye a cementipar vonatkozásában a portlandcementek (CEM I) háttérbe szorulása, és a mészkő-portlandcementek (CEM II/A (B)-LL), a kompozit-portlandcementek (CEM II/A (B, C)-M), valamint a kompozit cementek (CEM V, CEM VI) térnyerése. Ezek az összetett cementek különböző cement kiegészítő anyagokat (mészkőlisztet, granulált kohósalakot, pernyét stb.) tartalmaznak legalább 6%-ban, amellyel csökkentik a klinker-cement tényezőt, ezzel együtt csökkentve a cement fajlagos energiaigényét és szén-dioxid kibocsátását.

Egy másik lehetséges fejlődési irány az építőanyagok tekintetében az alkáli aktivált anyagok és a geopolimerek elterjedése lehet, de ezek előállításuk komoly szakértelmet igényel a prekursorok (kohósalak, metakaolin stb.) és az általában erősen lúgos kémhatású aktivátorok (KOH, NaOH) biztonságos kezelése, valamint az előírt adagolási arányok betartása érdekében.

Figyelembe véve hazánk másodlagos ipari kötőanyag forrásait, egy olyan szilárdítási receptúra kifejlesztése mellett döntöttünk, amely a vélhetően hosszú távon beszerezhető mészkő-portlandcementek alkalmazásán alapul.

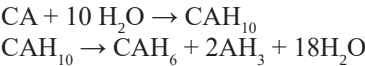
2. ALTERNATÍV KÖTŐANYAGOK

2014; Koťátková et al., 2017; Zatloukalová et al., 2021; Li et al., 2021). A portlandcement alacsony ára mellett számos előnyös tulajdonsággal rendelkezik, mint a tartósság és a mechanikai szilárdság. Ezen túlmenően a különböző radioaktív szennyező kationokat, anionokat ill. oxoanionokat is szilárd fázisban képes tartani (Wieland és Van Loon, 2002; Ochs et al., 2016; Gillispie et al., 2020; Duque-Redondo, 2021). Másrésről a LRW szilárdítás egyik fontos célja a radioaktív hulladéktárolók minél hatékonyabb helykihasználtsága, amely nagy víz-cement tényezővel (v/c) érhető el. A mátrix nagy víztartalma azonban megnöveli a szilárdított termék porozitását (Tylor, 1997; Nehme, 2004; Zheng et al., 2021), ennek következtében ronthatja a kioldódási tulajdonságát (Helliwell, 2014). Ezt a jelenséget különböző cement kiegészítő anyagokkal (SCM) igyekeznek csökkenteni, kihasználva ezek puccolános képességét, amely kompaktabb szerkezetet eredményez (Nwankwo et al., 2020).

A cement kiegészítőanyagok lehetnek közel inert anyagok (I. típusú kiegészítőanyagok; MSZ 4798), mint pl. töltőanyagok (MSZ EN 12620:2002+A1), pigmentek (MSZ EN 12878), mészkőliszt, valamint lehetnek puccolános vagy látens hidraulikus képességű anyagok (II. típusú kiegészítőanyagok; MSZ 4798). A puccolános anyagok, mint a pernye (MSZ EN 450-1), szilikapor, kohósalak, metakaolin (Mlinárik és Kopeckó, 2013) és a rizspelyva hamu (El-Dakroury és Glasser, 2008) amorf szilikátokat ill. alumino-szilikátokat tartalmaznak, és a cement hidratációjakor keletkező portlandittal (Ca(OH)₂) reagálva képeznek kalcium szilikát hidrát (CSH) vagy kalcium-aluminát-szilikát hidrát (CASH) fázisokat. A látens hidraulikus képességű anyagok megfelelő (lúgos vagy szulfátos) aktiválás után vízzel közvetlenül is reakcióba léphetnek, és hidraulikus kötőanyagként viselkednek (Snellings, 2023).

2.1 Kalcium-aluminát cementek

A kalcium-aluminát cementek (CAC) mind összetételükben, mind a hidratációs reakció mechanizmusukban eltérnek a portlandcementektől. Ezekkel az alternatív cementekkel készült hulladékok jobb kioldódási és ionmegkötő képességgel rendelkezhetnek, valamint a cementpép pH-ja is csökkenthető. Ezek a cementek speciális hidraulikus kötőanyagok, amelyek fő alkotórésze kalcium aluminát (CaO·Al₂O₃, CA), de az összetétele széles tartományban változhat, amely az alapanyag minőségétől és az előállítás módjától függ. A hidratációs folyamat a hőmérséklet függvényében eltérő lehet: alacsonyabb hőmérsékleten (< 20°C), metastabil kalcium-aluminát-dekahidrát (CAH₁₀, CaO·Al₂O₃·10H₂O), és dikalcium-aluminát-oktahidrát (C₂AH₈, 2CaO·Al₂O₃·8H₂O) képződik, míg magasabb hőmérsékleten (> 30°C), hidrogránát (3CaO·Al₂O₃·6H₂O, C₃AH₆) és alumínium hidroxid (Al(OH)₃, AH₃) keletkezik. Továbbá a CAH₁₀ átalakul CAH₆-tá, amely 52,6%-kal csökkenti a szilárd fázis mennyiségét, és növeli a porozitást, amely a cementezett termék szilárdságának csökkenéséhez vezet:



Másrésről a CAC jobban ellenáll a hőmérsékleti és kémiai

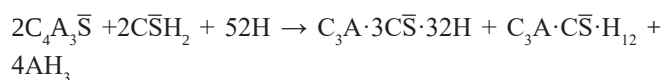
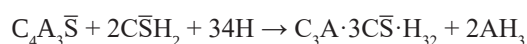
hatásoknak, mint a portlandcement, amely lehetővé teszi LRW-k szilárdítására való alkalmazását (Spence és Shi, 2005; Abdel Rahman et al., 2014; Sun et al., 2014).

2.2 Szulfo-aluminát cementek

A szulfo-aluminát cement (CSAC) használata jó választás lehet azokban az esetekben, amikor el kell kerülni a kötőanyag zsugorodását. Az ilyen típusú cement kalcium-szulfoaluminát klinkerből készül, amely nagy mennyiségben tartalmaz kalcium ásványok mellett szulfát és alumínium komponenseket. A fő ásványi összetevője a vízmentes kalcium-szulfoaluminát (tetraaluminát-trialuminát-szulfát, $4\text{CaO} \cdot 3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{SO}_3$, $\text{C}_4\text{A}_3\bar{\text{S}}$, ásványtani nevén Ye'elimite vagy Klein's compound), illetve emellett a szulfo-aluminát-belit cementben a belit (C_2S) is jelen van. A CSAC gyártása során a CSA klinkert gipszkővel együtt őrlik meg a kötőanyag szabályozás érdekében, majd portlandcementtel, és egyéb kiegészítő anyagokkal (pl. mészkőliszt) keverik össze. A hidratációs folyamat során monoszulfát AFm (aluminát-ferrit monoszubsztituált) fázis és alumínium hidroxid ($\text{Al}(\text{OH})_3$) keletkezik:



Gipsz ($\text{C}\bar{\text{S}}\text{H}_2$) jelenlétében AFt (aluminát-ferrit triszubsztituált) és AFm fázis is képződik:



Ez a cement típus alkalmas alumínium (Al) és urán (U) tartalmú radioaktív hulladékok szilárdítására is, mivel alacsonyabb pH-jának köszönhetően elkerülhető a hidrogén gáz képződés, amely a portlandcementek magas pH-ja miatt problémát jelent. A CSAC ezen kívül lerövidítheti a cink (Zn) és a bór (B) tartalmú keverékek kötési idejét, kompenzálva azok kötőzavaró hatását (Lan és Glasser, 1996; Spence és Shi, 2005; Coumes, 2012; Abdel Rahman et al., 2014; Ojovan et al., 2019).

2.3 Foszfát cementek

Egy másik lehetséges kötőanyag típus a problematikus LRW-k szilárdítására a foszfát cement, amely sav-bázis reakciók során keletkezik. Az alapanyagok különböző gyenge bázisok vagy amfoter oxidok (ZnO , MgO , CaO stb.), amelyeket foszforsavval (főként ortofoszforsavval, H_3PO_4) és foszfát sókkal ($\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$, KH_2PO_4 , MgKPO_4) aktiválnak. Az alkalmazott aktivátor alapján megkülönböztetünk magnézium- és kalcium-foszfát cementeket.

A foszfát cementek szerepe a fogászati alkalmazások, valamint a sürgős út- és kifutópálya javítások terén jelentős, azok gyors kötése, valamint különösen nagy hajlító- és nyomószilárdsága révén, amely 24 óra alatt elérheti a 150 MPa-t (Coumes, 2012; Abdel Rahman et al., 2014). Ezen kívül történtek kísérletek a foszfát cementek felhasználásával LRW-k szilárdítására is (Covill et al., 2011).

2.4 Mészkő-portlandcementek

A mészkőlisztrel kevert portlandcement klinker tartalmú, ún. mészkő-portlandcementet (Portland-limestone cement, PLC) Európában már a 60-as, 70-es évektől kezdve használják alacsonyabb előállítási költsége és más előnyös tulajdonságai

miatt. Napjainkban az emelkedő szén-dioxid kvóta árak, és a növekvő környezettudatosság következtében egyre nagyobb szerephez jutnak a PLC-k, amelyek felhasználásával a kohósalak-portlandcementekkel összevethető vízzáróság és nyomószilárdság érhető el (Czoboly et al., 2023).

Az MSZ EN-197-1 jelzetű szabvány a PLC-ket két osztályba sorolja a mészkőliszt tartalmuk alapján:

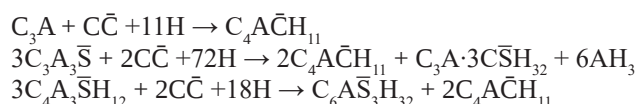
- CEM II/A-L és CEM II/A-LL, amelyek 6-20%,
- CEM II/B-L és CEM II/B-LL, 21-35% mészkőlisztet tartalmaznak.

A cement jelében az L és LL jelölések az MSZ EN 13639 szerint meghatározott maximálisan megengedhető szerves széntartalomra (total organic carbon, TOC) utalnak: L – max. 0,5%, LL – max. 0,20%.

A mészkőportland cementek készülhetnek együttőréléssel, amely során a klinkert és a mészkövet együtt aprítják. Az együttörelés kisebb szemcséjű mészkőlisztet, és egyúttal nagyobb vízfelvételt eredményez. A külön őréssel előállított cement esetében kisebb vízigény érhető el. A mészkőlisztet természetes mészkő őrlésével állítják elő.

A cement mészkőliszt tartalma különböző hatásmechanizmusokon keresztül befolyásolja a klinker ásványok hidratációját. A mészkőliszt *töltőanyag hatása* (filler effect) függ annak részecskeméretétől, mivel a cement szemcséknél kisebb méretű mészkő részecskék kitöltik a cement szemcsék közötti hézagokat. A mészkőliszt beépülése növeli a tartósságot és a szilárdságot, ill. csökkenti a beton terülését (Craeye et al, 2010).

Mivel a Ca és az O atomok planáris elhelyezkedésűek a CSH fázisokban és a kalcitban egyaránt, a finom mészkő részecskék *kristálygócokképző hatással* is rendelkeznek: a nukleációs góccokon adszorbeálják a Ca^{2+} ionokat, így hozzájárulnak a CSH fázisok mészkőszemcsék felületén történő kiválásához, ezáltal felgyorsítják és teljesebbé teszik a cement hidratációját. Másrészt a CaCO_3 részleges oldódásával hozzájárul a CSH fázisok túltelítettségéhez szükséges Ca^{2+} ion koncentráció biztosításához, amely további *nukleációs hatást* eredményez (Taylor, 1997; Lothenbach et al., 2008; Gável, 2024; Li és Cao, 2024). Továbbá a CaCO_3 oldódása következtében a pórusoldat karbonát (CO_3^{2-}) koncentrációja szintén megnő, amely reagálhat a cement aluminát (C_3A , C_4AF) tartalmával, és karbo-aluminátok kialakulásához vezet. A mészkő (CaCO_3 , $\text{C}\bar{\text{C}}$) *kémiai hatásának* kémiai egyenletei a teljesség igénye nélkül a következők (De Weerd et al., 2011, Wang et al., 2018,):



Az a képesség, hogy a mészkő-portlandcementek kalcium-karbonát tartalma képes reagálni az aluminátokkal, lehetővé teszi kis karbon tartalmú kötőanyagként való felhasználását. Napjainkban egyre jobban elterjed a mészkő-kalcinált agyag összetételű cementek, LC^3 (L: limestone, C^3 : calcined clay and clinker) alkalmazása, amely egy ígéretes kötőanyag a portlandcementek helyettesítésére. Az LC^3 cementek 30-35%-ban általában gyenge minőségű (low grade) kalcinált agyagot és 15% mészkövet tartalmaznak, 45-50% portlandcement klinkert és 5% gipszkő kötőanyag szabályozó anyag mellett. Ez a cement egy költséghatékony, zöld megoldás lehet a portlandcementek helyettesítésére, amely megfelelő szilárdsággal és tartóssággal

rendelkezik (Scrivener et al., 2018). Az építőipari alkalmazáson túl történtek kísérletek a LRW szilárdítására LC³ cement felhasználásával (Wang et al., 2024).

2.5 Alkáli aktivált kötőanyagok

A LRW szilárdítás legfontosabb célja, hogy tartósan stabilizálja és szilárd halmazállapotban tartsa a radioaktív szennyező izotópokat a lehető legkisebb permeabilitású mátrixban. A portlandcementek felhasználásával készült keverékek viszonylag nagy porozitással rendelkeznek, így a víz és más agresszív anyagok könnyen behatolhatnak a szerkezetbe. Ennek következtében kloridok, szulfátok diffundálhatnak a cementkőbe, ami acélbetét korróziót, másodlagos ettringit képződést, esetleg taumazit-szulfát korróziót okozhat, valamint megnöveli a korábban megkötött szennyeződések kioldódásának kockázatát (Atkinson et al., 1985; Kopecskó, 2006; Révai és Laczkó, 2006; Zatloukalová et al., 2024).

Az ún. alkáli aktivált anyagok alkalmazásával a hagyományos cementek mennyisége nagymértékben csökkenthető, illetve el is hagyható, azaz önálló kötőanyagként használhatók (Kopecskó et al., 2021). Az alkáli aktivált anyagok olyan, részben cementkötésű anyagok, amelyek készítése során prekurzorként általában különböző ipari melléktermékeket, pl. granulált kohósalakot vagy pernyét (Gaddes et al., 2018; Sas et al., 2019), illetve más, puccolános vagy látens hidraulikus képességű anyagokat (metakaolin, szilikapor, zeolit) használnak (Villa et al., 2010; Hot et al., 2015). Ezek az anyagok önmagukban nem kötőképeseek, de különböző lúgos oldatokkal (alkáli hidroxidok, gyenge savak sói, alkáli szilikátok és alumino-szilikátok) aktiválhatók (Glukhovskiy et al., 1980), amelyek hatására poliszialátok (geopolimerek) ill. oligo alumino-szilikátok alakulnak ki (Davidovits, 2008; Ji és Pei, 2019).

Az így kialakított kompozit anyagok segítségével elkerülhető a különböző szennyező ionoknak a cement hidratációs folyamatára gyakorolt zavaró hatása. Ezek közül az LRW-k szilárdítása szempontjából az egyik legfontosabb tényező a borátok kötőkésleltető hatásának kiküszöbölése, ugyanakkor figyelembe kell venni azt is, hogy a nagy koncentrációban jelenlévő CaO, valamint a klorid (Cl⁻) és karbonát (CO₃²⁻) ionok lerövidítik az alkáli aktivált anyagok kötési idejét.

Az alkáli aktivált anyagok, és ezeken belül különösen a geopolimerek szerkezete rendkívül kompakt, amely ellenállóvá teszi a beágyazott radioaktív hulladékokat a talajvíz kioldó, és az agresszív kémiai anyagok korróziós hatásával szemben. Ezen kívül nagyfokú mechanikai stabilitású és hőhatással szemben is ellenálló mátrix kialakítására alkalmasak (Vance és Pereira, 2011; Abdel Rahman et al., 2014). Itt kell megemlítenünk, hogy az alkáli aktivált anyagok, különösen a geopolimerek előállítása nagy körülményt igényel. A keverék készítés során szigorúan be kell tartani a keverési arányokat és az érlelési körülményeket, ezen kívül az erősen lúgos kémhatású aktivátorok speciális munkavédelmi intézkedéseket is igényelnek. Figyelembe kell venni továbbá a hulladék és a kötőanyag összeférhetőségét, mivel a lúgos kémhatásra érzékeny anyagok bomlásnak indulhatnak és zavarhatják a geopolimerizációs folyamatot.

3. A CEMENTEZETT HULLADÉKKAL SZEMBEN TÁMASZTOTT KÖVETELMÉNYEK

A keverék tervezése során a radioaktív szennyezők lehető legbiztonságosabb megkötése mellett a fő célunk egy hosszú távon fenntartható receptúra kidolgozása volt, amely minden technológiai és hulladék átvételi követelménynek (HÁK) megfelel.

A receptúra készítéséhez a hazai gyártású és vélhetően hosszú távon beszerezhető, a DDC Váci gyárában előállított CEM II/A-LL 42,5 N típusú mészkő-portlandcementet alkalmaztuk.

A cementpéppel szemben támasztott elvárások:

- Az észszerűen legnagyobb LRW tartalomra kell törekedni, amely még repedésmentes, egyenletes textúrát biztosít.
- A cementpépnek meg kell felelnie a technológiai követelményeknek:
 - A kötési idő kezdete (IST) nem lehet túl rövid (min. 2 h), hogy biztonsággal kiengedhető legyen a keverőtartályból, de nem lehet túl hosszú sem (max. 48 h), a logisztikai problémák elkerülése érdekében.
 - A cementpép konzisztenciájának (Suttard féle területének) 120 és 170 mm közötti tartományba kell esnie, hogy az elterülő cementpép kitöltse a szilárd hulladékok közötti szabad üregeket.
 - A cementpép vízfeladásának (kivérzés) 1 V/V% alatt kell lennie, a homogén, repedésmentes cementkő elérése céljából.
 - A termék hidratációs hőfejlődése nem érheti el a 80 °C-ot a cementkőben fellépő hőmérséklet-különbség hatására kialakuló repedések kiküszöbölésére.
- A cementezett LRW-nek meg kell felelnie a HÁK két feltételének is:
 - A nyomószilárdsága haladja meg a 10 MPa-t.
 - A diffúziós együttható egyik izotóp tekintetében se legyen nagyobb, mint 10⁻⁷ cm²/s.
- A receptúra legyen a lehető legegyszerűbb, és illeszkedjen a jelenlegi technológiai rendszerhez.

4. A RECEPTÚRA KIDOLGOZÁS FOLYAMATA

A receptúra kidolgozása során az alábbi kérdéseket kellett tisztázni:

- Alkalmazható-e a váci CEM II/A-LL 42,5 N típusú cement extrém nagy borát koncentrációjú (kb. 180 g/dm³) folyékony hulladékok szilárdítására?
- Előállítható-e olyan keverék a váci CEM II/A-LL 42,5 N típusú cement felhasználásával, amely egyúttal megfelel a technológiai és a hulladékátvételi követelményeknek is?
- Amennyiben igen, a keverék előállítása megvalósítható-e a meglévő technológiai rendszer keretein belül?

4.1 Inaktív próbakeverések

Amint korábban említettük, a keveréknek képesnek kell lennie a lehető legtöbb folyadék megkötésére, ezért meghatároztuk az alkalmazott cement maximális vízfeltevő-képességét (1. ábra, 1. lépés), és egy olyan keveréket állítottunk elő, amely meghaladva a cement elméleti (27,5%) vízigényét, még enyhén kivérzik. Ezt a jelenséget 0,31 víz-cement tényezőnél (v/c) értük el, de 10% metakaolin alkalmazásával 0,40 víz-

kötőanyag tényező (v/k) értékig tudtuk növelni (1. ábra, 2. lépés).

Annak ellenére, hogy ez a keverék is kis mértékben kivérzett, jó támpontot adott a nagy borát tartalmú, inaktív modell oldatok (180 g/dm³, pH = 12) felhasználásával készült cementpépekkel végzett kísérletekhez.

Abból a célból, hogy a sugárdózist a keverék tervezés során a minimálisra csökkentjük, a valós radioaktív beárlási maradékhhoz hasonló összetételű ún. modell oldat készítésére volt szükség. Az oldat elkészítésénél a nagy borát koncentrációt, az 1:1 NaOH/H₃BO₄ molarányt, a lúgos kémhatást és a víztartalmat vettük számításba. Így a modell oldat összetétele és keverési sorrendje a következőképpen alakult:

1. 210 g szilárd NaOH + 1600 g ioncserélt víz
2. 326 g szilárd bórsav (H₃BO₄).

Az oldat elkészítésénél ügyelni kell a vegyszerek adagolási sorrendjére, valamint a NaOH koncentrációjára. Ha nem tartjuk be a fenti lépéseket, vagy túl kevés lúgot adagolunk az oldathoz, az zavarossá válik, amely a későbbiekben sem tisztul ki.

Már az inaktív modell oldattal végzett kísérletek elején világossá vált, hogy a nagy borát tartalmú oldatok szilárdítására alkalmazni kívánt váci CEM II/A-LL 42,5 N típusú cement a jelenleg alkalmazott Ekonrad Metasil típusú metakaolinnal (MK) együtt sem alkot kötőképes keveréket (1. ábra, 3. lépés), (ellentétben a jelenleg alkalmazott portlandcement tartalmú receptúrával) ezenkívül, a megfelelő konzisztencia elérése érdekében adalékszer alkalmazására is szükség van.

A Radioaktív Hulladék Cementező Üzem technológiai kialakítása lehetővé teszi a LRW-k kémhatásának változtatását salétromsav (kb. 60 m/m%) ill. nátrium-hidroxid (NaOH; kb. 250 g/dm³) adagolással. Ennek köszönhetően a cementpép alkáli aktiválása megvalósítható oly módon, hogy a technológiai 250 g/dm³ koncentrációjú lúgoldattal (2. ábra, bal oldali tartály) a LRW-t alkáli aktivátorrá alakítjuk.

Ehhez először meg kellett határozni az aktiváláshoz szükséges minimális NaOH mennyiséget, amit a modell oldathoz adagolt szilárd lúg alkalmazásával állapítottunk meg (1. ábra, 4. lépés). Azért választottuk ezt a módszert,



2. ábra: A technológiai lúgtartály (balra) és salétromsav tartály (jobbra)

hogy változatlan víztartalom (v/k = 0,40) megtartása mellett tanulmányozhassuk a cementpép viselkedését.

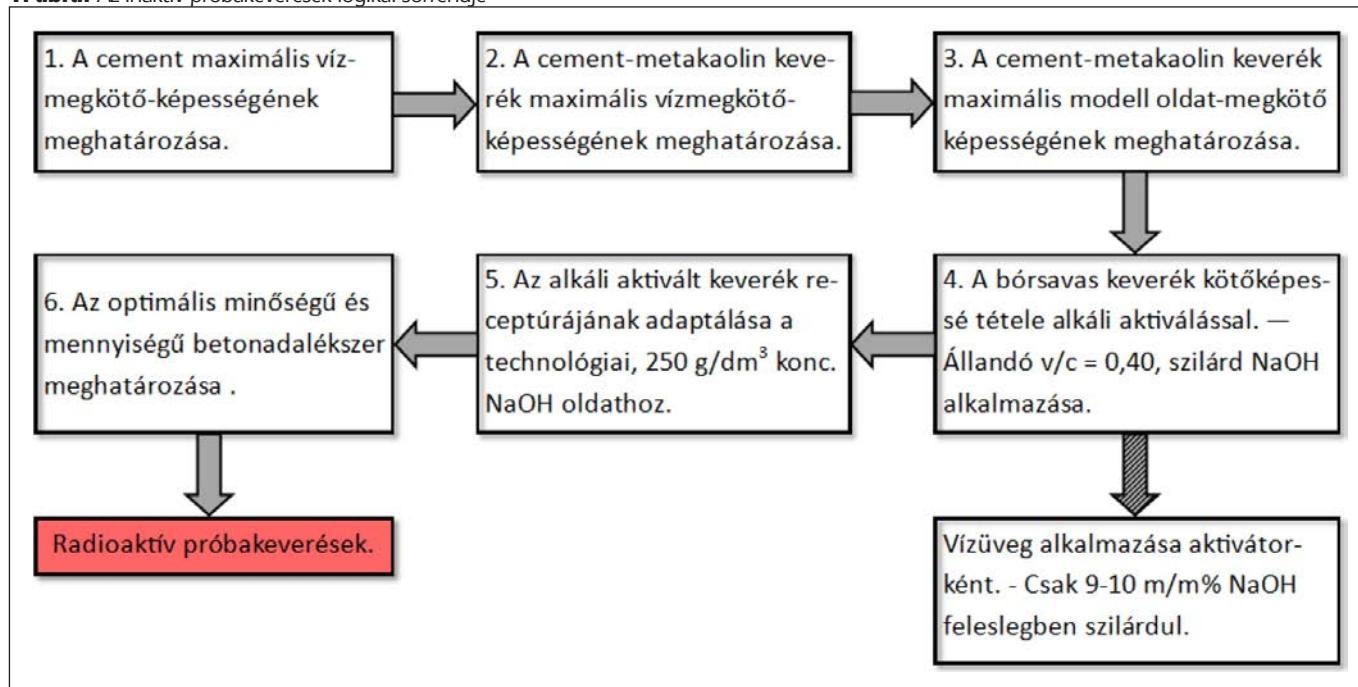
A próbakeverések eredményei alapján a megfelelő konzisztencia és kötési idő 8 m/m% NaOH adagolásával érhető el. Ennél nagyobb lúgmennyiség túl gyors kötést és repedezett textúrát, míg kisebb koncentrációban lassabb kötést ill. kivérzést eredményez. Az optimális keverék összetételét a 2. táblázat tartalmazza.

2. táblázat: Szilárd NaOH felhasználásával készült optimális keverék összetétele

Összetétel	Koncentráció [%]
CEM II/A-LL 42,5 N	90,0
Ekonrad Metasil MK	10,0
Modell oldat	57,4
NaOH (szilárd)	8,0
MAPEI Dynamon NRG 1012 H	1,5

Fontos megjegyeznünk, hogy az alkáli aktivált keverékek esetében megpróbáltuk aktivátorként alkalmazni a Merck által gyártott nátrium-szilikát (vízüveg) oldatot is, de minden esetben kisebb-nagyobb kivérzés és repedések alakultak ki a termék felületén. Egyedül a 3. táblázatban szereplő

1. ábra: Az inaktív próbakeverések logikai sorrendje



összetétellel kaptunk megfelelő szilárdságú keveréket. Azonban ez a keverék csak szilárd NaOH adagolásával adott megfelelő terméket, amely túl gyors kötése miatt nem alkalmas a RHCÜ-ban való felhasználásra.

3. táblázat: Nátrium-szilikát felhasználásával elért kötőképes keverék összetétele

Összetétel	Koncentráció [%]
CEM II/A-LL 42,5 N	90,0
Ekonrad Metasil MK	10,0
Modell oldat	51,3
Nátrium-szilikát oldat	1,0
NaOH (szilárd)	10,0
Sika Viscocrete 21	0,5

A minimális (szilárd) lúg igény ismeretében a receptúrát adaptálni kellett a technológiai 250 g/dm^3 koncentrációjú NaOH oldathoz az üzemi körülmények közötti alkalmazhatóság érdekében, amely nem tette lehetővé a korábban megállapított $v/k = 0,40$ tényezőt (1. ábra, 5. lépés). A technológiai NaOH oldattal bevitt többlet víz kompenzálására csökkentenünk kellett a keverék modell oldat tartalmát. Végül pedig meg kellett határoznunk a megfelelő betonadalékszer optimális mennyiségét az előírt konzisztencia elérése érdekében (1. ábra, 6. lépés).

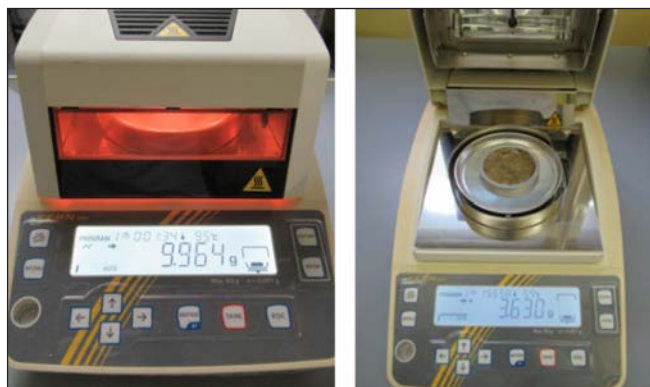
A modell és technológiai lúgoldat felhasználásával készült legjobb keverék összetételét a 4. táblázatban foglaltuk össze.

4. táblázat: A modell oldat és technológiai lúg oldat felhasználásával készült optimális keverék összetétele

Összetétel	Koncentráció [%]
CEM II/A-LL 42,5 N	90,0
Ekonrad Metasil MK	10,0
Modell oldat	37,7
NaOH (250 g/dm^3)	15,0
MAPEI Dynamon NRG 1012 H	1,5

Bár ez a keverék túl gyorsan kötött és apróbb légbuborékok jelentek meg a cementkő felszínén, jó kiindulást jelentett a radioaktív keverékek készítéséhez.

3. ábra: A tároló tartályból (balra) vett bepárlási maradék (jobbra)



4. ábra: A bepárlási maradék nedvesség tartalmának meghatározása

4.2 Radioaktív próbakeverések

Az LRW felhasználásával készült keverékek tervezése előtt először meg kellett határozni a sűrítmény (3. ábra) víztartalmát, amelynek eredménye 63,67% volt. A mérést egy Kern DBS nedvesség meghatározó mérleggel végeztünk el (4. ábra).

A sűrítmény víztartalmával tehát korrigálni kellett a cementpép összetételét, ugyanakkor feltehetően a sűrítmény szerves anyag és egyéb oldott szennyeződés tartalma (1. táblázat) miatt a receptúrán ismét változtatni kellett. A metakaolin mennyiségének 5%-os emelésével (6. ábra, 8. lépés) lehetőség nyílt a cementpép LRW tartalmának növelésére (6. ábra, 9. lépés). További metakaolin adagolással csak a cementpép folyóssága csökkent, de kisebb kivérzést még 25% MK tartalomnál is megfigyeltünk.

A felületi repedezettséget és a légbuborékok számát továbbra sem tudtuk csökkenteni, ezért más típusú metakaolinra és adalékszerre váltottunk. Ennek érdekében próbakeveréseket végeztünk a Magyarországon forgalomba hozott legtöbb metakaolinnal (Newchem Metaver I, K, M, N, O), és a szoba jöhető adalékszerrel (Mapei és Sika), valamint meghatároztuk azok optimális mennyiségét is (6. ábra, 10. lépés).

Számos betonadalékszerrel teszteltünk az előírt konzisztencia és buborékmentes termék elérése érdekében. A legjobb eredményt a Sika Control 60 zsugorodáscsökkentő adalékszer 0,5%-os adagolásával értük el, miközben sikerült megszüntetni a buborékképződést is, annak ellenére, hogy az adalékszer a kémia roncsolódás jeleit mutatta (5. ábra) az alkáli aktivátor sűrítmény erősen lúgos kémhatásának következtében.

Ugyanakkor a továbbra is megjelenő zsugorodási repedések számának csökkentését csak polipropilén (PP) mikroszálakkal,



5. ábra: A Sika Control 60 tartalmú alkáli aktivátor sűrítmény

ill. zeolit (2-8 mm frakció) hozzáadásával tudtuk elérni (6. ábra, 11. lépés). Próba keveréseink alapján a 0,3%-nál nagyobb PP mikroszál adagolás, valamint a zeolit 0-1 mm-es frakciója szintén a cementpép kivérzéséhez vezetett.

Végül elvégeztük a fenti módon kialakított keverék teljes laboratóriumi vizsgálatát, amely minden tekintetben kielégítette mind a technológiai, mind a hulladék átvételi követelményeket (6. ábra 12. lépés).

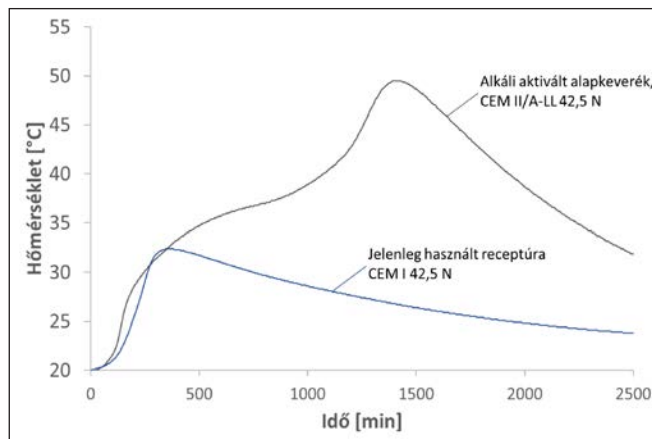
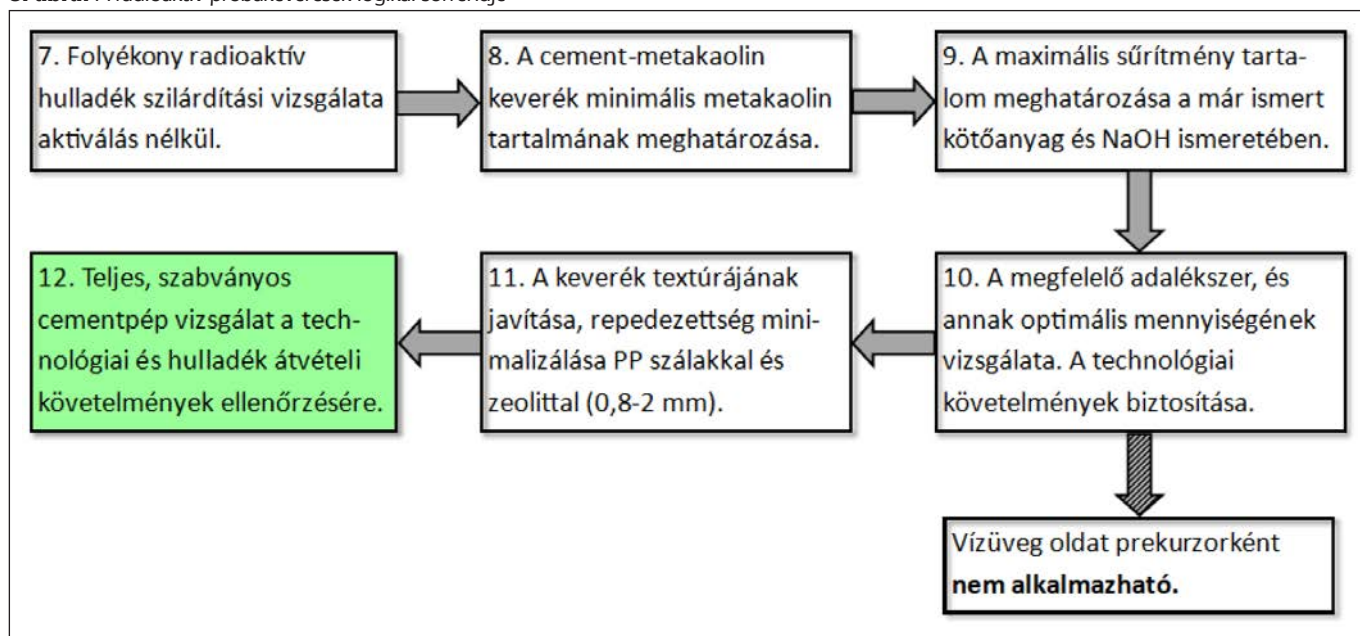
5. ALKÁLI AKTIVÁLT RECEPTÚRA ÉS MÉRÉSI EREDMÉNYEK

A kísérleteink eredményeképpen kidolgoztuk a 5. táblázatban látható összetételű alkáli aktivált „alapkeveréket”, amely 53% bepárlási maradékot és 15% Newchem Metaver O típusú metakaolint tartalmaz.

5. táblázat: A kifejlesztett alkáli aktivált alapkeverék összetétele

Összetétel	Koncentráció [%]
CEM II/A-LL 42,5 N	85,0
Newchem Metaver O	15,0
Bepárlási maradék	53,0
NaOH (250 g/dm ³)	16,0
Sika Control 60	0,5

6. ábra: A radioaktív próbakeverések logikai sorrendje



7. ábra: A radioaktív keverékek hőfejlődési profiljai

Ez a szilárdított radioaktív hulladék ugyan 4%-kal kevesebb sűrítményt tartalmaz, mint a jelenleg alkalmazott, portlandcementet tartalmazó receptúra, de nagyobb korai szilárdságot és kontrollálható kötési időt tesz lehetővé. Másrésről a metakaolin tartalmat 10%-kal tudtuk csökkenteni, amely mérsékli az előállítás költségeit. Ráadásul ennek a terméknek van magyarországi forgalmazója, amely tovább növeli a kötőanyag ellátásbiztonságát.

A keverés során „alkáli aktivátor bepárlási maradékot” készítettünk 16% technológiai NaOH oldat felhasználásával, majd 0,5% SIKA Control 60 adalékszerrel adtuk hozzá. Végül az előre bemért kötőanyagot keverés közben az oldathoz adagoltuk.

A keverés után elvégeztük pépsűrűség, konzisztencia, kötési idő és hőfejlődés méréseket. A keverék maximális hidratációs hőfejlődése ugyan nagyobb, mint a jelenleg alkalmazott beremendi CEM I 42,5 N típusú cementtel készült keveréké (7. ábra), de a borítók kötés késleltető hatása következtében még így is 30 °C-kal alacsonyabb, mint a követelményekben előírt legfeljebb 80 °C.

Az effektív diffúziós együttható meghatározását az ASTM C1308-08 szabvány alapján végeztük el: az alapkeveréket tartalmazó keverékek felhasználásával Ø25×50 mm méretű, henger alakú próbatesteket készítettünk. Ezeket 28 napos érlelés után (20 °C, 90% RH) után kizsalasztuk, majd egy műanyag fedélhez rögzítve 20,0±0,1 °C-os ioncserélt vízbe merítettük. A próbatestet tartalmazó edényt egy Memmert



8. ábra: Kioldódás vizsgálat az ASTM C1308-08 szabvány alapján

IPP110 típusú inkubátorszekrénybe helyeztük, amelyben állandó $20,0 \pm 0,1$ °C-on tartottunk (8. ábra). A szabvány alapján 2 h, 7 h elteltével, majd további 11 nap során naponta a próbatesteket friss, tiszta ioncserélt vízbe helyeztük át. A kioldó vízből mintát vettünk, majd γ -, ill. β -spektrométerrel (folyadékszcintillációs spektrometria, LSC) meghatároztuk a kioldódó izotópok aktivitás-koncentrációját.

A mérési eredményeket a BME által erre a célra kifejlesztett ILT15 szoftverrel (Pátzay et al., 2019) valamint a Fick-törvények szerint is meghatároztuk.

A próbatest tömegének és a próbatest izotóp tartalmának ismeretében meghatározható a kioldóvíz növekményes kioldási aránya (Incremental Fraction Leached, IFL):

$$IFL_n = a_n^i / A_0^i \quad (1)$$

ahol az i izotóp kioldó folyadékban mért aktivitása (Bq) az n -edik kioldódási intervallum során, az i izotóp kezdeti aktivitása (Bq) a próbatestben.

Az növekményes kioldási arányok ismeretében meghatározható a kumulatív hányad (Cumulative Fraction Leached, CFL):

$$CFL_j = \frac{\sum_{n=1}^j a_n^i}{A_0^i} = \sum_{n=1}^j IFL_n = 2 \frac{S}{V} \sqrt{\frac{D_e t}{\pi}} \quad (2)$$

A kioldódási idő függvényében ábrázolt CFL értékek grafikus ábrázolásának segítségével az egyes keverékek kioldódási tulajdonságai összehasonlíthatók és felhasználhatók a hulladékforma hosszú távú kioldódási és tartóssági tulajdonságának előrejelzéséhez (Rostamiparsa et al., 2023; Iklaga et al., 2025).

Végül Fick második törvényének felhasználásával kiszámítottuk az effektív diffúziós együtthatókat (Goo et al., 2021):

$$D_e = \pi \left[\frac{IFL}{\Delta t_n} \right]^2 \cdot \left[\frac{V}{S} \right]^2 \cdot T \quad (3)$$

ahol D_e az effektív diffúziós együttható (cm^2/s), D_{t_n} az n -edik kioldódási intervallum (s), V a próbatest térfogata (cm^3), S a próbatest felülete (cm^2) és T a kioldási idő, amely a félvégtelen közeg esetén az n -edik kioldási intervallum esetén az átlagos időt jelenti. A kioldódási idő a következőképpen számítható:

$$T = \left[\frac{1}{2} (\sqrt{t_n} + \sqrt{t_{n-1}}) \right]^2 \quad (4)$$

Ezt követően mért adatokból számított CFL (eq. 2) és D_e (eq. 3) értékeket összehasonlítottuk a diffúziós modellek segítségével kapott effektív diffúziós együttható értékével. A mérésekből származó és a modellezett CFL értékeket az idő függvényében ábrázoltuk a validált ILT15 szoftver segítségével. A görbék legjobb illeszkedését a „véges henger” (diffúziós kioldási) modell adta, amely figyelembe veszi a szilárd anyag „kimerülését” a kioldási folyamat során. Ezért számításaink során ezt a modellt alkalmaztuk az effektív diffúziós együttható meghatározására, majd összehasonlítottuk a Fick második törvényének eredményeivel.

Az alkalmazott véges henger modell a CFL értékeket a következő kifejezésekkel számítja ki:

$$CFL = \frac{\sum a_n^i}{A_0^i} = \left(1 - \frac{32}{\pi^2} S_p(t) S_c(t) \right) \quad (5)$$

egy sorozatra vonatkozóan

$$S_p(t) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\exp \left(- \left[\frac{(2n-1)\pi}{H} \right]^2 D_{et} \right)}{(2n-1)^2} \quad (6)$$

és

$$S_c(t) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\exp \left(- \left[\frac{\beta_m}{R} \right]^2 D_{et} \right)}{\beta_m^2} \quad (7)$$

ahol a β_m paraméter a nulladik rendű hengeres Bessel-függvény m -edik zérushelyét jelöli (Pescatore, 1990).

5.1 A PP szál tartalmú keverékek

Az alapkeverékkel készített cementkő felületén továbbra is zsugorodási repedések jelentek meg (9. ábra, bal oldali kép), amelyek megakadályozása céljából Sika Fibermesh 150-12 mm típusú polipropilén (PP) monorost szálakból álló mikroszálakat adagoltunk a keverékhez 0,3% koncentrációban (9. ábra, jobb oldali kép), amely képes felvenni a zsugorodás során fellépő feszültséget.

A keverék technológiai paraméterei:

- sűrűség: $1,809 \text{ g/cm}^3$



9. ábra: Az alapkeverék PP szálak nélkül (balra) és szálakkal (jobbra)

- Suttard-féle terület: 118 mm (120 – 170 mm), de tixotróp tulajdonságú, rázás hatására > 200 mm
- kötési idő kezdete (IST): 2 h 35 min (> 2 h)
- kötési idő vége (FST): 4 h 55 min (< 48)
- maximális hidratációs hőmérséklet: 49,5 °C (80 °C).

A HÁK-nak való megfelelés eredményei:

- nyomószilárdság 7 napos korban: 22,4 MPa (nincs előírás)
- nyomószilárdság 28 napos korban: 32,0 MPa (> 10 MPa).

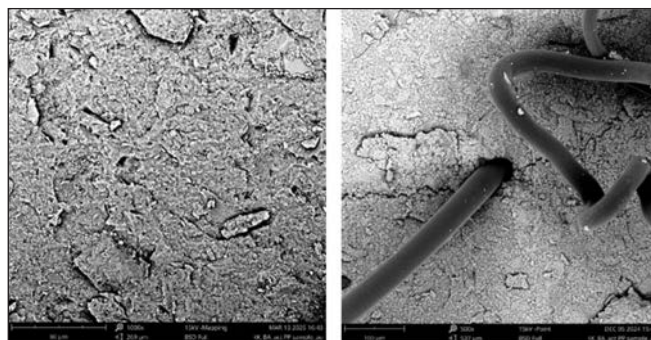
Zárójelben tüntettük fel a technológiai és a hulladékátvételi követelményeket. A PP szálakat tartalmazó cementpép tehát minden technológiai és szilárdsági követelménynek megfelel, ezen felül a szálak repedés áthidaló képességének köszönhetően (10. ábra, bal oldali kép) a termék tartósabb, a nyomószilárdság mérésakor kisebb a kiporzás, amely csökkenti a kontamináció és a személyzet belső sugárterhelésének (inkorporáció) kockázatát még extrém nagy terhelés esetén is (10. ábra, jobb oldali kép). Másrészt a próbatestek könnyen eltávolíthatók az öntőformákból kézzel, vagy pneumatikusan. Nincs szükség az öntőformák átalakítására és hidraulikus prés alkalmazására.

A pásztázó elektron mikroszkópos (scanning electron microscope, SEM) vizsgálattal a PP szálakat tartalmazó alkáli aktivált keverék kompakt textúráját figyeltük meg (11. ábra, bal oldali kép, nagyítás 1000×). A vizsgálatot a nyomószilárdság vizsgálati töreminta felületén végeztük el. A vizsgálati minta SEM vizsgálata során megállapítottuk, hogy a szálak nem húzódtak ki (11. ábra, jobb oldali kép, nagyítás 500×), valamint nem tapasztaltunk szálszakadást sem, amely segíthet elkerülni a nyomószilárdság vizsgálat során fellépő, további, kiporzásból fakadó kontaminációt (felületi radioaktív szennyeződést) és inkorporációt (a személyzet belső sugárterhelését).

A diffúziós együttható számolás, PP szálak keverék

A mészkő-portlandcement kiváló ionmegkötő képessége miatt lényegében csak a könnyen oldódó cézium (^{137}Cs) és a

10. ábra: A PP szálakkal készített alapkeverék



11. ábra: A PP szál tartalmú keverék SEM felvétele

trícium (^3H) izotópok detektálhatók a kioldóvízben, amelyek segítségével az effektív diffúziós együttható meghatározható. Az összehasonlíthatóság érdekében feltüntetettük a jelenleg alkalmazott portlandcement és 25% metakaolint tartalmazó keverék diffúziós eredményeit is az ILT15 program segítségével (12. ábra).

A 12-13. ábrákon piros színnel a diffúziós kioldódási modellel számított (eq. 5-7) elméleti értékekhez tudjuk viszonyítani a vizsgálat során mért tényleges, kékkel jelölt CFL értékeket. Látható, hogy a PP szálakkal készített keverék kumulatív kioldási arányai - különösen a trícium esetében - nagyon közel állnak az elméleti, modellezett értékekhez. Ennek köszönhetően a program 4% relatív hibával képes meghatározni az effektív diffúziós tényezőt, szemben a jelenleg alkalmazott receptúránál tapasztalt 13%-kal.

A 6-7. táblázat eredményeiből megállapítható, hogy az ILT15 szoftver a Fick-törvényhez hasonló eredményt szolgáltat, amely alkalmassá teszi az alkáli aktivált receptúrával készült keverékek kioldódásának modellezésére is, valamint a szilárdított hulladék minősítésére. Mivel az effektív diffúziós együtthatók két nagyságrenddel kisebbek a korlátnál ($10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$), a keverék kioldódási tulajdonsága is megfelel a hulladék átvételi követelményeknek.

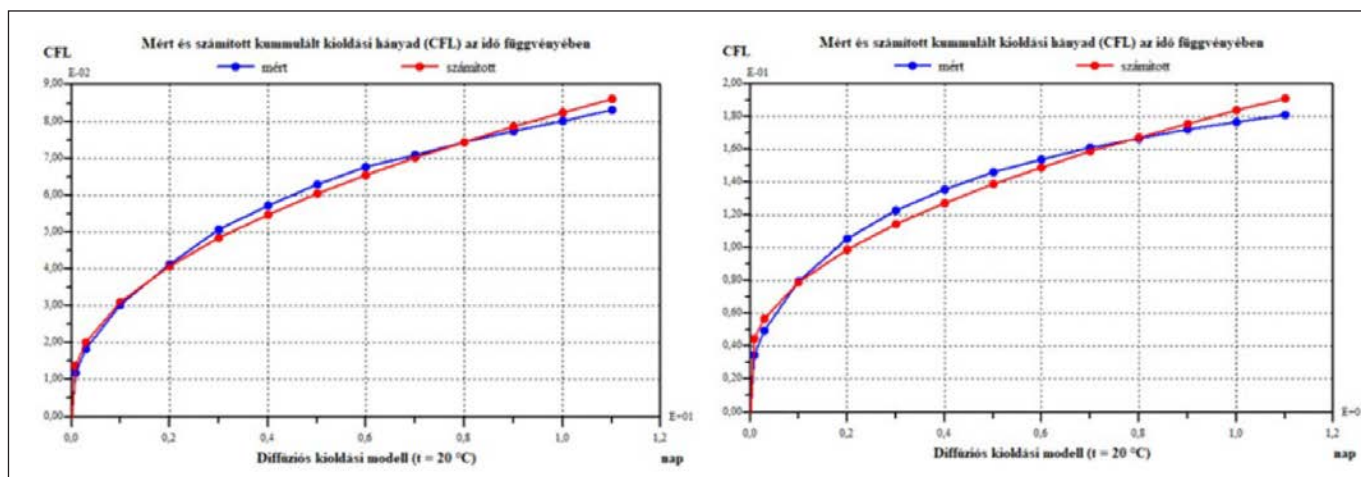
6. táblázat: A jelenleg alkalmazott keverék effektív diffúziós együttható értékei

Izotóp	$D_e [\text{cm}^2/\text{s}] - \text{ILT15}$	$D_e [\text{cm}^2/\text{s}] - \text{Fick II}$
^{137}Cs	$1,3 \cdot 10^{-9}$	$7,5 \cdot 10^{-10}$
^3H	$5,1 \cdot 10^{-9}$	$2,3 \cdot 10^{-9}$

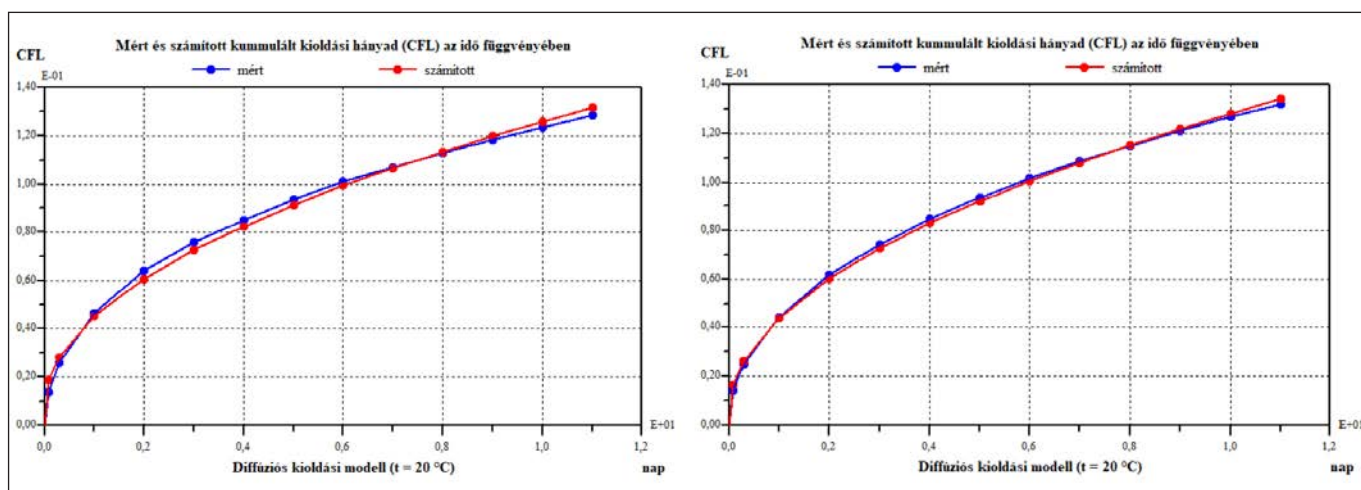
7. táblázat: A PP szálakat tartalmazó alapkeverék effektív diffúziós együttható értékei

Izotóp	$D_e [\text{cm}^2/\text{s}] - \text{ILT15}$	$D_e [\text{cm}^2/\text{s}] - \text{Fick II}$
^{137}Cs	$3,1 \cdot 10^{-9}$	$2,4 \cdot 10^{-9}$
^3H	$3,4 \cdot 10^{-9}$	$2,8 \cdot 10^{-9}$





12. ábra: A jelenleg alkalmazott portlandcementet és metakaolint tartalmazó keverék (^{137}Cs balra; trícium jobbra) kioldódási tulajdonságának (CFL) ábrázolása az ILT15 program segítségével



13. ábra: A PP szálat tartalmazó alapkeverék (^{137}Cs balra; trícium jobbra) kioldódási tulajdonságának (CFL) ábrázolása az ILT15 program segítségével

5.2 Zeolittal készített alapkeverékek

A zeolit kettős szerepet játszik a LRW cementezése során: egyrészt ioncserélő-képessége révén (Jiménez-Reyes et al., 2021) meg tudja kötni a hulladék ^{60}Co és ^{137}Cs tartalmát (*ld. 1. táblázat*), másrészt fel tudja venni a korai zsugorodás során fellépő feszültséget és csökkenti a repedések számát. A zeolit felhasználásával készített cementpép elkészítésekor törekedni kell annak észszerűen legkisebb mennyiségére, mivel a túlzott zeolit hozzáadása gazdaságtalan a hulladéktároló térkitöltése szempontjából. Ügyelni kell a megfelelő szemcseméret-frakció megválasztására, mivel a 0-1 mm zeolit frakció esetén kiüledést és kivérzést tapasztaltunk, ezért kísérleteinkben 0,8-2 mm-es frakciót alkalmaztunk (*14. ábra*). Vizsgálataink során klinoptilolit jellegű zeolitot használtunk fel.

A keverék technológiai paraméterei:

- sűrűség: 1,804 g/cm³
- Suttard-féle területe: 137 mm (120-170 mm), tixotróp tulajdonságú, rázás hatására > 200 mm
- kötési idő kezdete (IST): 4 h 00 min (> 2 h)
- kötési idő vége (FST): 5 h 30 min (< 48 h).

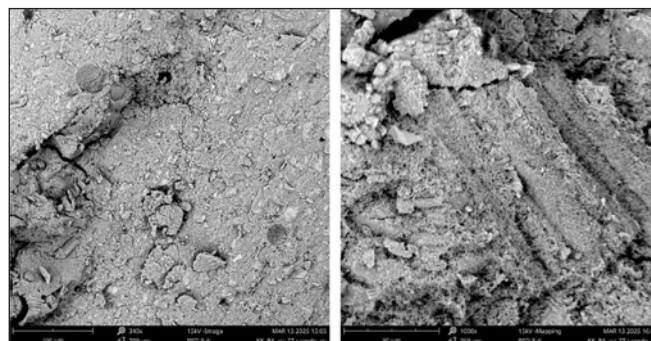
A HÁK-nak való megfelelőség eredményei:

- nyomószilárdság 7 napos korban: 22,6 MPa (nincs előírás)
- nyomószilárdság 28 napos korban: 32,1 MPa (> 10 MPa).

A SEM vizsgálat során megfigyeltük, a PP szálal keverékekkel összehasonlítva, hogy a zeolit tartalmú alkáli aktivált keverékek kevésbé kompakt és heterogénebb

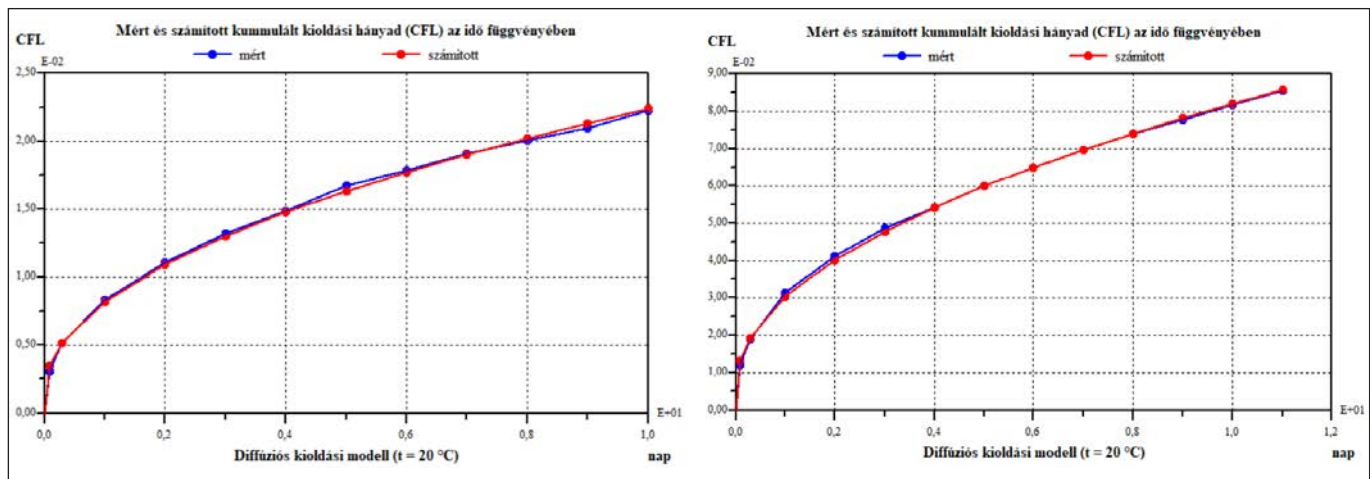


14. ábra: A zeolit felhasználásával készült keverék próbatestei



15. ábra: A zeolit felhasználásával készült keverék SEM felvétele

mikroszerkezettel rendelkeznek, valamint légbuborékok és a beágyazott zeolit szemcsék láthatók a minta törési felületén (*15. ábra, bal oldali kép, 340×*). Látható, hogy a szivacsos szerkezetű zeolit a nyomószilárdság vizsgálat szempontjából gyenge felületet biztosít (*15. ábra, jobb oldali kép, 1000×*).



16. ábra: A zeolitot tartalmazó alapkeverék (137Cs balra; trícium jobbra) kioldódási tulajdonságának (CFL) ábrázolása az ILT15 program segítségével

A diffúziós együttható számolás, zeolit tartalmú keverék

A zeolit tartalmú keverékek esetén is elvégeztük a már említett szabványos kioldási vizsgálatot (16. ábra), azonban a zeolit ionmegkötő-képessége miatt, a vizsgálati időszak végén (264 h) a ¹³⁷Cs már nem volt detektálható a kioldóvízben. Az IFL és CFL értékek a jelenleg alkalmazott keverék körülbelül felét teszik ki, ami növeli az alkáli aktivált receptúra alkalmazhatóságát a bepárlási maradékok szilárdítására.

A zeolittal készült keverékek effektív diffúziós együttható értékei számítási módszertől függően legalább háromszor kisebbek, mint a jelenleg alkalmazott portlandcement tartalmú keverékeké. Az ILT15 programmal modellezett eredmények alapján a különbség akár 13-szoros is lehet (8. táblázat).

8. táblázat: A PP szálakat tartalmazó alapkeverék effektív diffúziós együttható értékei

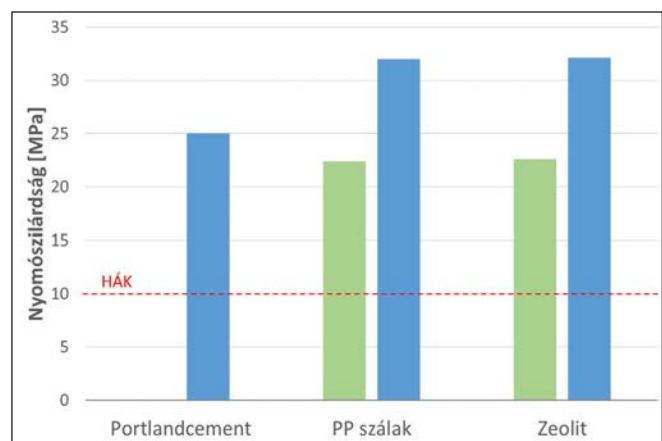
Izotóp	D_e [cm ² /s] – ILT15	D_e [cm ² /s] – Fick II
¹³⁷ Cs	$9,4 \cdot 10^{-11}$	$3,0 \cdot 10^{-10}$
³ H	$1,3 \cdot 10^{-9}$	$1,3 \cdot 10^{-9}$

6. MEGÁLLAPÍTÁSOK

Összefoglalva megállapíthatjuk, hogy a váci CEM II/A-LL 42,5 N típusú mészkő-portlandcement az általunk kifejlesztett alkáli aktivált receptúra segítségével alkalmassá tehető a jelenleg szilárdítás alatt álló bepárlási maradék fenntartható szilárdítására a meglévő technológiai rendszerben. Továbbá jelentős költségmegtakarítás érhető el a metakaolin tartalom 10%-os csökkentésével, valamint a termék tartóssága és mechanikai ellenállóképessége nagy mértékben növelhető. A cementpép elkészítése ugyanakkor nagy körültekintést és technológiai fegyelmet igényel, különös tekintettel a technológiai NaOH adagolására. Ezen kívül a PP szálak és a zeolit adagolását jelenleg csak manuálisan lehet megoldani, amelyek egyenletes eloszlását biztosítani kell.

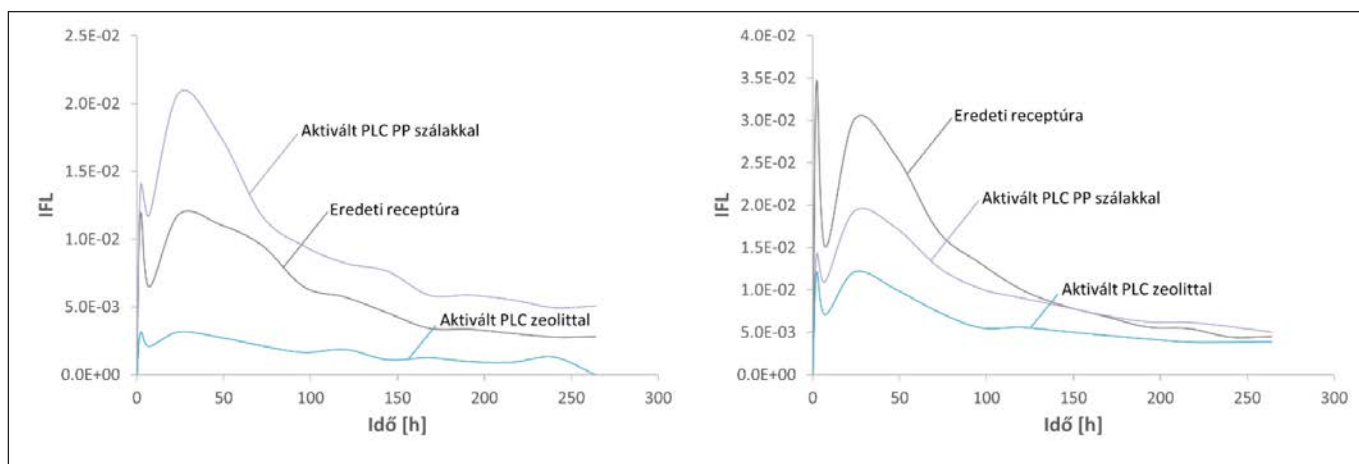
A vizsgálataink során elvégzett mintegy 150 db próbakeverés alapján az alábbi megállapításokra jutottunk:

1. A DDC váci gyárában készült CEM II/A-LL 42,5 N cement önmagában nem alkalmas nagy borát tartalmú oldatok, ill. radioaktív hulladékok szilárdítására.
2. A portlandcementet tartalmazó keverékektől eltérően a mészkő-portlandcementek még metakaolin alkalmazása mellett sem alkalmasak extrém nagy borát tartalmú LRW-k szilárdítására.
3. A kötőképes keverékhez alkáli aktiválásra van szükség, amelyhez min. 8% további NaOH-ra van szükség. A túl kicsi lúgkoncentráció kivérzést, a 10% feletti lúgtartalom viszont túl gyors kötést eredményez.

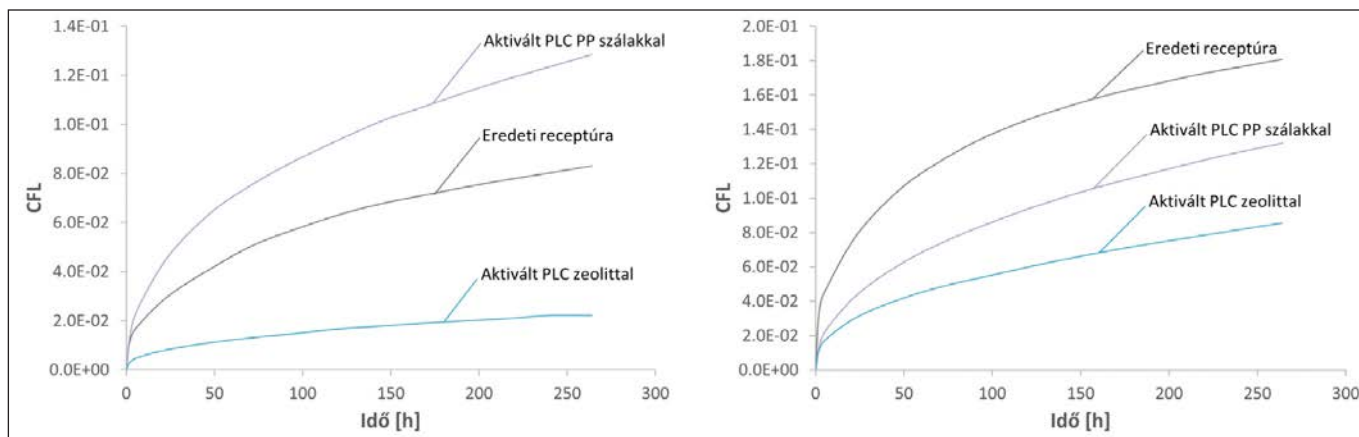


17. ábra: A keverék 7 napos (zöld) és 28 napos (kék) nyomószilárdsága

4. Bár a vízfelvétel, így az LRW tartalom növelhető metakaolin hozzáadásával, 15% MK felett a folyósság csökkenésével és némi kivérzéssel kell számolni.
5. A keverék megfelelő konzisztenciájának előállítására a Sika Control 60 adalékszer volt a legkedvezőbb, annak ellenére, hogy valószínűleg kémiai bomlást szenvedett, amelynek 0,5% feletti adagolása érdemben már nem változtatja meg a cementpép állagát.
6. A zsugorodási repedéseket csökkenteni tudtuk megfelelő metakaolin, esetünkben Newchem Metaver O, valamint PP mikroszálak vagy zeolit (0,8-2 mm, klinoptilolit jellegű) adagolásával.
7. A PP szálak a nyomószilárdság vizsgálatok vagy más fizikai behatásra bekövetkező kiporzást csökkentik, mivel adagolásukkal kompaktabb szerkezet jön létre, így csökkentve a dekontamináció és vizsgáló személyzet belső sugárterhelésének veszélyét.
8. Míg a jelenleg alkalmazott beremendi CEM I 42,5 N típusú cementet tartalmazó keverék 7 napos nyomószilárdsága nem mérhető a borátok kötéstgátló hatása miatt, az alkáli aktivált keverékek esetében ez az érték meghaladta a 20 MPa-t. Ennek következtében a kompakt hulladékcsomagok hamarabb kiszállíthatók végleges elhelyezésre, így további tároló kapacitás szabadul fel az üzemben. Továbbá az alkáli aktivált keverékek nyomószilárdsága 40%-kal nagyobb 28 napos korban, amely növelheti a termék tartósságát is (17. ábra).
9. A kioldódási folyamat során az egyes keverékek IFL értékeinek lefutása hasonló mintát követ: első lépésben az izotópok lemosódnak a próbatest felületéről, majd a víz bediffundál a cementkő mélyebb pórusaiba, amely az



18. ábra: Az egyes keverékek IFL értékének változása a kioldódás során



19. ábra: Az egyes keverékek CFL értékének változása a kioldódás során

IFL növekedéséhez vezet. Végül a kioldódási folyamat előrehaladtával ezek az értékek folyamatosan csökkennek, ahogy fogy a próbatestek izotóptartalma (18. ábra). A kezdeti gyors kioldódást a CFL értékek egyenletes növekedése követi. Annak ellenére, hogy a PP mikroszálakat tartalmazó alkáli aktivált keverékek ^{137}Cs -ra vonatkozó kumulatív kioldási aránya 55%-kal nagyobb, a ^3H CFL értékei jelentősen kisebbek, mint a jelenleg alkalmazott portlandcementet tartalmazó receptúra. A legjobb eredményt zeolit adagolással tudtuk elérni annak ionmegkötő-képessége miatt. Látható, hogy ez a keverék olyan hatékonyan köti meg a ^{137}Cs izotópokat, hogy a CFL értékei majdnem négyszer kisebbek, mint a jelenleg alkalmazott receptúra esetében (19. ábra).

7. KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

Ezúton szeretnénk kifejezni köszönetünket Sas Lászlónak, a DDC Kft. kutatás-fejlesztési vezetőjének, a rendelkezésünkre bocsátott cementmintákért és értékes szakmai tanácsaiért. Köszönettel tartozunk továbbá Tóth Ferencnek, a Sika Magyarország Kft. műszaki értékesítőjének, valamint Sütő-Kreiszl Valentinának, a Mapei Kft. csoportvezetőjének, a betonadalékszer minták biztosításáért és szakmai támogatásukért. Végül, de nem utolsósorban köszönet illeti Ujtné Szöböllődi Erzsébetet és a Paksi Atomerőmű RÜM Laboratóriumának munkatársait a kioldódási minták mérése során nyújtott segítségükért.

8. HIVATKOZÁSOK

- Abdel Rahman, R. O.; Rakhimov, R. Z., Rakhimova, N.R.; Ojovan, M. I. (2014), "Alternative Binders", In *Cementitious Materials for Nuclear Waste Immobilization*, <https://doi.org/10.1002/9781118511992.ch4>
- Atkinson, A.; Goult, D. J.; Hearne, J. A. (1985), "An Assessment of the Long-Term Durability of Concrete in Radioactive Waste Repositories", *MRS Online Proceedings Library*, 50, pp. 239-246, <https://doi.org/10.1557/PROC-50-239>
- Baranyi, A.; Kopeckó, K. (2022), "Radioactive Waste Embedding in Cement Matrix and the Establishment of Cemented Waste Testing Laboratory at Paks Nuclear Power Plant", *Journal of Physics: Conference Series*, 2315(1), pp. 012030, IOP Publishing, <https://doi.org/10.1088/1742-6596/2315/1/012030>
- Cembureau (2024), "Activity report 2023", European Cement Association, Brussels, Online: <https://cembureau.eu/media/dnbf4xyz/activity-report-2023-for-web.pdf>
- Champerois, K.-B.; Dhoury, M.; Coumes, C. C. D.; Mercier, C.; Revel, B.; Le Bescop, P.; Damidot, D. (2015), "Influence of sodium borate on the early age hydration of calcium sulfoaluminate cement", *Cement and Concrete Research*, 70, pp. 83-93, <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2014.12.010>
- Coumes, C. C. D. (2012), "Alternative Binders to Ordinary Portland Cement for Radwaste Solidification and Stabilization", In *Cement Based Materials for Nuclear Waste Storage*, Bart, F.; Coumes, C. C. D.; Frizon, F.; Lorente, S., (Eds.), Springer: Berlin/Heidelberg, Germany pp. 171-191, https://doi.org/10.1007/978-1-4614-3445-0_16
- Covill, A.; Hyatt, N. C.; Hill, J.; Collier, N. C. (2011), "Development of magnesium phosphate cements for encapsulation of radioactive waste", *Advances in Applied Ceramics*, 110(3), pp. 151-156, <https://doi.org/10.1179/1743676110Y.0000000008>
- Craeye, B.; De Schutter, G.; Desmet, B.; Vantomme, J.; Heirman, G. (2010), "Effect of mineral filler type on autogenous shrinkage of self-compacting concrete", *Cement and Concrete Research*, 40(6), pp. 908-913, <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2010.01.014>
- Czoboly O.; Menyhart K.; Csókás E. (2023), „Mész-kő-portlandcemen-

- tek alkalmazási tapasztalatai”, *Vasbetonépítés*, 25(1), pp. 17-19, <https://doi.org/10.32969/VB.2023.1.3>
- Csetényi, L. J.; Glasser, F.P. (1995), “Borate retardation of cement set and phase relations in the system Na₂O-CaO-B₂O₃-H₂O”, *Advances in Cement Research*, 7(25), pp. 13-19, <https://doi.org/10.1680/adcr.1995.7.25.13>
- Davidovits, J. (2008), “Geopolymer Chemistry & Applications” Institute Géopolymère
- Davraz, M. (2010), „The Effects of Boron Compounds on the Properties of Cementitious Composites”, *Science and Engineering of Composite Materials*, 17(1), pp. 1-18, <https://doi.org/10.1515/SECM.2010.17.1.1>
- De Weerd, K.; Haha, M. B.; Le Saout, G.; Kjellsen, K. O.; Justnes, H.; Lothenbach, B. (2011), “Hydration mechanisms of ternary Portland cements containing limestone powder and fly ash”, *Cement and Concrete Research*, 41(3), pp. 279-291, <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2010.11.014>
- Duque-Redondo, E.; Yamada, K.; Manzano, H. (2021), “Cs retention and diffusion in C-S-H at different Ca/Si ratio”, *Cement and Concrete Research*, 140, pp. 106294, <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2020.106294>
- El-Dakoury, A.; Gasser, M. S. “Rice husk ash (RHA) as cement admixture for immobilization of liquid radioactive waste at different temperatures”, *Journal of Nuclear Materials*, 384(3), pp. 271-277, <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2008.08.026>
- Európai Bizottság (2021), „Írány az 55%!” Intézkedéscsomag, Online: <https://www.consilium.europa.eu/hu/policies/fit-for-55/what>
- Európai Bizottság (2019), „A bizottság közleménye az Európai Parlamentnek, az Európai Tanácsnak, a Tanácsnak, az Európai Gazdasági és Szociális és a Régiók Bizottságának - Az európai zöldmegállapodás”, Document 52019DC0640, Online: <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/HU/TXT/?uri=COM%3A2019%3A640%3AFIN>
- Gábel, V. (2024), „CEM II/B-LL: a mészkőtartalmú, klímabarát cementek értékei”, *Betonűjság*, 32(2), Online: <https://www.betonujsg.hu/lapszamok/cikk/2737/cem-ii-b-ll-a-meszkotartalmu-klimabar-at-cementek-ertekei-1-resz>
- Geddes, D. A.; Ke, X.; Bernal, S. A.; Hayes, M.; Provis, J. L. (2018), “Metakaolin-Based Geopolymers for Nuclear Waste Encapsulation”, In: Martirena, F.; Favier, A.; Scrivener, K. (eds), “Calcined Clays for Sustainable Concrete”, *RILEM Bookseries*, 16, pp. 183-188, Springer, Dordrecht, https://doi.org/10.1007/978-94-024-1207-9_29
- Gillispie, E.; Mergelsberg, S.; Varga, T.; Webb, S.; Avalos, N.; Snyder, M.; Bourchy, A.; Asmussen, R. M.; Saslow, S. A. (2020), “Competitive TeO₄, IO₃⁻, and CrO₄²⁻ incorporation into Ettringite”, *Environmental Science & Technology*, 55(2), pp. 1057-1066, <https://doi.org/10.1021/acs.est.0c06707>
- Glukhovskiy, V.; Rostovskaja, G.; Rumyna, G. (1980), High strength slag-alkaline cements, proceedings of the 7th International Congress on the Chemistry of Cement, Paris
- Helliwell, J. R. (2014), “Radioactive waste limits in cement to avoid leaching out”, *Journal of Applied Crystallography*, 47(1), pp. 4-5, <https://doi.org/10.1107/s1600576714000223>
- Iklaga, G.; Rostamiparsa, M.; Tolnai, I.; Kaposy, N.; Gméling, K.; Csipa, E.; Tóbi, Cs.; Gábel, V.; Kónya, P.; Szabó, Cs.; Fábrián, M.; Szabó-Krausz, Zs.; Völgyesi, P. (2025), „Optimized cement blend for the immobilization of simulated borate radioactive liquid waste”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 334(2), pp. 1553-1567, <https://doi.org/10.1007/s10967-024-09957-x>
- Ji, Z.; Pei, J. (2019), “Bibliographic and visualized analysis of geopolymer research and its application in heavy metal immobilization: A review”, *Journal of Environmental Management*, 231, pp. 256-267, <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2018.10.041>
- Jiménez-Reyes, M.; Almazán-Sánchez, P. T.; Solache-Ríos, M. (2021), “Radioactive waste treatments by using zeolites. A short review”, *Journal of Environmental Radioactivity*, 233, pp. 106610, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2021.106610>
- Kopecskó K. (2006), „A gőzölés hatása a cement klinkerek és cementek kloridion megkötő képességére”, *PhD értekezés*
- Kopecskó, K.; Hajdu, M.; Fejes, A.; Russói A.; Khalaf, A. A. (2021), „Geopolimer kutatások a BME-n”, *XXV. Nemzetközi Építéstudományi Konferencia, ÉPKO 2021*, Erdélyi Magyar Műszaki Tudományos Társaság Építéstudományi Szakosztálya, Online: <https://ojs.emt.ro/EPKO/article/view/554>
- Kotátková, J.; Zatloukal, J.; Reiterman, P.; Kolář, K. (2017), «Concrete and cement composites used for radioactive waste deposition», *Journal of Environmental Radioactivity*, 178-179, pp. 147-155, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.08.012>
- Lan, W.; Glasser, F. P. (1996), “Hydration of calcium sulphoaluminate cements”, *Advances in Cement Research*, 8(31), pp. 127-134, <https://doi.org/10.1680/adcr.1996.8.31.127>
- Li, J.; Chen, L.; Wang, J. (2021), “Solidification of radioactive wastes by cement-based materials”, *Progress in Nuclear Energy*, 141, pp. 103957, <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2021.103957>
- Li, X.; Cao, M. (2024) “Recent Developments on the Effects of Micro- and Nano-Limestone on the Hydration Process, Products, and Kinetics of Cement” *Materials*, 17(9), 2133, <https://doi.org/10.3390/ma17092133>
- Lothenbach, B.; Gallucci, E.; Scrivener, K. (2008), “Influence of limestone on the hydration of Portland cements”, *Cement and Concrete Research*, 38(6), pp. 848-860, <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2008.01.002>
- Mlinárik, L.; Kopecskó, K. (2013), “Impact of metakaolin - a new supplementary material - on the hydration mechanism of cements”, *Acta Technica Napocensis: Civil Engineering & Architecture*, 56(2), pp. 100-110, Online: [https://oldconstructii.utcluj.ro/ActaCivilEng/download/atn/ATN2013\(2\)_9.pdf](https://oldconstructii.utcluj.ro/ActaCivilEng/download/atn/ATN2013(2)_9.pdf)
- MSZ 4798 Beton. Műszaki követelmények, tulajdonságok, készítés és megfelelés, valamint az EN 206 alkalmazási feltételei Magyarországon
- MSZ EN 450-1:2013 Pernye betonhoz. 1. rész: Fogalommeghatározások, követelmények és megfelelési feltételek
- MSZ EN 12620:2002+A1:2008 Kőanyaghalmozatok (adalékanyagok) betonhoz
- MSZ EN 13639:2017 A mészkő összes szervesszén-tartalmának meghatározása
- MSZ EN 12878:2014 Pigmentek cement- és/vagy mészalapú építőanyagok színezésére. Műszaki követelmények és vizsgálati módszerek
- Nehme, S. G. (2004), „A beton porozitása”, *PhD értekezés*
- Nemzetközi Energiaügynökség (IEA), Online: <https://www.iea.org/energy-system/industry/cement>
- Nwankwo, C. O.; Bamigboye, G. O.; Davies, I. E. E.; Michaels, T. A. (2020), “High volume Portland cement replacement: A review”, *Construction and Building Materials*, 260, pp. 120445, <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2020.120445>
- Ochs, M.; Mallants, D.; Wang L. (2015), “Radionuclide and Metal Sorption on Cement and Concrete”, 29, Springer, ISBN: 978-3-319-23650-6, <https://doi.org/10.1007/978-3-319-23651-3>
- Ojovan, M. I.; William Lee, E.; Kalmykov, S. N. (2019), “An Introduction to Nuclear Waste Immobilisation”, Third Edition, Elsevier, ISBN 978-0-08-102702-8, <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-102702-8.00029-7>
- Pescatore, C. (1990), “Improved expressions for modelling diffusive, fractional cumulative leaching from finite-size waste forms”, *Waste Management*, 10(2), pp. 155-159, [https://doi.org/10.1016/0956-053X\(90\)90120-A](https://doi.org/10.1016/0956-053X(90)90120-A)
- Révai, M.; Laczkó, L. (2006), „A taumazit-szulfátkorrózió (Monográfia és a szakirodalom kritikai elemzése)”, *Építőanyag*, 58(2), pp. 47-53, <http://dx.doi.org/10.14382/epitoanyag-jsbcm.2006.10>
- Sas, Z.; Sha, W.; Soutsos, M.; Doherty, R.; Bondar, D.; Gijbels, K.; Schroyers, W. (2019), “Radiological characterisation of alkali-activated construction materials containing red mud, fly ash and ground granulated blast-furnace slag”, *Science of The Total Environment*, 659, pp. 1496-1504, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.01.006>
- Scrivener, K. L.; Martirena, F.; Bishnoic, S.; Maityd, S. (2018), “Calcined clay limestone cements (LC³)”, *Cement and Concrete Research*, 114, pp. 49-56, <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2017.08.017>
- Snellings, R.; Suraneni, P.; Skibsted, J. (2023), “Future and emerging supplementary cementitious materials”, *Cement and Concrete Research*, 171, pp. 107199, <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2023.107199>
- Spence, R. D.; Shi, C. (2005), “Stabilization and Solidification of Hazardous, Radioactive, and Mixed Wastes”, CRC Press, New York, NY, USA, 2005
- Sun, Q.; Li, J.; Wang, J. (2011), “Effect of borate concentration on solidification of radioactive wastes by different cements”, *Nuclear Engineering and Design* 241, pp. 4341-4345, <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2011.08.040>
- Süssmilch, J.; Grič, L.; Fábrián, P.; Tóth-Bodrogi, E.; Nehme, S.;

- Baranyi, A.; Kopecskó, K. (2022), "Solidification of radioactive evaporator residues with high borate content", *Concrete Structures*, 23, pp. 23-30, <https://doi.org/10.32970/CS.2022.1.4>
- Taylor, H. F. W. (1997), "Cement chemistry", *Thomas Telford Publishing*, ISBN: 0727725920, <https://doi.org/10.1680/cc.25929>
- Vance, E. R.; Perera, D. S. (2011), "Development of geopolymers for nuclear waste immobilisation", In: "Handbook of Advanced Radioactive Waste Conditioning Technologies", Ojovan M. I. (Ed.), *Woodhead Publishing Limited*, <https://doi.org/10.1533/9780857090959.2.207>
- Wang, D.; Shi, C.; Farzadnia, N.; Shi, Z.; Jia, H.; Ou, Z. (2018), "A review on use of limestone powder in cement-based materials: Mechanism, hydration and microstructures", *Construction and Building Materials*, 181, pp. 659-672, <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.06.075>
- Wang, J.; Shi, D.; Xia, Y.; Liu, M.; Ma, X.; Yu, K.; Zao, Y.; Zang, J. (2024), "Stabilization/solidification of radioactive borate waste via low-carbon limestone calcined clay cement (LC3)", *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 12(3), pp. 113129, <https://doi.org/10.1016/j.jece.2024.113129>
- Wieland, E.; Van Loon, L. R. (2002), "Cementitious near-field sorption data base for performance assessment of an ILW repository in Opalinus Clay", *Technical Report 02-20*, pp. 99, Online: http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:50044669
- Zatloukalová, J.; Zatloukal, J.; Hraníček, J.; Kolář, K.; Konvalinka, P. (2021), "Study on the properties of cement composites for immobilization of evaporator concentrates", *Progress in Nuclear Energy*, 140, pp. 103919, <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2021.103919>
- Zatloukalová, J.; Zatloukal, J.; Kolář, K.; Konvalinka, P. (2024), "Thaumasite formation in cementitious composites used in underground repositories – Conditions and impact on composite's properties: A review", *Progress in Nuclear Energy*, 176, pp. 105356, <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2024.105356>
- Zheng, S.; Liu, T.; Jiang, G.; Fang, C.; Qu, B.; Gao, P.; Li, L.; Feng, Y. (2021) "Effects of Water-to-Cement Ratio on Pore Structure Evolution and Strength Development of Cement Slurry Based on HYMOSTRUC3D and Micro-CT" *Applied Sciences*, 11(7), pp. 3063 <https://doi.org/10.3390/app11073063>

Baranyi Attila, okl. vegyész (2003), okl. kémia szakos tanár (2005), betontechnológus szakmérnök (2021). Korábban radioanalitikával, majd folyékony radioaktív hulladékkezelési technológiák fejlesztésével foglalkozott. Kidolgozta a Paksi Atomerőműben működő Cementezett Hulladékvizsgáló Laboratórium mérési módszereit és dokumentációs rendszerét. Jelenleg a folyékony radioaktív hulladékok szilárdításával kapcsolatos kutatásokkal foglalkozik különös tekintettel az alkáli aktivált anyagokra. A Magyar Nukleáris Társaság és Szilikát Ipari Tudományos Egyesület tagja.

Dr. Kopecskó Katalin, okl. vegyészmérnök (BME, Vegyészmérnöki Kar, 1990), okl. betontechnológus szakmérnök (2004), PhD (2006), egyetemi docens a BME Geotechnika és Mérnökgeológia Tanszékén. Fő érdeklődési területei: építőanyagok és beton tartóssága, anyagvizsgálat és fázisátalakulások. A *fib* TG7.8, a RILEM TC 302-CNC, a *fib* Magyar Tagozatának, valamint az MSZT/MB 102 „Cement és mész” Nemzeti szabványosító műszaki bizottság tagja.

DEVELOPMENT OF MIX DESIGN FOR A SUSTAINABLE SOLIDIFICATION OF LIQUID RADIOACTIVE WASTE WITH EXTREMELY HIGH BORATE CONCENTRATION, USING ALKALI-ACTIVATED PORTLAND-LIMESTONE CEMENT

Attila Baranyi – Katalin Kopecskó

The Radioactive Waste Cementation Plant (RWCP) has been installed at Paks Nuclear Power Plant. This produces cement pastes using various types of liquid radioactive waste with a specific type of binders. During the process, radioactive cement paste is poured into steel containers containing solid radioactive waste. The so-called Compact Waste Package (CWP) can finally be deposited in the National Radioactive Waste Repository (NRWR) in Bataapáti (Hungary).

The preliminary experiences showed that the properties of the cement pastes made using liquid radioactive wastes are significantly dependent on the quality of the applied cement even for the same type of cement. Therefore, it is essential to have continuous availability of the prescribed cement for the sustainable and reliable operation of the plant.

Nowadays, supply security is affected by the decline of Portland cement. Under the European Green Deal, the European Union commits to making Europe climate neutral by 2050 with the European Climate Law.

With the change in the price of carbon dioxide quotas and the tightening of emission limits, the decline of Portland cements and the rise of Portland-limestone cements and other composite cements can be observed throughout Europe which, although an environmentally friendly solution, causes serious technological difficulties from the point of view of RWCP. The supplementary cementitious materials used in Portland-composite cements (slag, fly ash, limestone flour) all modify e.g. the bleeding property and setting time, as well as shrinkage and thus crack formation in different ways.

As a result of our investigations, we were able to solidify liquid radioactive waste using alkali-activated Portland-limestone cement mixed with metakaolin, in which the tendency to cracking was reduced with the inclusion of polypropylene microfibers and zeolite. With these recipes, we achieved mix designs that are predictably sustainable in the long term, meeting all technological and waste acceptance criteria.