

Efektywność modyfikacji materiałowej w celu poprawy właściwości osłonowych betonu przed promieniowaniem jonizującym

EFFECTIVENESS OF MATERIAL MODIFICATION FOR IMPROVEMENT OF CONCRETE SHIELDING PROPERTIES AGAINST IONIZATION RADIATION

Streszczenie

W artykule przedstawione zostały wyniki pierwszego etapu realizacji projektu NGS-Concrete, którego celem w zakresie optymalizacji materiałowej jest modyfikacja kompozytów na poziomie atomowym, tj. wypełniaczami zawierającymi atomy o właściwościach rozpraszających i absorbujących promieniowanie neutronowe, które spowodują uzyskanie korzystnych właściwości osłonowych bez pogorszenia innych właściwości użytkowych betonu. Pierwszy etap badań obejmował pomiary właściwości osłonowych betonów przed promieniowaniem gamma i neutronowym we wzorcowych polach promieniowania. Równocześnie przeprowadzono symulacje komputerowe metodą Monte Carlo przy użyciu kodu MCNPx. W efekcie uzyskano wyniki symulacyjne i eksperymentalne pozwalające na wiarygodną ocenę efektywności różnych sposobów modyfikacji materiałowych, m.in. dodatków polimerowych, włókien polimerowych, czy niekonwencjonalnych dodatków chemicznych, na właściwości osłony betonu. Jednocześnie potwierdzono możliwość zastosowania algorytmów symulacji komputerowych metody Monte Carlo do opisu transportu neutronów i promieniowania gamma przez beton.

Abstract

The paper presents the results of the first phase of the project NGS-Concrete, which aims in material optimization is a modification of the composites at the atomic level; it means by addition of modifiers containing atoms of good scattering and absorbing properties against neutron radiation. As a result the concrete obtain the beneficial properties of shielding

without compromising the usability performance of concrete. The first stage of the study included measurements of the shielding properties of concrete against gamma and neutron radiation in the reference radiation fields. At the same time computer simulations of the Monte Carlo method using code MCNPx has been carried out. The results of computer simulation and experimental measurements allow for a reliable assessment of the effectiveness of different ways of materials modification, including polymer additives, polymer fibers, or unconventional chemical additives on the shielding properties of concrete. It has been also confirmed the possibility of using Monte Carlo method algorithms for computer simulation to describe the transport of neutrons and gamma rays through the concrete.

1. Modyfikacja materiałowa betonu

Beton jest kompozytem, czyli materiałem o niejednorodnej strukturze złożonym z dwóch lub więcej komponentów (faz) o różnych właściwościach, które da się wyróżnić makroskopowo. Podstawowymi fazami w betonie są kruszywo, stwardniały zaczyn cementowy oraz pory, które mogą być częściowo lub całkowicie wypełnione wodą. Z racji tego iż właściwości kompozytów rzadko są sumą czy średnią właściwości jego składników są one szczególnie podatne na modyfikację. Modyfikatory mogą stanowić dodatkowe odrębne fazy np. makrowłókna, albo powodować istotne zmiany właściwości materiału bez możliwości ich wyodrębnienia w strukturze np. domieszki.

Lukowski jako podstawowe rodzaje modyfikatorów wymienia domieszki, dodatki polimerowe, dodatki mineralne i środki impregnacyjne [1], ale wymienia także możliwość modyfikacji włóknami.

Beton osłonowy przed promieniowaniem jonizującym stanowi idealny przykład wykorzystania modyfikacji materiałowej dla uzyskania betonu o zdefiniowanej użyteczności – *defined performance concrete*, *DFP*. Modyfikacja taka pozwala bowiem na ulepszenie jego właściwości osłonowych bez uszczerbku dla jego podstawowych cech technicznych takich jak np. wytrzymałość na ściskanie.

2. Właściwości betonu jako osłony przed promieniowaniem jonizującym

Beton jest podstawowym materiałem stosowanym do budowy osłon przed promieniowaniem jonizującym, ze względu na stosunkowo niski koszt oraz jednocześnie możliwość spełniania funkcji konstrukcyjnych. Ponieważ jednak osłony betonowe mają zwykle znaczne grubości, to względy konstrukcyjne nie wymagają wysokich wytrzymałości. Z drugiej jednak strony instalacje, w których wykorzystuje się promieniowanie jonizujące wymagają podwyższonego poziomu bezpieczeństwa i trwałości. Z tego względu na przykład wymagania dla betonu zawarte w wytycznych AFCEN [2] dot. budowy elektrowni jądrowych znacznie wykraczają ponad standardowe wymagania dla betonu opisane w PN-EN 206 [3], które przewidują jedynie 50 lat trwałości [4]. W Polsce prace badawcze dotyczące zastosowania betonu jako osłon w obiektach związanych z wytwarzaniem energii jądrowej były rozpoczęte w Polsce przed 1970 rokiem, a później rozwijane w związku z zamierzoną budową reaktora w Żarnowcu [5–7]. Tymczasem po awarii w Czarnobylu w 1986 roku i podjęciu decyzji o postawieniu „Elektrowni Jądrowej Żarnowiec w Budowie” w stan likwidacji w 1990 roku, co było równoznaczne z zaprzestaniem budowy, badania dotyczące osłon betonowych przed promieniowaniem jonizującym były prowadzone w Polsce dużo mniej intensywnie.

Ale elektrownia jądrowa to nie jedyny obszar zastosowania osłon przed promieniowaniem jonizującym. Należy pamiętać o instalacjach wykorzystujących promieniowanie jonizujące takich jak reaktory badawcze (reaktor „Maria” w Świerku) czy instalacje medyczne służące do:

- diagnostyki: rentgenodiagnostyka, tomografia komputerowa czy medycyna nuklearna, czyli rejestracja promieniowania emitowanego przez zgromadzony w tkance radiofarmaceutyk, celowo podany pacjentowi

- radiologii zabiegowej: małoinwazyjna metoda przeprowadzania zabiegów wspomaganych obrazowaniem techniką rentgenowską
- teleradioterapii: niszczenie tkanki nowotworowej za pomocą promieniowania jonizującego.

Istotnym polem aplikacji betonów osłonowych jest także jego zastosowanie w magazynach materiałów rozszczepialnych oraz przy zestalaniu odpadów promieniotwórczych.

3. Ocena właściwości osłonowych betonu przed promieniowaniem jonizującym

Podstawowy podział promieniowania obejmuje promieniowanie elektromagnetyczne, czyli rozchodzące się w przestrzeni zaburzenie pola elektromagnetycznego oraz promieniowanie korpuskularne, które jest strumieniem cząstek o masie spoczynkowej różnej od zera (alfa, beta, protonów, neutronów itp.). Do Ziemi dociera także promieniowanie kosmiczne złożone zarówno z części korpuskularnej jak i elektromagnetycznej, ale nie jest to tematem niniejszego artykułu.

Promieniowanie elektromagnetyczne dzielimy z kolei na promieniowanie jonizujące i niejonizujące. Granica pomiędzy promieniowaniem jonizującym a niejonizującym przyjęta została na granicy widma światła widzialnego i ultrafioletu (zakres UV-A, długość fali 320–380 nanometrów, czyli częstotliwość 8×10^{14} Hz). Promieniowanie niejonizujące jest dużo mniej szkodliwe dla ludzi i organizmów żywych od promieniowania jonizującego, które wywołuje jonizację ośrodka materialnego, tj. oderwanie przynajmniej jednego elektronu od atomu lub cząsteczki albo wybicie go ze struktury krystalicznej. Charakter jonizacji, czyli oddziaływania promieniowania jonizującego z ośrodkiem w znacznym stopniu zależy od rodzaju promieniowania i jego energii, a także od jądro-fizycznych właściwości atomów, z których się składa ten ośrodek.

Do jonizującego promieniowania elektromagnetycznego zaliczamy promieniowanie rentgenowskie i gamma. Ze względu na częściowe pokrywanie się zakresów częstotliwości promieniowania rentgenowskiego i promieniowania gamma, obecnie jako kryterium klasyfikujące przyjmuje się źródło promieniowania: promieniowanie rentgenowskie powstaje podczas hamowania wolnych elektronów, a promieniowanie gamma w wyniku rozpadu promieniotwórczego jąder pierwiastków.

Promieniowanie gamma ma właściwości falowe i korpuskularne, ale w technice i energetyce jądrowej większości procesów towarzyszy emisja promieniowania gamma o dostatecznie wysokich energiach, w których przeważają już właściwości korpuskularne.

Innym rodzajem promieniowania, które jest bardzo przenikliwe i szkodliwe dla człowieka jest korpuskularne promieniowanie neutronowe. Neutrony jako cząstki bez ładunku mogą oddziaływać jedynie z jądrami atomów wchodzących w skład materii. Rodzaj tego oddziaływania w dużej mierze zależy od prędkości (energii) poruszającego się neutronu. Neutrony u dużych energiach tzw. prędkie uderzając w atomy odbijają się od nich tracąc część swojej energii w wyniku tzw. rozproszenia sprężystego. Z praw mechaniki wiadomo, że jeżeli taki neutron zderzy się z dużym jądrem to wytraci małą część swojej energii, a jeżeli jego masa będzie zbliżona do masy jądra, z którym się zderza to utrata energii będzie duża. Z tego właśnie względu najlepszymi spowalniaczami neutronów są wodór i inne pierwiastki o małej liczbie atomowej.

Drugim etapem osłabiania promieniowania neutronowego jest absorpcja neutronów powolnych tzw. termicznych, czyli takich których energia jest mniejsza niż 0,025 eV. W wyniku takiego wychwytu radiacyjnego powstaje izotop pierwiastka wyjściowego, a nadmiar energii zostaje wypromieniowany w formie kwantu gamma. Powstaje więc tzw. wtórne promieniowanie gamma.

Czasami zdarza się, że także neutrony prędkie są wychwytywane i z jądra emitowany jest proton lub cząstka α oraz kwant gamma. Możliwa jest także emisja neutronu i kwantu gamma, i wtedy taką reakcję nazywamy rozproszeniem niesprężystym, ponieważ w wyniku reakcji otrzymujemy jądro wyjściowe. Są to jednak zjawiska stosunkowo rzadkie wobec opisanego wcześniej spowalniania neutronów prędkich i absorpcji neutronów termicznych.

Prawdopodobieństwo zajścia powyżej opisanych zjawisk opisują tzw. przekroje czynne σ , które są wyrażone w jednostce powierzchni – cm^2 , lub w barnach ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$). Intuicyjnie, przekrój czynny to taka powierzchnia atomu, że trafiająca na nią cząstka doznaje z tym atomem oddziaływania – nie należy jednak utożsamiać tej powierzchni z rozmiarami jąder czy atomów poszczególnych pierwiastków. W przypadku neutronów dla każdego pierwiastka odróżnia się przekroje czynne na dany rodzaj reakcji, czyli rozproszenie σ_s , w tym rozproszenie niesprężyste σ_c i sprężyste σ_i , oraz przekrój czynny na absorpcję σ_a [8]. Analizując wartości tych przekrojów można stwierdzić, że pierwiastki najczęściej występujące w betonie nie należą do najlepszych absorberów neutronów (tabela 1 i 2).

Tabela 1. Przekroje czynne podstawowych pierwiastków w betonie w kolejności liczby atomowej Z i masy atomowej A [8]

Z	Symbol	Nazwa	A [u]	σ_c [barn]	σ_i [barn]	σ_s [barn]	σ_a [barn]
1	H	wodór	1,0	1,757	80,267	82,03	0,3327
8	O	tlen	16,0	4,233	0,001	4,23	0,0002
11	Na	sód	23,0	1,662	1,623	3,28	0,5305
12	Mg	magnez	24,3	3,631	0,087	3,71	0,0633
13	Al	aluminium	27,0	1,495	0,008	1,50	0,2313
14	Si	krzem	28,1	2,163	0,005	2,17	0,1713
15	P	fosfor	31,0	3,307	0,005	3,31	0,1727
16	S	siarka	32,1	1,109	0,007	1,03	0,5311
17	Cl	chlor	35,5	11,526	5,355	16,80	33,5333
19	K	potas	39,1	1,692	0,271	1,96	2,1111
20	Ca	wapń	40,1	2,782	0,053	2,83	0,4322
26	Fe	żelazo	55,8	11,225	0,401	11,62	2,5633

σ_a – dla neutronów o prędkości 2200 m/s ($E=25,3 \text{ MeV}$)

Tabela 2. Przekroje czynne najlepszych absorberów neutronów podstawowych pierwiastków w betonie w kolejności przekroju czynnego na absorpcję [8]

Z	Symbol	Nazwa	A [u]	σ_c [barn]	σ_i [barn]	σ_s [barn]	σ_a [barn]
64	Gd	gadolin	157.3	29,388	151,222	180.22	49 700
62	Sm	samar	150.4	0,422	39,333	39.33	5 922
63	Eu	europ	152.0	6,754	2,544	9.24	4 530
48	Cd	kadm	112.4	3,046	3,461	6.50	2 520
66	Dy	dysproz	162.5	35,988	54,412	90.39	994
5	B	bor	10.8	3,545	1,701	5.24	767
77	Ir	iryd	192.2	14,189	0,333	14.33	452
80	Hg	rtęć	200.6	20,245	6,611	26.81	372.3
79	Au	złoto	197.0	7,321	0,435	7.75	98.65
47	Ag	srebro	107.9	4,407	0,583	4.99	63.30
27	Co	kobalt	58.9	0,779	4,833	5.63	37.18
17	Cl	chlor	35.5	11,526	5,355	16.85	33.13

σ_a – dla neutronów o prędkości 2200 m/s ($E=25,3$ MeV)

Analizując powyższe zestawienia można stwierdzić, że:

- najwydajniejsze w rozpraszaniu niesprężystym są pierwiastki o dużej masie atomowej (choć nie jest to regułą), ale ponieważ udział tej reakcji w całkowitym procesie osłabiania promieniowania neutronowego jest znikomy, to wpływ dodatku pierwiastków ciężkich na osłabianie promieniowania neutronowego też będzie niewidoczny.
- do spowalniania neutronów najlepszym rozwiązaniem jest duża zawartość wodoru, który może być obecny w wodzie (zarówno kapilarnej, jak i związanej chemicznie przez cement), uwodnionym kruszywie (typu limonit, serpentynit) oraz jako składnik różnego rodzaju domieszek i dodatków
- do pochłaniania neutronów należy stosować tzw. dobre absorbery, którymi są przede wszystkim gadolin, kadm, bor, kobalt oraz chlor, ale ten ostatni jest niekorzystny z punktu widzenia korozji stali zbrojeniowej. Z kolei metale ciężkie typu Mn, Ti, Ni czy Fe podczas absorpcji neutronów powolnych emitują wysokoenergetyczne wtórne promieniowanie gamma oraz powodują znaczną aktywację betonu.

Opisując osłabienie promieniowania najczęściej posługuje się pojęciami:

- *Half-Value Layer* – HVL, czyli warstwy pochłonnej lub warstwy osłabienia połowkowe, która opisuje grubość danego materiału osłabiającą do połowy pierwotne natężenie przechodzącego promieniowania.
- *Tenth-Value Layer* – TVL, czyli analogicznie do HVL warstwa osłabienia dziesięciokrotnego, którą jest grubość danego materiału osłabiająca dziesięciokrotnie pierwotne natężenie przechodzącego promieniowania.

W artykule zaprezentowano wartości HVL i TVL obliczone na podstawie pomiarów natężenia prądu jonizacji przy użyciu interpolacji funkcją wielomianową III stopnia.

4. Właściwości osłonowe betonów modyfikowanych

Brak istotnego wpływu współczynnika woda/cement na właściwości osłonowe betonu zwykłego wobec źródła promieniowania gamma (Cs-137) oraz promieniowania neutronowego (Am-Be) wykazali Kharita i in. [9]. Inne wnioski uzyskali Sahin i in. [10], którzy przeprowadzili analizę ANOVA dla współczynnika przenikania promieniowania gamma dla betonów, które różniły się stosunkiem w/c (0,5; 0,55; 0,60), zawartością cementu (300; 350; 400 kg/m³), ilością domieszki napowietrzającej (0; 0,05; 0,1%) oraz warunkami pielęgnacji (w wodzie, na powietrzu i pod folią). Na tej podstawie stwierdzili oni, iż najbardziej efektywnym parametrem zwiększającym właściwości osłonowe przed promieniowaniem jest w/c oraz w drugiej kolejności zawartość cementu. Należy jednak podejść do tych wyników krytycznie, gdyż obok dyskretnych parametrów technologicznych należałoby się przyjrzeć dokładniej ilościowym właściwościom użytkowym takim jak np. wytrzymałość na ściskanie, szczelność czy gęstość.

El. Khayat [11] przedstawił obliczenia wpływu zmierzonego metodą PGNAA stosunku wapno/krzemionka na właściwości osłonowe, który okazał się nie mieć wpływu na masowy współczynnik osłabiania z racji zbliżonych wartości przekrojów czynnych CaCO₃ i SiO₂ (patrz tabela 1). Zaobserwowano natomiast większy wpływ zawartości wodoru i gęstości betonu na obliczane parametry osłonowe.

Istotnym parametrem z punktu widzenia właściwości osłonowych przed promieniowaniem neutronowym (szczególnie w aspekcie spowalniania neutronów prędkich) jest zawartość wody w betonie, zarówno w postaci wody wolnej tzw. wilgotność, jak i wody związanej chemicznie przez cement. Piotrowski i in. wykazali, że wzrost wilgotności o 1% powoduje wzrost efektywności spowalniania neutronów prędkich o 15%, dla zapraw zwykłych i PCC [12,13], o 10% dla betonów zwykłych i ciężkich (magnetytowych) oraz PCC [14], ale tylko 5%, gdy w składzie zaprawy występował tlenek gadolinu [15].

Prochoń i Piotrowski [16] w 2016 roku wykazali, że różna zawartości wody związanej (która zależy także od stopnia hydratacji) w cementach różnych rodzajów i klas przekłada się na błędną wartość liniowego współczynnika tłumienia symulowanego wcześniej przy stałej – 20% zawartości wody związanej [17]. Potwierdza to uzyskane wcześniej wyniki wzrostu efektu spowalniania neutronów prędkich dla CEM III i CEM IV w stosunku do CEM I [12]. Należy jednak pamiętać, że z czasem zawartość wody związanej w betonie, który jest poddany działaniu promieniowania gamma i promieniowania neutronowego, maleje.

Brandt [18] i Brandt, Józwiak-Niedźwiedzka [19] opisując ten efekt zaznaczają, że determinuje on coraz mniejszą skuteczność osłabiania promieniowania w czasie.

4.1. Beton z dodatkiem kruszyw specjalnych

W 2004 roku Akkurt i in. [20] przedstawili wyniki obliczeń i pomiarów liniowych i masowych współczynników osłabiania promieniowania gamma o energii 1 keV – 300 MeV dla barytu, marmuru i skały wapiennej pozyskanej w Turcji o nazwie limra. Potwierdzili oni dodatni wpływ wzrostu gęstości kruszywa na parametry osłonowe.

W 2006 roku Akkurt i in. [21] zamienili część kruszywa zwykłego na barytowe i wykazali zarówno obliczeniowo, jak i eksperymentalnie, że istotny wpływ na wartość liniowego współczynnika osłabiania promieniowania gamma o energii 0,66 MeV i 1,3 MeV ma rodzaj kruszywa a nie jego zawartość w m³ betonu, czy stosunek w/c.

W 2013 Akkurt i El-Khayat [22] przedstawili natomiast wyniki obliczeń, z których wynika, iż wzrost zawartości barytu zwiększa liniowy współczynnik osłabiania dla promieniowania gamma, ale zmniejsza ten współczynnik dla promieniowania neutronowego. W efekcie dla promieniowania mieszanego zalecają oni wspólne zastosowanie materiałów bogatych w wodór, metale ciężkie oraz absorbery neutronów.

Zespół pod kierunkiem Akkurt'a [23] przedstawił także negatywny kruszywa zeolitoowego (w ilości 10, 30 i 50%) na liniowy współczynnik osłabiania promieniowania gamma wynikający, głównie z obniżenia gęstości betonu.

Okuno i in. [24] przedstawili nowy rodzaj betonu osłonowego przed promieniowaniem neutronowym, w którym zastosowano perydot – skałę z grupy oliwinów zawierającą dużo wodoru, oraz kolemanit – minerał z grupy boranów. Zarówno wyniki badań, jak i symulacji komputerowych MCNP wskazują na 1,7 razy lepsze właściwości osłonowe przed promieniowaniem od źródła neutronów ^{252}Cf , co doprowadziło do zastosowania go w Materials and Life Science Facility (MLF) w Japan Proton Accelerator Research Complex (J-PARC) Project.

Seshardi [25] przy strumieniu neutronów o energii 14 MeV uzyskał spadek dawki promieniowania dla betonu ciężkiego z kruszywem hematytowym o 20% w stosunku do betonu zwykłego. Jednocześnie ujawnił się wzmocniony efekt emisji wtórnego promieniowania gamma, który wynikał z reakcji rozpraszania niesprężystego oraz absorpcji. Aktywacja i wtórne promieniowanie gamma w przypadku dodatku żelaza jest zjawiskiem znanym i potwierdzonym zarówno w eksperymentach, jak i symulacjach komputerowych [26].

4.2. Betony modyfikowane dodatkami mineralnymi

Potencjał w zastosowaniu dodatków typu pył krzemionkowy, popiół lotny oraz naturalny zeolit jako modyfikatorów betonów osłonowych przed promieniowaniem gamma zaprezentowali Türkmen i in. [27], którzy wykazali większe wartości masowych współczynników osłabiania promieniowania gamma, ale tylko w zakresie energii między 1,8 i 3,6 keV, czyli krawędzi K dla absorpcji promieniowania X dla krzemu (Si) i wapnia (Ca).

Yilmaz i in. [28] analizowali masowe i liniowe współczynniki osłabiania promieniowania oraz HVL dla źródła gamma (59,5 keV i 661 keV) oraz wartości przekrojów czynnych usuwania neutronów prędkich dla 12 betonów zwykłych modyfikowanych przy użyciu dodatków typu II wg PN-EN 206, czyli pyłu krzemionkowego, popiołu lotnego oraz mielonego granulowanego żużla wielkopiecowego zastosowanych jako zamiennika cementu, bez uwzględnienia koncepcji współczynnika k, w ilości 2,5, 5 i 10%. Uzyskane przez nich wyniki wskazują na nieco większą skuteczność osłonową betonu niemodyfikowanego przy energii promieniowania gamma 59,5 keV i brak wpływu przy wyższej energii. Z uwagi na stałą stosunek wody do spoiwa i wody o kruszywa nie zaobserwowano wpływu dodatków na właściwości osłonowe przed promieniowaniem neutronowym. Wskazuje to na możliwość stosowania dodatków typu II do betonów osłonowych wspomagając szeroko rozumiany zrównoważony rozwój.

Mahandy i in. [29] badali właściwości osłonowe przed promieniowaniem gamma betonu ciężkiego na bazie kruszywa magnetytowego wysokiej wytrzymałości. Dzięki użyciu superplastyfikatora uzyskali oni wytrzymałości betonu ciężkiego od 80 do ponad 120 MPa. Badane betony modyfikowali oni także przy użyciu mikrokrzemionki. Potwierdzili oni, że osłabianie promieniowania gamma zależy głównie od gęstości betonu, ale wykazali także, iż dodatek mikrokrzemionki w ilości 10% w stosunku do masy cementu powoduje spadek wartości TVL o ok. 5% (z 17,2 cm na 16,3 cm), mimo braku różnicy w gęstości.

Kharita i in. [30] w eksperymencie analogicznym do [9] wykazali natomiast, że dodek pyłu węglowego, mimo wpływu na wytrzymałość na ściskanie (do 6% w stosunku do masy cementu wzrost, potem, aż do ilości 15% – spadek), powodował stały spadek liniowego współczynnika osłabiania oraz HVL do promieniowania gamma oraz był bez wpływu na wyniki osłabiania promieniowania neutronowego.

Galego i in. [31] z kolei modyfikowali beton magnetytowy przy użyciu bezwodnego boraksu w ilości 1,19, 5 i 25,1%, czego efektem był spadek gęstości (odpowiednio 3,94, 3,62 i 2,68 g/cm³) oraz właściwości osłonowych przy źródle ²⁴¹Am-Be (spadek TVL z 26,6, 26,5 i 29,6 cm wobec 27,01 dla betonu niemodyfikowanego).

4.3. Betony modyfikowane dodatkami polimerowymi

Możliwość poprawy właściwości osłonowych przed promieniowaniem neutronowym wykazali już w latach 70. Belyakov i in. [32,33]. Uzyskali oni korzystne właściwości fizyko-mechaniczne i techniczno-ekonomiczne dla betonów PCC zawierających wypełniacz polietylenowy w ilości do 300 kg/m³ betonu. Jednocześnie podstawowe parametry osłonowe takiego betonu wobec promieniowania o energii < 10MeV rosły eksponentalnie do zawartości wodoru. W efekcie uzyskano możliwość redukcji grubości osłony o 30–40% w stosunku do betonu zwykłego o zawartości wodoru na poziomie 6 kg/m³.

Malkapur i in. [34] uzyskali wzrost wartości przekrojów czynnych na pochłanianie neutronów oraz spadek dawki za przegrodą betonową betonów modyfikowanych lateksem. Podobnie jak u Belyakov'a, było to związane ze wzrostem udziału wodoru w składzie atomowym, który z kolei wynika ze względnej zawartości polimeru wobec cementu (p/c) oraz samej ilości cementu. Stosunek w/c nie miał wpływu na ten parametr, co potwierdziło wcześniejsze wyniki o braku wpływu w/c na właściwości osłonowe.

Betony modyfikowane żywicą epoksydową były przedmiotem analizy przedstawionej w 2015 roku przez zespół pod kierunkiem autora referatu [35]. Wykazano wtedy, że korzystny efekt dodatku polimeru uzyskany w symulacjach komputerowych [36] nie został w pełni potwierdzony w pomiarach, gdzie liczba zarejestrowanych neutronów termicznych, które były spowolnione w materiale zmniejszyła się. Co ciekawe wzrosła liczba neutronów absorbowanych, czyli część spowolnionych neutronów mogła być po prostu zatrzymana w materiale, a nie wykryta przez detektor umieszczony za przegrodą.

Z kolei wstępne wyniki uzyskane w ramach realizowanego programu badawczego opublikowane w 2015 roku [36] wskazały na większą efektywność dodatku żywicy epoksydowej do betonu magnetytowego nawet od tlenku gadolinu, którego przekrój czynny na absorpcję neutronów wynosi aż 50 tys. barn.

4.4. Betony modyfikowane pierwiastkami ziem rzadkich

Jednym z najbardziej obiecujących modyfikatorów betonu z punktu widzenia osłabiania promieniowania neutronowego są tzw. pierwiastki ziem rzadkich. Wspomniany wcześniej Seshardi [24] uzyskał wzmocnienie osłonowości o 10% (ale także emisji wtórnego promieniowania gamma) dla betonu hematytowego z dodatkiem 1% koncentratu, w którego skład wchodził głównie tlenek samaru 37,5% i tlenek gadolinu 27,5%.

Tlenek gadolinu jako modyfikator był rozważany w wielu pracach autora, czego podsumowaniem są następujące wnioski:

- 98% skuteczność w pochłanianiu neutronów termicznych przez zaprawy zawierające Gd_2O_3 w ilości 2% w stosunku do masy cementu oraz wzrost o 100% liniowego współczynnika tłumienia dla neutronów termicznych wobec zapraw normowych [15],
- dodatek Gd_2O_3 w ilości 2% powoduje, że przy wiązce neutronów prędkich spada liczba rejestrowanych neutronów termicznych za przegrodą, czyli spowalniane neutrony są absorbowane w materiale i nie wydostają się na zewnątrz [37],
- wzrost zawartości Gd_2O_3 od 1% przez 2%, aż do 5% nie powoduje istotnego polepszenia właściwości osłonowych [36],
- duża skuteczność Gd_2O_3 przy małej grubości osłony w całym zakresie energetycznym neutronów termicznych (do 1×10^{-1} MeV), przy większej grubości osłony skuteczność jest widoczna w mniejszym zakresie energetycznym (przy grubości 30 cm do 1×10^{-4} MeV a przy 50 cm – 2×10^{-7} MeV) [36].

5. Badania własne

Przedmiotem badań były płyty betonowe o wymiarach 400x400x50 mm wykonane z betonu referencyjnego wykonanego przy użyciu CEM III 42,5R i wskaźniku $w/c=0,4$: na kruszywie granitowym (Z) oraz betony modyfikowane:

- przed zamianę kruszywa granitowego na magnetytowe (M)
- przez zamianę cementu CEM III 42,5R na CEM I 42,5 R (MC-I).
- przy użyciu tlenku gadolinu (Gd_2O_3) w ilości 0,5 i 1,0% w stosunku do masy cementu (ZG 0.5 i ZG 1.0 oraz MG 0.5 i MG 1.0)
- przez dodatek włókien w postaci makrowłókien polimerowych (MF1) i/lub mikrowłókien polipropylenowych (MF2, MF1+2)
- polimerem w postaci dyspersji akrylowej (MPCC1) lub dyspersji epoksydowej (MPCC2)
- przy użyciu nieorganicznego związku chemicznego z grupy wodoroków zawierającego bor, który jest stosowany jako magazyn wodoru w ogniwach wodorowych (H2).

Właściwości betonów (wytrzymałość na ściskanie i gęstość) po 28 i 235 dniach, dla których przeprowadzono pomiary właściwości osłonowych wskazują na brak zmian w gęstości objętościowej ($Dr_{max} = 3\%$), ale istotny przyrost wytrzymałości, nawet o 50% w przypadku betonu MF1+2 (tabela 3). Na szczególną uwagę zasługuje nieoczekiwany wzrost wytrzymałości na ściskanie betonu o ponad 20% po dodaniu gadolinu; dla betonu zwykłego jest to wzrost z 51,7 MPa na 62,6 MPa i dla betonu magnetytowego z 42,7 MPa na 52,4MPa.

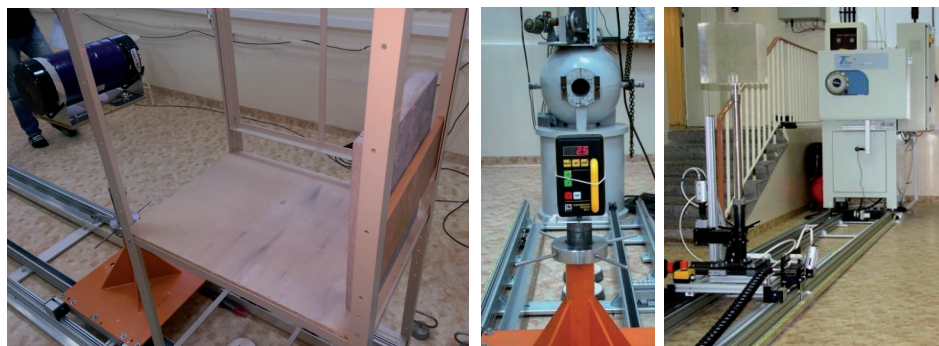
Tabela 3. Podstawowe właściwości techniczne betonów z cementem CEM III

Opis betonu	Symbol	Po 28 dniach				Po 365 dniach			
		f_{cm} [MPa]	f_{ck} [MPa]	klasa betonu	ρ [kg/m ³]	f_{cm} [MPa]	Δf_{cm} [%]	ρ [kg/m ³]	$\Delta \rho$ [%]
Zwykły	Z	51.7	46,7	C35/45	2251	56.3	9	2233	-1
Magnetytowy	M	42.7	37,7	C30/37	3014	60.3	41	3100	3
Magnetytowy z CEM I	MC-I	36.4	31,4	C25/30	3020	50.3	38	3040	1
Zwykły z 0,5% Gd ₂ O ₃	ZG 0.5	55.3	50,3	C40/50	2339	67.8	23	2306	-1
Zwykły z 1,0% Gd ₂ O ₃	ZG 1.0	62.6	57,6	C45/55	2293	73.0	17	2338	2
Magnetytowy z 0,5% Gd ₂ O ₃	MG 0.5	51.7	46,7	C35/45	3123	65.0	26	3090	-1
Magnetytowy z 1,0% Gd ₂ O ₃	MG 1.0	52.4	47,4	C35/45	3194	67.2	28	3168	-1
Magnetytowy z makrowłóknami polimerowymi	MF1	44.3	39,3	C30/37	3069	57.4	30	3063	0
Magnetytowy z mikrowłóknami polipropylenowymi	MF2	52.0	47,0	C35/45	3165	56.6	9	3157	0
Magnetytowy z makrowłóknami polimerowymi i mikrowłóknami polipropylenowymi	MF1+2	25.7	20,7	C15/20	2856	38.4	49	2892	1
Magnetytowy PCC z dyspersją polimerową	MPCC1	43.4	38,4	C30/37	3120	49.1	13	3200	3
Magnetytowy PCC z żywicą epoksydową	MPCC2	51.3	46,3	C35/45	3179	55.1	8	3183	0
Magnetytowy PCC z dyspersją polimerową i 1,0% Gd ₂ O ₃	MPCC1G 1.0	40.3	35,3	C25/30	3107	39.3	-2	3175	2
Magnetytowy z 1,0% NaBH ₄	H2	32.9	27,9	C20/25	3053	41.1	25	3058	0

5.1. Pomiary we wzorcowych polach promieniowania

Pomiary przeprowadzono wg indywidualnie opracowanego programu [38] na specjalnie przygotowanym stanowisku, które pozwalało na pozycjonowanie płyt o wymiarach 500x500x50 mm, umieszczanych prostopadle do mechanizmu pozycjonowania źródła promieniowania na wysokości 100 cm \pm 3% nad powierzchnią podłogi. Źródło promieniowania na czas trwania pomiarów w sposób zdalny za pomocą wciągnika elektrycznego było wysuwane z tymczasowego slotu umieszczonego pod powierzchnią podłogi.

Stosunkowo duża powierzchnia próbki promieniowanie źródła w sposób izotropowy zapewniało, że pomiar uwzględniał głównie wiązkę przechodzącą przez przegrodę, a nie promieniowanie odbite od ścian i urządzeń w pomieszczeniu. Pomiary były wykonywane przy użyciu systemu pomiarowego, w skład którego wchodziły dwie rekombinacyjne komory jonizacyjne typu REM 2.8 oraz GW2, których wybór wynikał z charakteru zastosowanego źródła promieniowania jonizującego, które jest głównie źródłem promieniowania neutronowego jednak równoległe do niego występuje składowa gamma, której obecność zaburza pomiar i wprowadza błąd. Komora jonizacyjna typu REM 2.8 jest komorą równoważną tkance, a więc jest detektorem czułym zarówno na składową neutronową, jak i na składową gamma. Natomiast komora typu GW2 jest komorą bezwodorową, co oznacza, że jej czułość neutronowa jest pomijalna względem czułości na promieniowanie gamma. Pozwala to na określenie składowych oraz przedstawienie kolejnych wyników uwzględniających wpływ składowej gamma.



Fot. 1. Stanowisko pomiarowe w hali kalibracyjnej Laboratorium Pomiarów Dozymetrycznych w Departamencie Energetyki Jądrowej Narodowego Centrum Badań Jądrowych (LPD DEJ NCBJ)

5.2. Symulacje komputerowe MCNP

Raport NESCC [39] stwierdza, że skuteczność betonowych osłon przed promieniowaniem neutronowym może być łatwo obliczana przy pomocy nowoczesnych algorytmów rozwiązujących równanie transportu Boltzmanna tzw. radiation transport codes. Ponieważ nie można go rozwiązać analitycznie wykorzystują one metody numeryczne, a w szczególności metodę Monte Carlo wymyśloną przez Metropolis i Ulama [40] podczas ich pracy w projekcie Manhattan w laboratorium Los Alamos. W tej numerycznej metodzie tworzy się serię historii drogi i oddziaływań pojedynczego neutronu, które są następnie zbierane w postaci danych i prezentowane statystycznie. Sposób pozyskiwania wyników sprawia, że dokładność metody MC zależy w dużej mierze od liczby prób w czasie rzeczywistym, gdyż niepewność pomiarowa badania wynosi $1/\sqrt{N}$, gdzie N oznacza liczbę prób. Uproszczony algorytm przeprowadzanych w ramach badań symulacji Monte Carlo był przedstawiony przez Tefelskiego i in. [26]. Do przeprowadzenia symulacji wykorzystano pakiet oprogramowania MCNP6 w oparciu o rzeczywistą geometrię źródła i stanowiska pomiarowego [341].

5.3. Wyniki i ich analiza

Wyniki HVL i TVL względem promieniowania gamma potwierdzają zależność właściwości osłonowych względem promieniowania gamma od gęstości – beton ciężki (M) uzyskał aż o ok 1 cm niższe wartości HVL od betonu zwykłego (Z) i o ok 2-3 cm niższe wartości TVL (tabela 4). Analiza skuteczności dodatków wskazuje, że w przypadku betonu zwykłego po dodaniu gadolinu obserwujemy wzrost wartości zarówno HVL jak i TVL. Jednocześnie okazało się, że wszystkie modyfikatory zastosowane w programie badawczym obniżają wartości HVL i TVL uzyskane dla betonu magnetytowego :

- tlenek gadolinu zarówno HVL, jak TVL maleje proporcjonalnie do jego zawartości osiagając maksymalnie 0,5 cm spadek wartości HVL i 2,1 cm dla TVL przy 1% Gd_2O_3 ,
- zbrojenie rozproszone – dodatek makrowłókien polimerowych (MF1) powodował spadek HVL o 0,3 cm i TVL o 0,8 cm,
- dodatek dyspersji polimerowej (MPCC1) podobnie jak borowodorek sodu (H2) powodował spadek HVL o 0,3-0,5 cm i TVL o 0,9-1,2 cm.

Nie stwierdzono jednak współdziałania dodatków gadolinu i dyspersji polimeru (MPCC1G 1.0)- spadek HVL i TVL dla źródła Cs-137 wyniósł odpowiednio 0,2 i 0,7 cm, a dla źródła Co-60 – 0,4 cm i 0,8 cm.

Podsumowując można stwierdzić, że zaproponowane dodatki polepszają właściwości osłonowe betonów magnetytowych przed promieniowaniem gamma o ok. 6–13%.

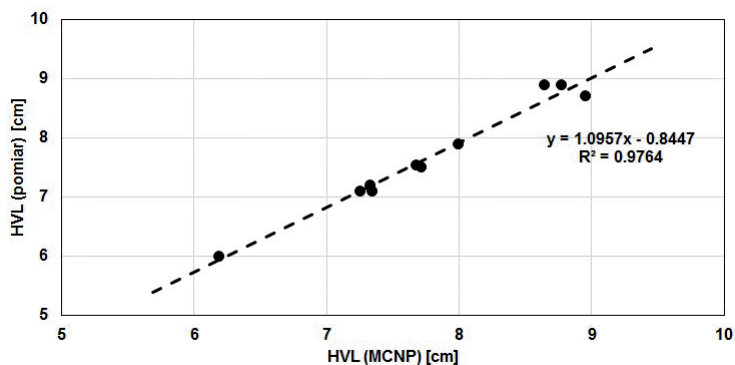
Analizując uzyskane wartości HVL dla źródła promieniowania gamma można zauważyć, że beton zwykły uzyskuje gorsze właściwości osłonowe niż beton ciężki magnetytowy (o ok. 10–12% dla HVL). Podobnie jak w przypadku promieniowania gamma modyfikacja materiałowa betonu ciężkiego zarówno przy użyciu gadolinu, włókien polimerowych jak i dodatku polimerowego daje bardzo dobre rezultaty (spadek HVL o kolejne 10% w stosunku do betonu ciężkiego niemodyfikowanego, M). Najbardziej korzystne okazało się zastosowanie polimeru łącznie z tlenkiem gadolinu (spadek o 20%) – można zatem stwierdzić, że w tym przypadku ujawnił się efekt addytywny modyfikacji.

Porównując uzyskane w wyniku pomiarów eksperymentalnych wartości HVL z uzyskanymi za pomocą symulacji komputerowych można zauważyć liniowy charakter tej zależności ze współczynnikiem równym 1,1, co świadczy o około 10% przeszacowaniu właściwości osłonowych betonów przy użyciu kodu MCNP (rys. 1). Najprawdopodobniej jest to wynikiem założenia 20% zawartości wody związanej chemicznie uwzględnianej przy obliczaniu składu atomowego betonu, co w oparciu o wyniki eksperymentalne jest wartością nieco zawyżoną [24].

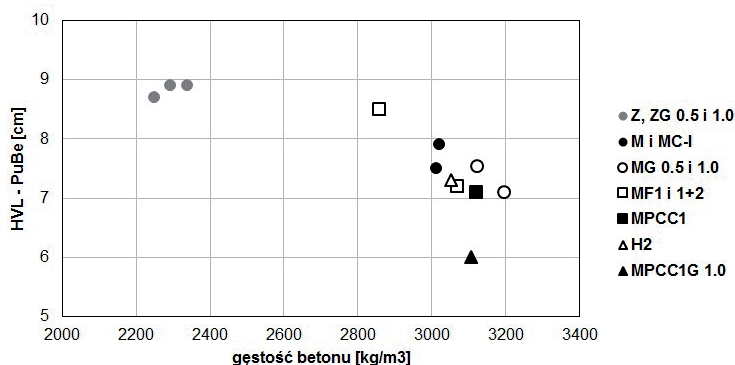
Tabela 4. Wyniki pomiarów HVL i TVL dla promieniowania gamma (źródło Cs-137 i Co-60) oraz wyniki pomiarów i symulacji HVL i TVL dla promieniowania neutronowego (źródło Pu-Be)

Promieniowanie		gamma				neutronowe	
Opis betonu	Symbol	Cs-137		Co-60		Pu-Be	
		HVL	TVL	HVL	TVL	HVL (pomiar)	HVL (MCNP)
Zwykły	Z	4,0	12,7	5,3	17,2	8,95	8,7
Magnetytowy	M	3,2	10,8	4,3	14,6	7,71	7,5
Magnetytowy z CEM I	MC-I	3,2	10,8	4,2	14,5	7,99	7,9
Zwykły z 0,5% Gd ₂ O ₃	ZG 0.5	4,2	14,1	5,4	19,2	8,64	8,9
Zwykły z 1,0% Gd ₂ O ₃	ZG 1.0	4,1	13,8	5,3	18,6	8,77	8,9
Magnetytowy z 0,5% Gd ₂ O ₃	MG 0.5	3,1	10,2	4,0	14,0	7,67	7,6
Magnetytowy z 1,0% Gd ₂ O ₃	MG 1.0	2,9	9,7	3,8	12,5	7,25	7,1
Magnetytowy z makrowłóknami polimerowymi	MF1	2,9	10,1	4,0	13,8	7,33	7,2
Magnetytowy z mikrowłóknami polipropylenowymi	MF2	3,0	10,3	4,0	14,2	-	-
Magnetytowy z makrowłóknami polimerowymi i mikrowłóknami polipropylenowymi	MF1+2	3,1	10,7	4,1	15,0	-	8,5
Magnetytowy PCC z dyspersją polimerową	MPCC1	2,8	9,7	3,8	13,4	7,34	7,1
Magnetytowy PCC z żywicą epoksydową	MPCC2	2,9	10,1	3,9	13,6	-	-
Magnetytowy PCC z dyspersją polimerową i 1,0% Gd ₂ O ₃	MPCC1G 1.0	3,0	10,1	3,9	13,8	6,19	6,0
Magnetytowy z 1,0% NaBH ₄	H2	2,9	9,9	3,9	13,4	-	7,3

Analizując wartości HVL dla źródła Pu-Be w funkcji gęstości (rys. 2) można zauważyć, że punktu układają się w dwóch grupach: jedna dla betonu zwykłego niezależnie od modyfikacji gadolinem oraz druga dla betonu magnetytowego. Najniższy wynik uzyskano dla betonu magnetytowego PCC (z dodatkiem dyspersji polimerowej) oraz 1% Gd₂O₃ w stosunku do masy cementu (MPCC1G 1.0). Wytrzymałość średnia tego betonu $f_{cm,28}$ wynosi 40,3 MPa, co jest wartością bliską wartości dla betonu magnetytowego niemodyfikowanego (M) – 42,7 MPa. W świetle wcześniejszych wyników uzyskanych przez Akkurt'a i in. [19] okazuje się, że w przypadku, gdy mamy do czynienia z promieniowaniem mieszanym (gamma i neutronowym) magnetyt jest dużo lepszym kruszywem ciężkim niż baryt.

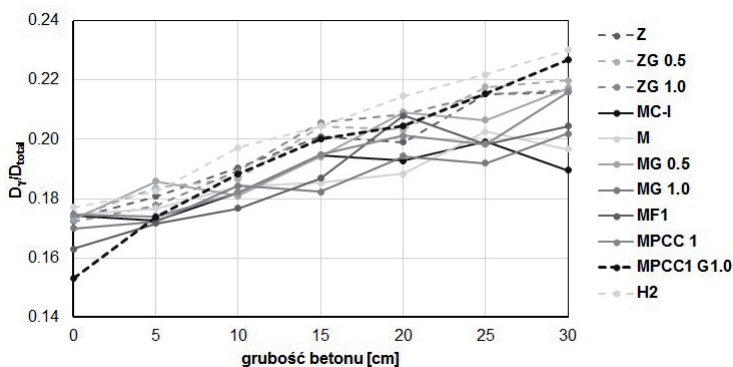


Rys. 1. Zależność wartości HVL uzyskanymi w pomiarach dla źródła Pu-Be oraz oszacowane w symulacjach MCNP



Rys. 2. Zmierzone wartości HVL dla źródła Pu-Be w zależności od gęstości betonu, oznaczenia wg tab

Wykres udziału dawki od promieniowania gamma w dawce całkowitej uzyskany dzięki zastosowaniu komór REM 2.8 i GW2 (rys. 3) pokazuje, iż beton zwykły oraz magnetytowy modyfikowany borowodorkiem (H2) lepiej osłabia promieniowanie neutronowe niż pozostałe betony magnetytowe. Położenie punktów pomiarowych wyżej na wykresie świadczy o tym, iż większa liczba neutronów jest spowalnianych i absorbowanych w materiale z emisją kwantów gamma, co przedkłada się właśnie na większy udział dawki gamma w dawce całkowitej. Jedynie beton magnetytowy PCC z gadolinem (MPCC1G 1.0), mimo iż na początku jest najgorszy (punkty położone najniżej na osi Y) to wraz ze wzrostem grubości osłony jego skuteczność staje się coraz większa i przy grubości 30 cm jest gorszy jedynie od betonu H2.



Rys. 3. Udziału dawki od promieniowania gamma w dawce całkowitej

6. Podsumowanie i wnioski

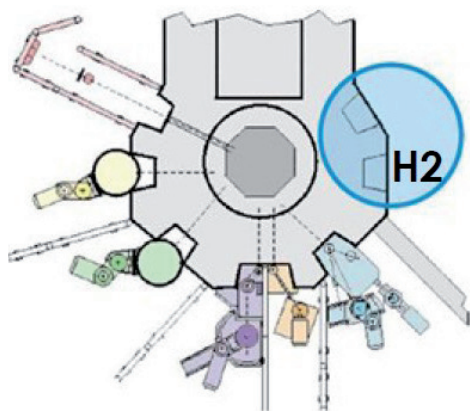
Zarówno studia literaturowe, jak i przeprowadzone badania wskazują, że realizacja modyfikacji materiałowej w celu poprawy właściwości osłonowych betonu przed promieniowaniem jonizującym jest bardzo skomplikowanym zadaniem, ponieważ samo oddziaływanie promieniowania jonizującego z materiałem jest zjawiskiem, które zależy od wielu czynników, w tym przede wszystkim od rodzaju promieniowania (gamma/neutronowe) jego energii, i w końcu od samego materiału – jego mikrostruktury i budowy atomowej.

W związku z powyższym, aby ocenić efektywność takiej modyfikacji należy:

- zdefiniować promieniowanie – jego rodzaj i parametry i dobrać modyfikatory, które mają szczególnie potencjał w polepszeniu osłonowości (np. w przypadku promieniowania gamma będą to kruszywa ciężkie, ale już w przypadku promieniowania mieszanego (gamma+neutronowe) baryt nie jest rozwiązaniem optymalnym,
- zdefiniować podstawowe parametry użytkowe betonu takie jak np. wytrzymałość na ściskanie, szczelność itp.
- wykonać symulacje komputerowe w celu oszacowania właściwości osłonowych metodą Monte Carlo przy użyciu oprogramowania typu MCNP,
- przeprowadzić program eksperymentalny obejmujący badania wymaganych właściwości użytkowych betonów modyfikowanych oraz weryfikację właściwości osłonowych we wzorcowych polach promieniowania.

W kolejnym etapie badań projektu, dla wybranych betonów zostaną przeprowadzone pomiary osłabiania wiązki neutronów, a także promieniowania gamma w wiązce kanału poziomego H2 reaktora MARIA (rys. 4).

Ostatecznym efektem realizacji projektu będzie optymalizacja i opracowanie wytycznych do projektowania, wykonywania i kontroli jakości nowej generacji betonu osłonowego przed promieniowaniem jonizującym. Opracowane rozwiązania materiałowe powinny mieć duży potencjał patentowy, a opracowane wytyczne pozwolą na projektowanie kompozytów budowlanych na potrzeby m.in. budowy elektrowni jądrowych w ramach Programu Polskiej Energetyki Jądrowej oraz innych obiektów, w których wykorzystywane są techniki jądrowe, w tym laboratoriów badawczych i obiektów medycznych.



Rys. 4. Konfiguracja kanałów poziomych reaktora MARIA z zaznaczonym kanałem H2 oraz widok stanowiska badawczego w węźle kanału poziomego H2 podczas badania

Artykuł powstał w ramach projektu LIDER/033/639/L-4/12/NCBR/2013 oraz pracy statutowej WIL PW na rok 2016. Składam szczególne podziękowania dla Lafarge Cement S.A., SIKA Poland SA oraz Surico Sp. z o.o.- Sp.K., za pomoc w doborze i dostarczeniu materiałów do badań oraz NCBJ za realizację pomiarów we wzorcowych polach promieniowania.

Literatura

- [1] P. Łukowski, Modyfikacja materiałowa betonu, Wyd. Stowarzyszenie Producentów Cementu, Kraków 2016
- [2] RCC-CW: Design and construction rules for civil works in PWR nuclear islands, AFCEN 2015;
- [3] PN-EN 206:2014-04, Beton - Wymagania, właściwości, produkcja i zgodność
- [4] T. Piotrowski, Wymagania dotyczące betonu w elektrowni jądrowej typu EPR wg ETC-C a normalizacja w Polsce, Materiały Budowlane, 5 (489) 2013, 35–38
- [5] Pohl E., Technika jądrowa w budownictwie, Arkady, Warszawa 1967, s. 263;
- [6] Ablewicz Z., Józwiak B., Budownictwo w technice jądrowej, Arkady, Warszawa 1978, s. 313;
- [7] Ablewicz Z., Dubrowski, W.B., Osłony przed promieniowaniem jonizującym, Arkady Warszawa 1986, s. 300;
- [8] Sears V.F., Neutron scattering lengths and cross sections, Neutron News, 3, 3 (1992), 29–37.
- [9] Kharita M.H., Yousef S., Al Nassar M., The effect of the initial water to cement ratio on shielding properties of ordinary concrete, Progress in Nuclear Energy 52 (5) 2010, 491–493, doi:10.1016/j.pnucene.2009.11.005
- [10] Şahin R., Polat R., İçelli O., Çelik C, Determination of transmission factors of concretes with different water/cement ratio, curing condition, and dosage of cement and air entraining agent, Annals of Nuclear Energy, 38 (7) 2011, 1505–1511, doi:10.1016/j.anucene.2011.03.013
- [11] El-Khayatt A.M., Radiation shielding of concretes containing different lime/silica ratios, Annals of Nuclear Energy 37 (7) 2010, 991–995, doi:10.1016/j.anucene.2010.03.001
- [12] Piotrowski T., Tefelski D.B., Skubalski J., Żak A., Experiments on Neutron Transport through Concrete Member and the Potential for the Use in Material Investigation, Acta Phys Pol A, 128 (2B) 2015, B-13-18, doi:10.12693/APhysPolA.128.B-14

- [13] Piotrowski T., Skubalski J., Analiza zjawiska transportu neutronów przez przegrody betonowe i możliwości jego wykorzystania w badaniach materiałowych, *Materiały Budowlane* 5 (501) 2014, 94–96;
- [14] Piotrowski T., Mazgaj M., Żak A., Skubalski J., Importance of atomic composition and moisture content of cement based composites in neutron radiation shielding, *Procedia Engineering*, 108, 2015, 616–623, doi:10.1016/j.proeng.2015.06.188
- [15] Mazgaj M., Piotrowski T., Improvement of neutron shielding properties of concrete by innovative material modification, *Proc. Int. Symp. „Brittle Matrix Composites 11”* A.M. Brandt, J.Olek, M.A.Glinicki, C.K.Y.Leung, J.Lis (ed.), Warsaw September 28–30, 2015, Institute of Fundamental Technological Research, Warsaw 2015, ISBN 978-83-89687-96-8
- [16] Prochoń P., Piotrowski T. Wpływ zawartości wody związanej w zaczynie i zaprawie cementowej na wartość liniowego współczynnika tłumienia promieniowania jonizującego. XX konferencja naukowo-techniczna. Trwałość budowli i ochrona przed korozją - KONTRA. PZITB; 2016, 35–38
- [25] Piotrowski T., Tefelski D.B., Polański A., Skubalski J., Monte Carlo simulations for optimization of neutron shielding concrete, *Central European Journal of Engineering*, 2 (2) 2012, 296–303, doi: 10.2478/s13531-011-0063-0 doi:10.4028/www.scientific.net/AMR.1129.131
- [18] Brandt AM. Concrete as a shielding material in nuclear energy constructions, *Cement Wapno Beton* 2, 2013, 115–132
- [19] Brandt AM, Józwiak-Niedźwiedzka D. The influence of ionizing radiation on microstructure and properties of concrete shields – a review, *Cement Wapno Beton* 4, 2014, 216–237.
- [20] Akkurt I., Kilincarslan S., Basyigit C., The photon attenuation coefficients of barite, marble and limra, *Annals of Nuclear Energy* 31 (5) 2004, 577–582, doi:10.1016/j.anucene.2003.07.002
- [21] Akkurt I., Basyigit C., Kilincarslan S., Mavi B., Akkurt A., Radiation shielding of concretes containing different aggregates, *Cement and Concrete Composites* 28 (2) 2006, 153–157, doi:10.1016/j.cemconcomp.2005.09.006
- [22] Akkurt I., Elkhayat A., The effect of barite proportion on neutron and gamma-ray shielding, *Annals of Nuclear Energy* 51 (2013) 5–9, doi:10.1016/j.anucene.2012.08.026
- [23] Akkurt I., Akyıldırım H., Mavi B., Kilincarslan S., Basyigit C., Radiation shielding of concrete containing zeolite, *Radiation Measurements*, 45 (7) 2010, 827–830, doi:10.1016/j.radmeas.2010.04.012
- [24] Okuno K., Kawai M., Yamada H., Development of Novel Neutron Shielding Concrete, *Nuclear Technology* 168 (2) 2009, 545–552
- [25] Seshadri B.S., Transmission measurements of D-T neutrons through gadolinium loaded concrete and polypropylene, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 26 (9) 1989, 881–886, doi: 10.1080/18811248.1989.9734400
- [26] Tefelski D.B., Piotrowski T., Bildeanu V., Polanski A., Skubalski J., Monte-Carlo aided design of neutron shielding concretes, *Bulletin of the Polish Academy of Sciences. Technical Sciences*, 61 (1) 2013, 161–171, doi: 10.2478/bpasts-2013-0015
- [27] Türkmen İ., Özdemir Y., Kurudirek M., Demir F., Simsek Ö., Demirboğa R., Calculation of radiation attenuation coefficients in Portland cements mixed with silica fume, blast furnace slag and natural zeolite, *Annals of Nuclear Energy*, 35 (10) 2008
- [28] Yılmaz E., Baltas H., Kırıs E., Ustabas İ., Cevik U., El-Khayatt A.M., Gamma ray and neutron shielding properties of some concrete materials, *Annals of Nuclear Energy* 38 (10) 2011, 2204–2212, doi:10.1016/j.anucene.2011.06.011
- [29] Mahdy M., Speare P.R.S., Abdel-Reheem A.H., Shielding properties of heavyweight, high strength concrete, *Proc. of 2nd Material Speciality Conference of the Canadian Society for Civil Engineering*, Montreal, Quebec, Canada 5–8 June 2002
- [30] Kharita M.H., Yousef S., Al Nassar M., The effect of carbon powder addition on the properties of hematite radiation shielding concrete, *Progress in Nuclear Energy* 51 (2) 2009, 388–392, doi:10.1016/j.pnucene.2008.10.002, 1937–1943, doi:10.1016/j.anucene.2008.03.012
- [31] Gallego E., Lorente A., Vega-Carrillo H.R., Testing of a High-Density Concrete as Neutron Shielding Material, *Nuclear Technology* 168 (2) 2009, 399–404
- [32] Belyakov V.V., Grigor'ev V.A., Lavdanskii P.A., Remeiko O.A., Khokhlov V.F., Calculation of shielding made of concrete with an increased hydrogen content, *Sov Atom Energy*, 44, 5 (1978) 526–528.
- [33] Belyakov V.V., Grigorev V.A., Kozlov V.V., Lavdanskii P.A., Nazarov V., Shielding characteristics of polymer based concretes in neutron radiation fields *Sov At Energy*, 43, 4 (1977), 913.
- [34] Malkapur S.M., Satdive H., Narasimhan M.C., Karkera N.B., Goverdhan P., Sathian V., Effect of mix parameters and hydrogen loading on neutron radiation shielding characteristics of latex modified concrete mixes, *Progress in Nuclear Energy*, 83 (8) 2015, 8–12, doi:10.1016/j.pnucene.2015.02.010
- [35] Piotrowski T., Tefelski D.B., Sokolowska J.J., Mazgaj M., Skubalski J., Żak A., Polymers in Concrete – The Shielding against Neutron Radiation, *Advanced Materials Research*, 1129, 2015, 131–138

- [36] Piotrowski T., Tefelski D.B., Sokołowska J.J., Jaworska B., NGS-Concrete - New Generation Shielding Concrete against Ionizing Radiation - the Potential Evaluation and Preliminary Investigation, *Acta Phys Pol A*, 128 (2B) 2015, B-9-13, doi:10.12693/APhysPolA.128.B-9
- [37] Piotrowski T., Nowej generacji beton osłonowy przed promieniowaniem jonizującym, *Materiały Budowlane* 9 (517) 2015, 34-36, doi:10.15199/33.2015.09.10
- [38] Domański S., Gryziński M. A., Maciak M., Murawski Ł., Tulik P., Tymińska K.: Experimental investigation on radiation shielding of high performance concrete for nuclear and radiotherapy facilities, *Pol. J. Med. Phys. Eng.*, Vol. 22, No2, 2016
- [39] NESCC Report "Concrete Codes and Standards for Nuclear Power Plants: Recommendations for Future Development", July 2011, p.48
- [40] Metropolis N, Ulam S, The Monte Carlo method, *J Am Stat Assoc* 1949;44(247):335-41.
- [41] MCNP6.1/MCNP5/MCNPX: Monte Carlo N-Particle Transport Code System Including MCNP6.1, MCNP5-1.60, MCNPX-2.7.0 and Data Libraries, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico, 2013