

УДК 621.039.7

ЛОКАЛИЗАЦИЯ ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩИХ МАСС ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ» В БОРОСИЛИКАТНЫХ СТЕКЛАХ

Ольховик Ю. А. кандидат геол.-мин. наук, с.н.с, ГУ «Институт геохимии окружающей среды НАН Украины», yolkhovyk@ukr.net

*В работе рассмотрена текущая ситуация в объекте «Укрытие», которая характеризуется интенсивными процессами разрушения лавовых топливосодержащих масс вследствие альфа-распада изотопов плутония и минорных актинидов. Выполненный во Франции комплекс исследования свойств боросиликатных стекол, легированных короткоживущим $^{244}\text{PuO}_2$, показал высокую устойчивость этой матрицы к воздействию альфа-распада *in situ*. Вплоть до дозы $1,2 \cdot 10^{19}$ α -расп. $\cdot\text{г}^{-1}$ стекла сохраняют однородность, образования каких-либо новых фаз, микротрещин и газовых пузырьков не отмечено. Рассмотрена возможность преобразования лавовых топливосодержащих масс в боросиликатное стекло, близкое по составу к исследованным стеклам SON68, с использованием индукционного плавления в «холодном» тигле. Накопленная доза в стекле, сформированном на основе лавовых топливосодержащих масс, не превысит $1 \cdot 10^{18}$ α -расп. $\cdot\text{г}^{-1}$ за 100000 лет.*

Ключевые слова: лавовые топливосодержащие массы, захоронение, остекловывание, боросиликатное стекло, самооблучение, альфа-распад

Введение

Ядерную, радиационную и экологическую безопасность объекта «Укрытие» определяют в первую очередь лавообразные топливосодержащие материалы (ЛТСМ) ввиду того, что они содержат около 90 тонн облученного ядерного топлива, то есть около половины радионуклидов, накопленных в активной зоне энергоблока №4 Чернобыльской АЭС к моменту аварии.

Высокая скорость остывания лав в условиях значительных температурных градиентов и интенсивного газовыделения привели к наличию в матрице ЛТСМ внутренних напряжений, пористости и значительной неоднородности. Вследствие воздействия указанных факторов ЛТСМ представляют собой хрупкое пористое вещество, для которого характерны невысокая механическая прочность, эрозия поверхности (пылеобразование), высокая скорость выщелачивания урана и радионуклидов цезия, неустойчивость в условиях прямого контакта с водой. Наличие указанных свойств вкуче с высоким содержанием осколочных и трансурановых радионуклидов (табл. 1 и табл. 2) однозначно приводит к выводу о необходимости кондиционирования ЛТСМ для обеспечения безопасности последующего захоронения.

Не исключена возможность внезапного (в течение короткого срока, исчисляемого несколькими неделями) разрушения материала лавы в результате концентрированного самооблучения с появлением пылеватых частиц. До настоящего времени нет единой точки зрения о характере долговременного (≈ 100 лет) поведения лавы.

Целью работы является обоснование технически приемлемого преобразования ЛТСМ в материал, устойчивый к воздействию как природных факторов, так и к излучению

инкорпорированных радионуклидов, и пригодный для безопасного длительного хранения и последующего захоронения в геологическом хранилище.

Таблица 1. Усредненный радионуклидный состав проб лавы из помещений ББ-2 (продукты деления и активации, данные по 15 пробам), пересчет на 26.04.1986 г [1].

Нуклид	^{144}Ce	^{137}Cs	^{134}Cs	^{106}Ru	^{125}Sb	^{154}Eu	^{155}Eu	^{90}Sr
Активность МБк/г	$2,6 \cdot 10^3$	$5,6 \cdot 10$	$3,1 \cdot 10$	$3,7 \cdot 10$	7,5	4,0	4,2	$1,0 \cdot 10^2$

Таблица 2. Усредненный радионуклидный состав проб лавы из помещений ББ-2 (уран и трансурановые элементы), пересчет на 26.04.1986 г [1].

Активность нуклидов, МБк/г					U, %
^{238}Pu	$^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$	^{242}Cm	^{244}Cm	^{241}Am	
$8,4 \cdot 10^{-1}$	1,7	$4,6 \cdot 10$	$2,3 \cdot 10^{-1}$	$4,6 \cdot 10^{-1}$	10

Результаты исследования и их обсуждение

В настоящее время основными матричными композициями для промышленной иммобилизации ВАО, содержащих как продукты деления, так и трансурановые радионуклиды, являются неорганические стекла. Выбор стекол обусловлен их свойствами - полимерной структурой и нестехиометрическим характером стекол, позволяющим включать в них в определенных пределах почти все элементы Периодической системы. Они характеризуются высокой стойкостью к коррозии в водных средах: природные силикатные стекла со дна океанов за миллион лет прокорродировали всего на десятую долю миллиметра [2].

Таблица 3. Основные свойства боросиликатных стекол [3]

Параметр		Значение
Включение отходов (в виде окислов)		30 – 35%
Вязкость, Па·сек, при 1200°C		3,5 – 5,0
Сопrotивление, Ω м при 1200°C		0,03 – 0,05
Сопrotивление при сжатии, МПа		80 - 100
Скорость выщелачивания, г/см ² ·день	^{137}Cs	$10^{-5} - 10^{-6}$
	^{90}Sr	$10^{-6} - 10^{-7}$
	Cr, Mn, Fe, Co, Ni	$10^{-7} - 10^{-8}$
	РЗЭ и актиниды	$\sim 10^{-8}$
	Na	$10^{-5} - 10^{-6}$
	B	$< 10^{-8}$

В предыдущих публикациях [3, 4] автор отмечал, что кондиционирование может быть выполнено путем преобразования ЛТСМ в боросиликатное стекло, обладающее малой восприимчивостью к действию радиации и низкой чувствительностью к изменениям химического состава иммобилизуемых материалов. В результате совместного переплавления ЛТСМ усредненного состава (табл. 4), соединений бора и натрия в массовом соотношении

ЛТСМ – 100, B_2O_3 – 18, Na_2O – 8 возможно формирование стекол с составом (в таблице выделено курсивом), близким по основным компонентам SiO_2 , Na_2O , B_2O_3 к боросиликатному стеклу **SON68**. Это стекло разработано во Франции для иммобилизации высокоактивных отходов от переработки отработанного ядерного топлива, которые содержат не только продукты деления, но и заметное количество трансурановых элементов.

Таблица 4. Химический состав ЛТСМ и боросиликатного стекла SON68, мас. %

Оксид	Керамика из пом. 304/3 [5]		Керамика из пом. ББ-2 [5]		Коричневая керамика [1]		Черная керамика [1]		Стекло SON68, основной состав [6]
SiO_2	65,2	51,7	66,9	53,1	58,5	46,4	63,2	50,2	45,28
CaO	6,2	4,9	4,8	3,8	6,1	4,8	6,6	5,2	4,02
ZrO ₂	5,4	4,3	5,1	4,0	6	4,8	5,7	4,5	2,72
Na_2O	5,7	10,9	2	7,9	4,9	10,2	5,5	10,7	10,1
BaO	0,1	<i>0,1</i>	0,1	<i>0,1</i>	0,2	<i>0,2</i>	0,2	<i>0,2</i>	0,61
Al_2O_3	6,9	5,5	0	<i>0,0</i>	6,3	5,0	8,1	6,4	4,94
MnO	1,8	<i>1,4</i>	0,3	<i>0,2</i>	0,5	<i>0,4</i>	0,4	<i>0,3</i>	0,33
Fe_2O_3	0,5	<i>0,4</i>	1,8	<i>1,4</i>	1,2	<i>1,0</i>	0	<i>0,0</i>	2,95
MgO	3,5	2,8	8,9	7,1	6,4	5,1	5,3	4,2	
UO ₂	4,7	3,7	10	7,9	10	7,9	5	4,0	
B_2O_3	-	14,3	-	14,3	-	14,3	-	14,3	13,97

Наличие широкого спектра радионуклидов подразумевает различные источники облучения: альфа-распад изотопов плутония и минорных актинидов, бета-распад продуктов деления и сопровождающее эти процессы гамма-излучение. Вопросам устойчивости стекол в условиях самооблучения посвящено множество работ, выполненных в США, Японии и в Европе. Было показано, что альфа-распад минорных актинидов является главной причиной изменений механических свойств стекол (прочность, плотность) [7].

При этом отмечено, что для гомогенных боросиликатных стекол доза облучения, выше которой объем стекла остается практически постоянным, составляет около 10^{18} α -распад \cdot г⁻¹ (10^{11} рад). Максимальная степень изменения объема стекла под воздействием самооблучения находится в пределах $\pm 1,2$ % (рис. 1).

С целью количественной оценки воздействия самооблучения при альфа-распаде и обеспечения надежности прогнозов долгосрочного поведения стекла при геологическом захоронении во Франции были выполнены комплексные исследования свойств боросиликатного стекла SON68, легированного $^{244}CmO_2$. Включение в стекло короткоживущего актинида ($T_{1/2}^{244}Cm = 17,6$ лет) позволяет быстро накопить высокие дозы альфа-распада. Эта методология является наиболее представительной, поскольку весь объем стекла облучается с участием всех компонентов альфа-распада: ядер отдачи и альфа-частиц. Периодические исследования стекол с разной концентрацией $^{244}CmO_2$ в течение 8 лет позволили оценить эффекты доз альфа-распада, соответствующие примерно 100 000 лет захоронения стекол, содержащих реальные высокоактивные отходы переработки ядерного топлива.

Основные результаты исследований можно кратко сформулировать следующим образом:

- некоторые макроскопические свойства изменяются с накоплением альфа распадов, но затем стабилизируются после накопления дозы около $4 \cdot 10^{18}$ α -расп \cdot г⁻¹. Плотность стекла

уменьшается примерно на 0,6%, модуль Юнга и твердость снижаются примерно на 15% и 30% соответственно, в то время как трещиностойкость увеличивается примерно на 50%;

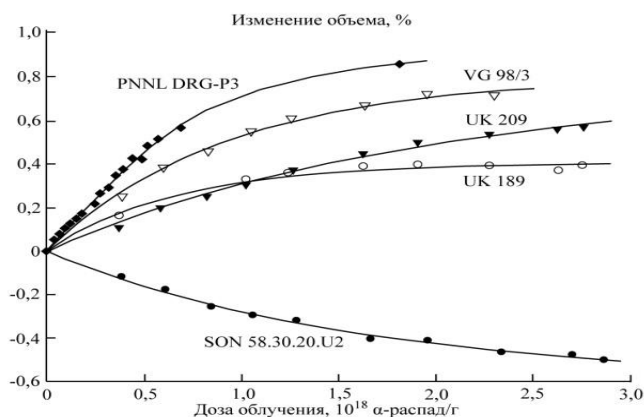


Рис. 1. Изменение объема боросиликатных стекел при α -облучении [8]

• скорость выщелачивания остается чрезвычайно низкой и изменяется в пределах $\approx 20\%$ вне зависимости от накопленной дозы вплоть до максимального значения $4 \cdot 10^{21}$ кэВ/см³ (рис. 2.);

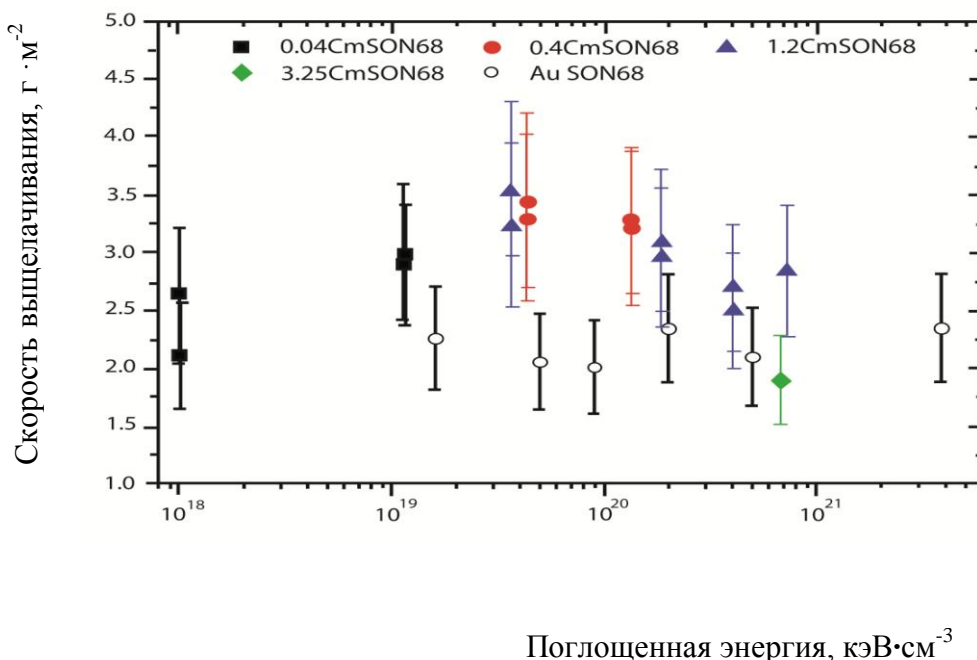


Рис. 2. Скорость выщелачивания из облученного стекла SON68 [9].

Цифры в названии стекла соответствуют весовому содержанию ²⁴⁴CmO₂. AuSON68 – стекло, облученное ионами Au.

• методами електронної мікроскопії встановлено, що боросилікатне скло впродовж до поглищеної дози $1,5 \cdot 10^{19}$ α-расп·г⁻¹ зберігає структурну однорідність при кімнатній температурі. Не відмічено утворення яких-либ нових фаз, мікротрещин і газових бульбашок;

• аналіз методом просвічуваної електронної мікроскопії підтвердив збереження однорідної мікроструктури після облучення дозою $8 \cdot 10^{18}$ α-расп·г⁻¹ [10]. При цьому межа

пространственного разрешения составил 10 нм. Таким образом радиационные повреждения стекла SON68 вследствие альфа-распада не вызывают модификацию микроструктуры стекла в нанометровом масштабе;

- в раман-спектрах (спектроскопия комбинационного рассеяния) стекол, легированных кюрием, с накоплением дозы альфа-распада наблюдаются некоторые изменения, но при этом анализ спектров подтверждает, что никакие вторичные фазы (ни кристаллическая, ни аморфная) не образуются при таких условиях облучения. После дозы $2 \cdot 10^{18}$ α -расп. \cdot г $^{-1}$ вплоть до значений $1,2 \cdot 10^{19}$ α -расп. \cdot г $^{-1}$ формы спектров не изменяются, свидетельствуя о стабилизации новой структуры во всем объеме стекла [11];

- поведение гелия, возникающего при альфа-распаде, было изучено в стекле SON68 путем измерения константы растворимости и коэффициентов диффузии гелия. Константа растворимости атомов гелия, включенных в свободный объем стекла, варьирует менее чем на 10% вокруг значения около 10^{11} ат. \cdot см $^{-3}$ \cdot Па $^{-1}$. Эксперименты по изучению диффузии гелия указывают, что миграция гелия управляется классическим термоактивированным диффузионным процессом и не предполагает наличия каких-либо гелиевых «ловушек» в виде пузырьков нанометрических размеров [12].

Свойства, присущие боросиликатному стеклу SON68 позволяют считать его безопасной долговременно стабильной матрицей, пригодной для использования в качестве одного из защитных барьеров при геологическом захоронении высокорadioактивных отходов – продуктов переработки ядерного топлива. Модификация состава лавовых ТСМ объекта «Укрытие» путем введения бора и щелочей и формирования боросиликатного стекла, близкого по составу к стеклу SON68 (табл. 4), позволит рассчитывать на получение конечного продукта, способного соответствовать требованиям механической, химической и радиационной стойкости на период 100 и более тысяч лет.

Несложно рассчитать количество альфа-распадов, которое произойдет в 1 грамме ТСМ в течение 100000 лет, исходя из доступной информации о содержании делящихся нуклидов (табл. 2) и известных соотношений между активностью и массой ядерного материала

$$m = (A \cdot M \cdot T_{1/2}) / (0,693 \cdot N_A),$$

где m – масса радионуклида, г; A – активность радионуклида, Бк; M – молярная масса, г/моль; $T_{1/2}$ – период полураспада, сек; N_A – число Авогадро.

Ввиду больших периодов полураспада атомы ^{238}U и ^{235}U не дадут заметного вклада в общее количество альфа-распадов, накопленных в ТСМ за 100000 лет.

Альфа-распад ^{238}Pu приводит к образованию ^{234}U с периодом полураспада $2,46 \cdot 10^5$ лет. За искомый период 100000 лет распадется весь ^{238}Pu и часть ^{234}U , формируя цепочку из семи альфа-распадов, заканчивающихся стабильным ^{206}Pb . Общий вклад ^{238}Pu в самооблучение ТСМ составит $9,1 \cdot 10^{15}$ α -расп. \cdot г $^{-1}$.

Таблица 5. Расчет количества атомов делящихся радионуклидов в образце ТСМ из ББ-2

	U-238	U-235	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Cm-242	Cm-244	Am-241
$T_{1/2}$, лет	4,47E+09	7,04E+08	87,7	2,41E+04	6560	0,446	17,6	432
M , г	238	235	238	239	240	242	244	241
A , Бк/г			8,40E+05	8,50E+05	8,50E+05	4,60E+07	2,30E+05	4,60E+05
масса, г/г	0,0888	0,0027	1,32E-06	3,70E-04	1,01E-04	3,75E-07	7,46E-08	3,62E-06
n , атом/г	2,25E+20	6,92E+18	3,35E+15	9,32E+17	2,54E+17	9,34E+14	1,84E+14	9,04E+15

Проводя консервативний расчет по всем трансурановым радионуклидам с учетом соответствующих цепочек распада, можно ожидать формирование суммарной дозы $1,2 \cdot 10^{18}$ α -расп. \cdot г $^{-1}$ ТСМ за 100000 лет. Принимая во внимание возможное разбавление ТСМ при смешении с менее активными разновидностями и добавку модификаторов (соединения бора и натрия), максимальная суммарная доза облучения боросиликатного стекла, сформированного на основе ТСМ, не превысит $1 \cdot 10^{18}$ α -расп. \cdot г $^{-1}$ за 100000 лет.

Исходя из подобия химических составов боросиликатного стекла SON68 и предлагаемой боросиликатной матрицы для локализации лавовых ТСМ, можно предположить, что такая доза альфа-облучения не приведет к каким-либо изменениям механической, химической и радиационной стойкости за указанный период.

Такое преобразование ЛТСМ предотвратит их дальнейшую деструкцию вследствие развития трещин, которые, по всей видимости, являются результатом увеличения объема кристаллических включений за счет окисления оксида урана, и образования наноразмерных каналов, возникающих в результате накопления радиационных дефектов в ЛТСМ при их самооблучении [13].

Оптимальным методом получения боросиликатных стекол на основе ЛТСМ, по убеждению автора, является индукционное плавление в холодном тигле (ИПХТ)[3, 4]. По сравнению с другими плавителями, холодные тигли позволяют использовать более высокие температуры (до 3000 °С). За счет наличия в расплаве, находящемся в “холодном” тигле, местных зон перегрева и конвективного перемешивания достигается быстрое максимальное растворение оксида урана и его равномерное распределение в объеме стекломассы, чего не удастся достичь при использовании плавления в муфельной печи из-за седиментации урансодержащей фазы в донную часть стекломассы [14].

Высокая эффективность отверждения РАО методом ИПХТ подчеркивается во многих публикациях [2, 15]. Немаловажным аргументом в пользу ИПХТ является компактность тиглей. Диаметр тигля с производительностью около 40 кг/час составляет 800 мм (рис. 3), что допускает возможность размещения установки переработки ЛТСМ непосредственно в помещениях разрушенного энергоблока Чернобыльской АЭС. Принимая во внимание отсутствие в загружаемой в ИПХТ шихте соединений, при разложении которых образуются газообразные продукты, система вентиляции и очистки воздуха также не потребует больших помещений. Разлив боросиликатного стекла целесообразно выполнять в такие же контейнеры из нержавеющей стали, которые предусматриваются в проекте хранилища для возвращаемых из РФ остеклованных высокоактивных отходов от переработки отработанного ядерного топлива АЭС Украины. Это позволило бы унифицировать технические решения по транспортировке и хранению остеклованных отходов различного происхождения.

Каждый макроэлемент, входящий в состав ЛТСМ, будет оказывать соответствующее влияние на химическую устойчивость стекла, его вязкость, электропроводность и другие свойства. Увеличенные по сравнению со стеклом SON68 содержания Si, U, Zr, Mg и Al (табл.4) повысят устойчивость стекла к выщелачиванию, но также приведут к повышению вязкости расплава и температуры его варки.

Безусловно, необходимо выполнение комплекса исследований с тем, чтобы уточнить оптимальные соотношения лавовых ТСМ с присущими им вариациями химического состава и бор-натрий-содержащих компонентов для получения гомогенной боросиликатной матрицы с высокой гидролитической устойчивостью. Помимо указанного критерия, важным технологическим параметром, определяющим температуру получения стекольного расплава, является его вязкость.

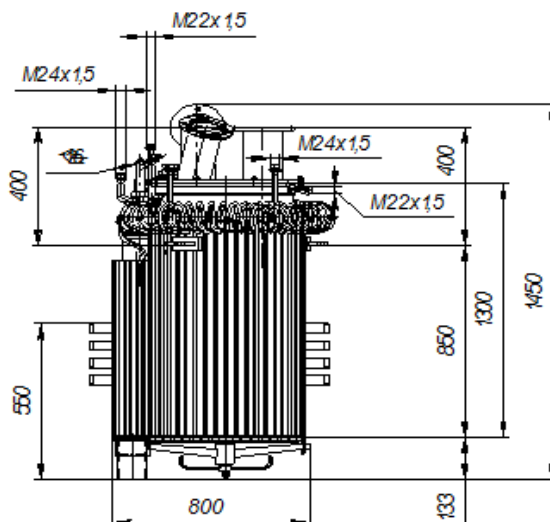


Рис. 3. Габаритные размеры и характеристики холодного тигля, предназначенного для плавления стеклоподобных компонентов и разлива в приемную тару
основной материал – сталь 12Х18Н10Т4; масса – 380 кг; расход охлаждающей воды 10 м³/час

Для решения этой задачи, при планировании эксперимента, целесообразно использовать метод факторного анализа, позволяющего определить влияние выбранных факторов на интересующие нас свойства конечного продукта путем одновременного варьирования концентрации основных компонентов при минимальном количестве постановочных опытов.

Таким образом, рассмотренные выше свойства боросиликатных стекол, включающих делящиеся радионуклиды, убедительно свидетельствуют в пользу выполнения неотложных научно-исследовательских работ по выбору оптимальной технологии локализации лавовых ТСМ объекта «Укрытие» в боросиликатную матрицу.

Выводы

1. В лавовых топливосодержащих массах, сосредоточенных в объекте «Укрытие», вследствие накопления радиационных дефектов при самооблучении ЛТСМ за счет α -распада трансурановых элементов, идут процессы деструкции. До настоящего времени нет единой точки зрения о характере долговременного (≈ 100 лет) поведения ЛТСМ.
2. Выполненные за рубежом исследования боросиликатных стекол, инкорпорированных короткоживущим нуклидом ^{244}Cm , показали высокую устойчивость этих матриц к воздействию альфа-облучения. Вплоть до дозы $1,2 \cdot 10^{19}$ α -расп. $\cdot \text{г}^{-1}$ стекла сохраняют однородность, образования каких-либо новых фаз, микротрещин и газовых пузырьков не отмечено.
3. Оптимальным методом получения боросиликатных стекол на основе ЛТСМ, близких по составу основных компонентов к стеклам SON68, является индукционное плавление в холодном тигле с формированием шихты в массовом соотношении ЛТСМ – 100, B_2O_3 – 18, Na_2O – 8. Компактные размеры тигля и системы вентиляции позволяют рассматривать возможность размещения установки кондиционирования непосредственно в помещениях объекта «Укрытие».
4. Требуется неотложное проведение научно-исследовательских работ для определения оптимальных соотношений компонентов стекла с тем, чтобы получаемая матрица обладала гомогенностью и высокой гидролитической устойчивостью, приемлемой для передачи на захоронение.
5. Разлив боросиликатного стекла, сформированного с применением индукционного плавления в холодном тигле, может выполняться в металлические бочки, предусмотренные

в проекте хранилища для возвращаемых из РФ остеклованных высокоактивных отходов от переработки отработанного ядерного топлива АЭС Украины. Это позволило бы унифицировать технические решения по транспортировке и хранению остеклованных отходов различного происхождения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ядерное топливо в объекте «Укрытие» Чернобыльской АЭС / Р. В. Арутюнян, Л. А. Большов, А. А. Боровой, Е. П. Велихов, А. А. Ключников. — М. : Наука, 2010. — 240 с.
2. Ожован М. И. Применение стекол при иммобилизации радиоактивных отходов / Ожован М. И., Полуэктов П. П. // Безопасность окружающей среды. — 2010. — № 1. — С. 112—119.
3. Olkhovuk Yu. Corrosion Resistance of Chernobyl NPP Lava Fuel-Containing Masses / Yu.Olkhovuk, M. Ojovan// Innovations in Corrosion and Materials Science. — 2015. — No.5. (1) - p. 36 – 42.
4. Ольховик Ю.А. О кондиционировании лавовых топливо-содержащих масс объекта «Укрытие»// Ядерная энергетика та довілля. — 2014. — №2(4). — с.52–55.
5. Отчет о состоянии безопасности объекта «Укрытие». — Т. 1. [Электронный ресурс]. — Режим доступа: http://www.chnpp.gov.ua/index.php?option=com_content&view=article&id=157&lang=ru
6. Peugeot S. Irradiation stability of R7T7-type borosilicate glass / S. Peugeot, J.N. Cachia, C. Jegou, X. Deschanel, D. Roudil, V. Broudic, J.M. Delays, J.M. Bart // Journal of Nuclear Materials. — 2006. — 354. — p. 1–13.
7. Weber W.J. Radiation effects in glasses used for immobilization of high-level waste and plutonium disposition / W.J. Weber, R.C. Ewing, C.A. Angell, G.W. Arnold, A.N. Cormack, J.M. Delays, D.L. Gscom, L.W. Hobbs, A. Navrotsky, D.L. Price, A.M. Stoneham, M.C. Weinberg // Journal of Material Society. — 1997. —V.12. — p. 1946–1978.
8. Ewing R. C. Actinide waste forms and radiation effects / Ewing R. C., Weber W. J. // Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements. — 2011. — V. 6. —P. 3813—3887.
9. Peugeot S. Effect of alpha radiation on the leaching behaviour of nuclear glass /S.Peugeot, V. Broudic, C. Jegou, P. Frugier, D. Roudil, X. Deschanel, H. Rabiller, P.Y. Noel // Journal of Nuclear Materials .- 2007. — 362. —p. 474–479.
10. Peugeot S. Specific outcomes of the research on the radiation stability of the French nuclear glass towards alpha decay accumulation / S. Peugeot, J.-M. Delays, C. Jegou // Journal of Nuclear Materials. — 2014. — 444. —p. 76–91.
11. Peugeot S. Irradiation Stability of R7T7-Type Borosilicate Glass / S. Peugeot, J.M. Delays, G. Bureau, R. Do Quang, S. Betremieux, C. Jegou, F.Chamssedine, T. Sauvage, T. Fares, G. Calas, G. Henderson, X. Deschanel // "Global – 2009.The Nuclear Fuel Cycle: Sustainable Options & Industrial Perspectives". - Paris, 2009.
12. Fares T. Helium diffusion in curium-doped borosilicate waste glass / T. Fares, S. Peugeot, O. Bouty, X. Deschanel, M. Magnin, C. Jegou // Journal of Nuclear Materials. — 2011. -416. — p. 236–241.
13. Габелков С. В. Наноразмерные поровые каналы как составляющая порового пространства лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие» /С. В. Габелков, А. А. Ключников, Е. Е. Олейник, П. Е. Пархомчук, Г. Ф. Чемерский, В. Н. Щербин// Проблемы безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. — 2014. — 22. — с. 70 – 73.
14. Матюнин Ю.И. Исследование урансодержащих боросиликатных стекол, синтезированных в индукционном плавителе с холодным тиглем (ИПХТ)// Ю.И. Матюнин, С.В. Юдинцев. — Вопросы радиационной безопасности. — 2000. — №1. — с. 15– 23.
15. Ojovan M. I. Glassy wasteforms for nuclear waste immobilization / Ojovan M. I., Lee W. E. // Metallurgical and Materials Transactions A. — 2011. — v. 42A. — P. 837—851.

REFERENCES

1. R. Arutunian, L. Bolshov, A. Borovoy, E. Velikhov and A. Klyuchnikov Yadernoe toplivo v ob'ekte «Ukryitie» Chernobyil'skoy AES [Nuclear fuel in the object “Shelter” of Chernobul NPP] // Moscow: Nauka 2010, pp. 240. [in Russian]

2. M. Ozhovan, P. Polouektov *Primenenie stekol pri immobilizatsii radioaktivnyih othodov // Bezopasnost okruzhayushey sredy [Application glass immobilization of radioactive waste // Safety environment]* — 2010. — № 1. — P. 112—119. [in Russian]
3. Yu. Olkhovik *Corrosion Resistance of Chernobyl NPP Lava Fuel-Containing Masses / Yu.Olkhovik, M. Ojovan // Innovations in Corrosion and Materials Science.* — 2015. — No.5. (1) - p. 36 – 42.
4. Yu. Olkhovik *O konditsionirovanii lavovyih toplivo-soderzhaschih mass ob'ekta "Ukrytie" // Yaderna energetika ta dovkillya. [About conditioning lava fuel-containing masses of the "Shelter" // Nuclear Energetics and Environment].* — 2014. — №2(4). — p.52–55. [in Russian]
5. Report on safety status of object "Shelter". Vol.1.
http://www.chnpp.gov.ua/index.php?option=com_content&view=article&id=157&lang=ru
6. S. Peugeot *Irradiation stability of R7T7-type borosilicate glass / S. Peugeot, J.N. Cachia, C. Jegou, X. Deschanel, D. Roudil, V. Broudic, J.M. Delaye, J.M. Bart // Journal of Nuclear Materials.* — 2006. — 354. — p. 1–13.
7. W. Weber *Radiation effects in glasses used for immobilization of high-level waste and plutonium disposition / W.J. Weber, R.C. Ewing, C.A. Angell, G.W. Arnold, A.N. Cormack, J.M. Delaye, D.L. Gscom, L.W. Hobbs, A. Navrotsky, D.L. Price, A.M. Stoneham, M.C. Weinberg // Journal of Material Society.* — 1997. —V.12. — p. 1946–1978.
8. R. Ewing *Actinide waste forms and radiation effects / Ewing R. C., Weber W. J. // Chemistry of the Actinide and Trisactinide Elements.* — 2011. — V. 6. —P. 3813—3887.
9. S. Peugeot *Effect of alpha radiation on the leaching behaviour of nuclear glass /S.Peuget, V. Broudic, C. Jegou, P. Frugier, D. Roudil, X. Deschanel, H. Rabiller, P.Y. Noel // Journal of Nuclear Materials .-* 2007. — 362. —p. 474–479.
10. S. Peugeot *Specific outcomes of the research on the radiation stability of the French nuclear glass towards alpha decay accumulation / S. Peugeot, J.-M. Delaye, C. Jegou // Journal of Nuclear Materials.* — 2014. — 444. —p. 76–91.
11. S. Peugeot *Irradiation Stability of R7T7-Type Borosilicate Glass / S. Peugeot, J.M. Delaye, G. Bureau, R. Do Quang, S. Betremieux, C. Jegou, F.Chamssedine, T. Sauvage, T. Fares, G. Calas, G. Henderson, X. Deschanel // "Global – 2009.The Nuclear Fuel Cycle: Sustainable Options & Industrial Perspectives". - Paris, 2009.*
12. T. Fares *Helium diffusion in curium-doped borosilicate waste glass / T. Fares, S. Peugeot, O. Bouty, X. Deschanel, M. Magnin, C. Jegou // Journal of Nuclear Materials.* — 2011. -416. — p. 236–241.
13. S. Gabelkov *[Nanosized pore channels as a component of pore space of lava-like fuel-containing materials of «Ukrytya» object // Problemi bezpeki atomnih elektrostantsy I Chornobilya]/ S. V. Gabelkov, O. O. Kliuchnykov, Ye. Ye. Oliynyk, P. E. Parkhomchuk, G. F. Chemersky, V. M. Shcherbin // Safety problems of nuclear power plants and Chernobyl. - 2014 - #22 - p. 70 - 73. [in Russian]*
14. Y. Matyunin *Issledovanie uransoderzhaschih borosilikatnyih stekol, sintezirovannyih v indukcionnom plavitele s holodnyim tiglem. [Immobilization of U₃O₈ in borosilicate glass in an induction melter with a cold crucible] / Y. I. Matyunin and S. V. Yudintsev // At.Energy. — 1998. -Vol. 84. - pp. 173-178. [In Russian]*
15. M. Ojovan *Glassy wastefoms for nuclear waste immobilization / Ojovan M. I., Lee W. E. // Metallurgical and Materials Transactions A.* — 2011. — v. 42A. — P. 837—851.

ЛОКАЛІЗАЦІЯ ПАЛИВОВМІСНИХ МАС ОБ'ЄКТУ «УКРИТТЯ» У БОРОСИЛІКАТНОМУ СКЛІ

Ольховик Ю. О. кандидат геол. - мін. наук, с. н. с, ДУ «Інститут геохімії навколишнього середовища НАН України», yolkhovik@ukr.net

У роботі розглянута поточна ситуація в об'єкті «Укриття», яка характеризується інтенсивними процесами руйнування лавових паливовмісних мас внаслідок альфа-розпаду ізотопів плутонію і мінорних актинидов. Виконаний у Франції комплекс досліджень властивостей боросилікатного скла, легованого короткоживущим ²⁴⁴СтО₂, показав високу стійкість цієї матриці до впливу альфа-розпаду in situ. Навіть при отриманні дози $1,2 \cdot 10^{19}$

α -розп. $\cdot z^{-1}$ скло зберігає однорідність, утворення будь-яких нових фаз, мікротріщин і газових бульбашок не відзначено. Розглянуто можливість перетворення лавових паливовмісних мас у боросилікатне скло, близьке за складом до дослідженого скла SON68, з використанням індукційного плавлення в «холодному» тиглі. Накопичена доза в склі, сформованому на основі лавових паливовмісних мас, не перевищить $1 \cdot 10^{18}$ α -розп. $\cdot z^{-1}$ за 100000 років.

Ключові слова: лавові паливовмісні маси, захоронення, оскловування, боросилікатне скло, самопромінення, альфа-розпад

LOCALIZATION OF «SHELTER» LAVA FUEL-CONTAINING MASSES IN BOROSILICATE GLASSES

Yu. Ol'khovyk Ph.D(Geol.-Min.), Senior Researcher, SI «Institute of Environmental Geochemistry NAS Ukraine», yolkhovyk@ukr.net

The current situation of the "Shelter" object, which is characterized by intense processes of lava fuel-containing masses destruction as a result of the alpha decay of plutonium and minor actinide isotopes, is considered. Made in France, the complex study of the properties of borosilicate glass, doped by short-lived $^{244}\text{CmO}_2$, showed a high resistance of the matrix to the effects of alpha-decay in situ. Up to a dose of $1,2 \cdot 10^{19} \cdot \alpha \cdot g^{-1}$ glass retains uniformity, the formation of any new phases, cracks and gas bubbles was not observed. The possibility of conversion of fuel containing lava masses in borosilicate glass, which is close in composition to the studied glasses SON68, using induction melting in the "cold" crucible is discussed. The cumulative dose in the glass, formed by the lava fuel-containing masses, does not exceed $1 \cdot 10^{18} \alpha \cdot g^{-1}$ for 100 000 years.

Keywords: lava fuel-containing masses, disposal, vitrification, borosilicate glass, self-irradiation, alpha decay