

ЗАХОРОНЕНИЕ ОСТЕКЛОВАННЫХ ВАО В ВЕРТИКАЛЬНЫХ СКВАЖИНАХ С ЦЕМЕНТНОЙ ЗАКЛАДКОЙ – ПЛЮСЫ И МИНУСЫ С ТОЧКИ ЗРЕНИЯ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ДОЛГОВРЕМЕННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ ПГЗРО

С. А. Богатов

Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, Москва

Статья поступила в редакцию 18 января 2018 г.

В статье рассматривается вариант использования в качестве инженерного барьера при захоронении радиоактивных отходов (РАО) класса 1 материала на основе цемента. Данный вариант имеет ряд преимуществ, к которым относятся: создание эффективного химического барьера; снижение скорости коррозии стальных контейнеров; высокая газопроницаемость; обеспечение однотипного барьера для РАО классов 1 и 2; легкость обращения с цементом. Наиболее спорные вопросы применения цемента – ускоренная коррозия стеклообразной матрицы остеклованных высокоактивных отходов (ОВАО) и относительно высокая проницаемость для слабо сорбируемых нуклидов типа ^{129}I и ^{36}Cl . Однако преимущества данного барьера могут перевесить его недостатки применительно к проекту ПГЗРО в Нижнеканском массиве (НКМ), где предполагается компактное захоронение ОВАО в скважинах глубиной 75 м с бентонитовым барьером, а содержание радионуклидов ^{129}I и ^{36}Cl крайне незначительно.

Ключевые слова: радиоактивные отходы, глубинное захоронение, инженерные барьеры, материалы на основе цемента.

Введение

Концепция ПГЗРО Нижнеканского массива (НКМ) предусматривает совместное размещение РАО класса 1 и 2 на двух ярусах размерами примерно 300×700 м на глубине 500 м. При этом РАО класса 1 располагаются в вертикальных скважинах глубиной 75 м, а РАО класса 2 – в горизонтальных выработках. В качестве основного барьерного материала для РАО класса 1 предполагается использование бентонитовых блоков, а закладочного материала для РАО класса 2 – использование смеси на основе цемента [1].

Данная работа посвящена оценкам возможности использования инженерного барьера на основе цемента при захоронении ОВАО как альтернативного инженерного барьера для ПГЗРО НКМ. В настоящее время применение цементных материалов активно рассматривается в зарубежных концепциях ПГЗРО, в том числе в составе суперконтейнеров для бельгийской концепции ПГЗРО [2] и многоцелевых контейнеров для захоронения ВАО и ОЯТ [3].

1 Преимущества ПГЗРО с барьерами на основе цемента

1.1 Физический контейнмент¹

После закрытия ПГЗРО цементная закладка будет придавать поступающей подземной воде (ПВ) щелочной характер ($\text{pH} > 10$) и насыщать ее ионами кальция. Данный процесс будет замедлять растворение материалов в составе РАО класса 2 подземными водами [5]. В то же время коррозия РАО и контейнеров быстро приведет к поглощению кислорода, поступившего в ПГЗРО на этапе строительства и загрузки. Низкое содержание кислорода и высокие значения pH будут способствовать сохранению целостности упаковок после закрытия ПГЗРО за счет резкого

¹ Используется принятый в международной практике термин. В соответствии с определением [4] означает предотвращение сбросов радиоактивных веществ или контроль их рассеивания в окружающей среде (соответствует русскоязычному термину «локализация»).

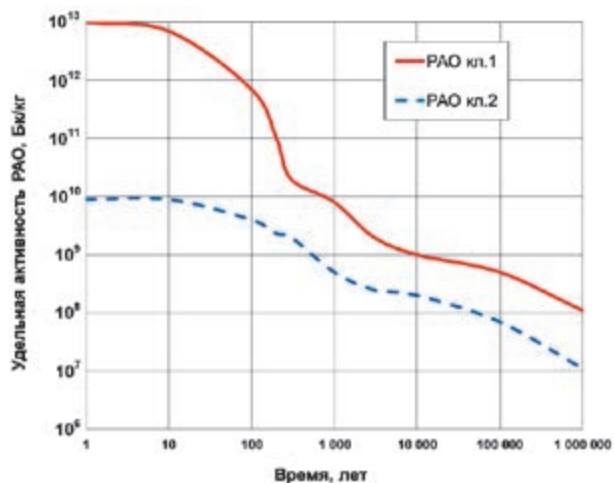


Рис. 1. Изменение во времени ожидаемой суммарной удельной активности РАО классов 1 и 2 со времени поступления в ПГЗРО (консервативная оценка)

сокращения интенсивности коррозии стальных контейнеров.

Степень сохранения изолирующей способности упаковок будет меняться в зависимости от химических свойств рассматриваемых радионуклидов, форм РАО и заполнителя контейнеров. Оценки дают срок целостности упаковок от нескольких сот лет для наиболее подвижных нуклидов, выходящих из фрагментированных форм РАО через вентиляционное отверстие в контейнере для РАО класса 2, до десятков тысяч лет для сорбированных радионуклидов в составе омоноличенных РАО [6].

Разумной оценкой для среднего времени сохранения целостности упаковок является значение 1000 лет², за это время активность РАО класса 1 сократится до примерно 0,1% исходного значения, а РАО класса 2 — примерно до 6% (рис. 1).

1.2 Химический контайнмент

Физический контайнмент, обеспечиваемый цементной закладкой, дает достаточно времени для локализации в упаковках большинства радионуклидов, однако его недостаточно для удержания в них небольшой доли радионуклидов с периодами полураспада свыше нескольких тысяч лет [7]. Основной задачей цементного барьера должно быть обеспечение контайнмента в течение долгого времени — порядка миллиона лет — для всех возможных изменений потоков подземных вод и геохимических условий в ПГЗРО. Выполнение данного требования

обеспечивается созданием цементной закладкой соответствующих химических условий, способствующих снижению растворимости и увеличению сорбции радионуклидов.

Высокие значения pH подземных вод соответствуют преобладанию в растворе гидроксил-ионов (OH)⁻, содержание которых превышает содержание остальных ионов, например нитратов и бикарбонатов, образующихся в результате выщелачивания РАО или привносимыми потоком грунтовых вод. Радионуклиды, присутствующие в виде растворимых химических соединений, реагируя с высокощелочной водой, образуют оксиды или гидроксиды, являющиеся для многих радионуклидов слабо-растворимыми (рис. 2 [8]). Осаждение радионуклидов из раствора сокращает их перенос подземными водами.

Цементные материалы имеют большую активную поверхность, способную связывать радионуклиды. Например, если материал NRVB³ в виде гранул поступает в водный раствор плутония при pH = 10 (при котором плутоний имеет очень низкую растворимость), сорбция плутония снижает его концентрацию в растворе в 10 000 раз [9]. Данный эффект также обеспечивает задержку переноса радионуклидов, в результате которой большая их часть распадается на месте.

Цель цементного буфера в ПГЗРО — обеспечить сохранение высоких значений pH в ближней зоне в течение долгого времени. Относительно высокие проницаемость и пористость способствуют созданию однородной химической среды, предотвращающей образование отдельных участков, где условия сорбции и снижения растворимости могут не выполняться.

Химический контайнмент обеспечивается преимущественно для актиноидов (тория, урана, плутония и т. п.) и иных элементов, присутствующих в РАО в виде положительно заряженных ионов или нейтральных соединений. Данные элементы формируют основную долю радиоактивности в РАО классов 1 и 2. Имеется два основных класса радионуклидов, для которых химический контайнмент мало эффективен, и, хотя активность этих радионуклидов в ПГЗРО относительно мала, они фактически определяют долговременную радиологическую опасность ПГЗРО. Это радионуклиды, которые могут образовывать газообразные соединения, не взаимодействующие с цементом (например, ¹⁴C в составе метана), и долгоживущие плохо сорбируемые радионуклиды, такие как ¹²⁹I и ³⁶Cl, представляющие собой анионы.

² Данный срок сохранения целостности упаковок предписан в нормативном документе НД-093-14 — «Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения». Однако для ОВАО, образование которых при переработке ОЯТ сопровождается извлечением урана и плутония и уносом долгоживущих нуклидов типа ³⁶Cl и ¹²⁹I, основная активность спадает за срок примерно 300 лет (см. рис. 1), и срок защитного действия упаковок может быть меньше без существенного ущерба для безопасности.

³ Смесь с массовыми долями портландцемента (26%), молотого известняка (29%) и гашеной извести (10%), затворяемая водой (35%). В концепции захоронения в Великобритании рассматривается как закладка при захоронении САО и НАО. Рассматривается как аналог цементного барьера для РАО кл. 2 в ПГЗРО НКМ.

Растворимые
Неосаждаемые: элементы присутствуют в виде свободных или гидратированных ионов. Группа включает также Tl

Осаждаются в виде гидроксидов или металлов

Осаждаются

Амфотерные элементы – могут быть растворимы в виде комплексных соединений

Элемент может быть растворим в виде комплексных соединений

Растворимы в виде простых ионов, напр. F, или комплексов типа арсенатов, боратов и т. п.

Благородные газы

Рис. 2. Растворимость оксидов элементов при pH = 12-13, отсутствии сильных комплексантов и окислителей. Символ «*» означает отсутствие данных [8]

1.3 Иные достоинства цементных материалов

При условиях анаэробной (в отсутствие кислорода) коррозии стали и иных металлов в ПГЗРО образуется газ. Газ также может образовываться в результате разложения органики, вызванного жизнедеятельностью микроорганизмов, радиолиза и реакций радиоактивного распада. Чтобы избежать образования избыточного давления внутри контейнеров и инженерных барьеров, газ должен выходить из упаковок и за пределы ближней зоны ПГЗРО. Требуемая проницаемость цементных материалов легко достижима за счет их высокой пористости (см., например [10]). Если в требованиях к ПГЗРО присутствует возможность извлечения упаковок после внесения закладки, прочность цементного материала может быть установлена достаточно низкой (например, для гидроразмыва [11]) при сохранении иных необходимых свойств.

2 Проблемные вопросы применения цементных материалов

Основные проблемы обеспечения долговременной безопасности ПГЗРО, где в качестве барьерных используются материалы на основе цемента, могут быть связаны:

- с необходимостью обеспечения химического контайнмента в течение требуемого времени – сотни тысяч лет;
- эффективностью химического контайнмента для всей области захоронения при неоднородности размещаемых РАО и потоков подземных вод;
- образованием и переносом коллоидов, формирующих несорбируемую форму радионуклидов;
- стойкостью цементных материалов при температурах ПГЗРО (свыше 100 °С);
- высокой скоростью растворимости стекломатрицы ОВАО в щелочной среде.

Данные вопросы изучались в течение долгого времени, и некоторые полученные результаты приводятся ниже.

2.1 Большие масштабы времени

Для того чтобы большинство радионуклидов распались в пределах ближней зоны ПГЗРО, условия химического контайнмента, задерживающего выход радионуклидов, должны сохраняться в течение сотен тысяч лет. Для проверки выполнимости этих условий используется комбинация ускоренных лабораторных испытаний, моделирования и результатов наблюдений за

уникальным объектом, содержащим «природный цемент» в месторождении Макарин (Иордания), где десятки тысяч лет назад содержащий битум глинистый известняк после воспламенения и выгорания образовал материал, очень близкий по свойствам к обычному портландцементу (ОПЦ) [12].

2.1.1 Долговременное кондиционирование подземных вод

Подземные воды, поступающие в ПГЗРО после контакта с цементной закладкой, становятся щелочными вследствие растворения ее активных компонент, которые содержат гидроксид кальция и цементный гель, образующиеся при гидратации ОПЦ. Длительность такого кондиционирования подземной воды может быть оценена по количеству щелочных материалов в закладке и скорости их растворения. Подобные оценки, сделанные на основе ускоренного выщелачивания цементного материала [13,14], показали, что он содержит достаточное количество гидроксидов кальция для кондиционирования объема воды, более чем в 200 раз превышающего объем закладки, до значений pH больше 12. После растворения гидроксида кальция кондиционирование подземной воды будет продолжаться за счет растворения цементного геля. Объем воды, имеющей показатель $\text{pH} > 10$, кондиционируемый по данному механизму, примерно в 800 раз превышает объем геля. Таким образом, общий объем воды, который может кондиционироваться цементным материалом типа NRVB от исходного значения $\text{pH} = 7$ до $\text{pH} = 10$, примерно в 1000 раз превышает его объем.

Простые оценки показывают, что количество цемента вокруг упаковки с ОВАО диаметром 0,7 м и высотой 3,5 м в ПГЗРО, где средний поток подземных вод определяется коэффициентом фильтрации 0,04 м/год и градиентом гидравлического напора 0,05 [15], при размещении ОВАО в вертикальных скважинах должно составлять примерно 19 м³. Данный объем цемента соответствует диаметру скважины чуть больше 2,5 м, и ее проходка не вызовет технических сложностей.

В данных оценках не учтен эффект «фокусировки» потока воды через закладку, имеющую большую водопроницаемость, чем вмещающая порода, а также кондиционирование подземной воды иными материалами в ПГЗРО. В частности, образование кислот, понижающих значение pH, может происходить при разложении органических материалов, например поливинилхлорида, содержащегося в составе РАО класса 2. Оценки [14] показывают, что наличие одного весового процента органических веществ приводит к снижению кондиционирующей способности материала на основе цемента примерно на 20%. С другой стороны, наличие конструктивных материалов ПГЗРО, содержащих цемент,

цементная заливка в контейнерах и цементная закладка камер захоронения РАО класса 2 с большим запасом компенсирует возможное уменьшение показателя pH, вызванное наличием органических веществ [13]. Таким образом, если материал закладки в процессе эволюции не будет изменяться, кроме как вследствие взаимодействия с подземными водами, кондиционирование подземных вод для ОВАО в НКМ с большим запасом может быть обеспечено в течение миллиона лет после закрытия ПГЗРО.

Как уже упоминалось, материалами в составе закладки, обеспечивающими кондиционирование подземных вод, являются гидроксид кальция и цементный гель, образующийся при гидратации ОПЦ. Гидроксид кальция присутствует в кристаллической форме, которая (при отсутствии растворения) не меняется со временем, в отличие от аморфного цементного геля, который может кристаллизоваться, становясь похожим на природные цементные материалы. Не исключено, что большая стабильность кристаллического материала приведет к кондиционированию подземных вод до меньших значений pH, чем те, которые соответствуют цементному гелю. В условиях естественных температур кристаллизация протекает очень медленно, о чем свидетельствует присутствие цементного геля возрастом десятки тысяч лет в природном месторождении Макарин (см., например, [12]). В лабораторных условиях кристаллизация геля моделировалась искусственным старением геля при температурах 80–120 °C [13], при котором появлялись материалы, наблюдаемые в природе. При данных условиях значение pH контактирующей воды падало примерно на единицу.

2.1.2 Долговременные изменения сорбционной способности

Доказанная многочисленными опытами высокая сорбция радионуклидов минералами, входящими в состав цемента, является вторым механизмом обеспечения химического контайнмента. Одним из потенциальных недостатков подобных опытов является то, что они проводятся на свежизготовленном цементе, и возникает вопрос, будет ли данный материал также эффективен в масштабах времени оценок безопасности ПГЗРО.

Для изучения данного эффекта в работе [11] изучалась сорбция урана на (а) образцах материала NRVB, выщелоченного до полного удаления гидроксида кальция, и (б) иных образцов этого материала, находившихся при температуре 120 °C в течение 6 месяцев для кристаллизации цементного геля. Эксперименты показали, что данная обработка не привела к изменению сорбционных свойств материала. В работе [13] приводятся результаты изучения «состаренных» вышеописанным способом образцов с сорбированными на них торием, ураном или плутонием.

Для тория в раствор при «старении» материала переходило до 10% изначально сорбированного количества, остальные актиноиды остались в новых кристаллических фазах, образовавшихся из геля. Уран полностью содержался во вновь образовавшихся минералах, а плутоний перешел в образовавшиеся кристаллы кальцита. «Старение» NRVB приводило к уменьшению растворимости урана в контактирующем растворе в 10 раз, растворимость плутония не изменилась. Данные эксперименты показали, что «старение» цементных материалов если и влияет на их сорбционные свойства, то лишь в незначительной степени.

2.2 Неоднородность

В расчетных оценках обычно предполагается, что захоронение РАО класса 2 представляет собой однородную смесь закладки, поровой воды и радионуклидов (кроме высокорастворимых и несорбируемых) в форме оксидов или гидроксидов, образующихся при высоких значениях pH. Проницаемость тела захоронения РАО класса 2 принимается равной проницаемости закладки, что позволяет оценивать кондиционирующую способность цементного материала как одного целого. Данные оценки не учитывают неоднородности потока подземных вод (ПВ) и расположения РАО класса 2 в упаковках.

2.2.1 Неоднородность потока ПВ

Наибольшая неоднородность потока ПВ ожидается в случае формирования в теле захоронения значительных по размеру трещин, обладающих высокой проницаемостью. Эти трещины могут образовывать каналы прохождения ПВ и приводить к локальной потере кондиционирующих свойств цементной закладки.

В пределе, когда весь поток ПВ будет сосредоточен в трещинах, единственным механизмом поступления в него радионуклидов будет их диффузия через материалы закладки и упаковок. Данные соображения свидетельствуют о том, что модель равномерного потока ПВ через гипотетически однородную смесь РАО и закладки будет более консервативной, чем модель растрескавшейся закладки и упаковок.

По-видимому, некоторая усадка закладки и ее растрескивание неизбежны. Данные процессы ожидаются в первое время после закрытия ПГЗРО до его полного насыщения ПВ. В работе [16] сделана попытка моделирования механизмов растрескивания закладки. Основные механизмы, способные вызвать растрескивание цементной матрицы и закладки, приведены на рис. 3 [16].

Наиболее существенными из них являются:

- пластическая деформация при усадке раствора, связанная с частичным водоотделением (горизонтальные трещины с раскрытием до 2 мм);

- ранняя тепловая усадка на стадии отверждения (к деформации ведет остывание ранее расширившегося за счет химических реакций раствора; образующиеся вертикальные трещины имеют раскрытие до 0,2 мм);
- расширение металлических упаковок и арматуры в металлобетонных контейнерах (объем продуктов коррозии существенно больше объема исходного металла) и давление выделяющихся в процессе коррозии газов.

Последние два механизма могут вызвать растрескивание с раскрытием трещин до 5 мм. Количественные оценки параметров водопереноса, проведенные в [16], показали, что растрескивание закладки приводит примерно к 3-кратному увеличению потока воды через отдельную камеру.

Иным возможным следствием течения ПВ по трещинам в закладке будет осаждение на их поверхности продуктов реакции ПВ и цементной закладки. Для некоторых химических составов ПВ продукты их реакций с цементом имеют низкую проницаемость и могут изолировать поток ПВ от основного материала закладки, обеспечивающего кондиционирование ПВ до высоких значений pH (см., например, [7]).

Если трещина полностью проходит через закладку, данный эффект не имеет негативных последствий, так как, ограничивая кондиционирование ПВ, отложения на стенках трещин также препятствуют миграции радионуклидов в трещину. Однако если одна сторона трещины проходит по закладке, а другая — по поверхности упаковки и продукты реакции изолируют поверхность закладки, то возможен контакт некондиционированной ПВ с РАО. Аналогичные сценарии существуют для расположенных вплотную упаковок с РАО класса 2. Лишь в этих случаях неоднородность потока ПВ может привести к уменьшению степени химического

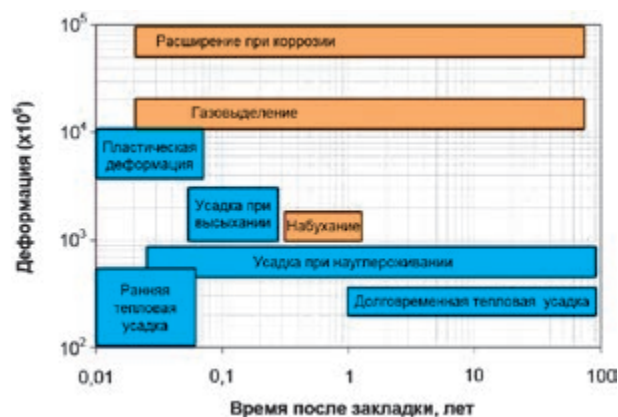


Рис. 3. Возможные механизмы изменения размеров на разных этапах эволюции матричного и закладочного материалов в ПГЗРО. Более светлый тон соответствует увеличению линейных размеров. Под деформацией понимается относительное изменение линейных размеров [19]

контейнмента закладки. Однако полномасштабные эксперименты по внесению закладки и ее растрескиванию показывают, что образование трещин на границе закладка/упаковка или между плотно прилегающими упаковками не является преобладающим механизмом трещинообразования. Изолирующая способность продуктов реакции ПВ/закладка характерна лишь для определенной комбинации компонент ПВ.

Отложения также ожидаются и на входе трещин в закладке при образовании кальцита (CaCO_3) в реакции с ПВ. По данным [17], примерно через 500 лет объем образованного кальцита будет достаточен для закупорки мелких трещин и сокращения потока воды через закладку. В экспериментах, где изучалось науглероживание цемента, отмечалась закупорка трещин с раскрытием менее 0,1 мм, для трещин с раскрытием более 0,2 мм отложения кальцита на стенках замедляют поступление Са из закладки, и закупорка трещин замедляется.

На границе закладки и вмещающей породы растворение закладки будет сопровождаться осаждением вновь образующихся минералов, образующихся при взаимодействии растворов ПВ с продуктами гидратации цемента. Осаждение вторичных минералов может привести к запечатыванию трещин в горной породе на периферии камер или скважин захоронения [18], а также замедлить скорость деградации цементных барьеров за счет уменьшения интенсивности потока ПВ [19]. Известны процессы самозапечатаывания трещин в пунктах изоляции низко- и среднеактивных РАО [20]. Иллюстрация минерализация природных трещин кальцитом при миграции щелочного шлейфа из природного месторождения Макарин в Иордании приведена на рис. 4 [21].

Процесс кальцинации и закупорки трещин в настоящее время не может быть достаточно корректно описан и в количественных оценках безопасности консервативно не рассматривается.



Рис. 4. Фотография трещин, запечатанных кальцитом при миграции щелочного шлейфа в месторождении природного цемента Макарин (Иордания) [24]

2.3 Образование коллоидных частиц

Основной целью химического контейнмента является уменьшение концентрации радионуклидов в водной фазе в результате их сорбции и ограничения предела растворимости. Наличие коллоидов усложняет данное простое представление, и в некоторых предельных предположениях о концентрации коллоидов и содержания в них радионуклидов скорости миграции загрязнения из ПГЗРО значительно возрастают.

Коллоиды могут образовываться из конструкционных материалов внутри ПГЗРО, а также поступать в ПГЗРО вместе с подземными водами. Однако для того, чтобы миграция радионуклидов за счет коллоидов была существенной, они должны быть стабильными, мобильными, присутствовать в высоких концентрациях и иметь высокую сорбционную емкость. Первое из требуемых условий — стабильность коллоидов — трудно достижимо при использовании цементной закладки, поскольку высокощелочная среда обеспечивает возможность коллоидам взаимодействовать с большим числом иных заряженных частиц. На практике концентрации радионуклидов в коллоидной фракции в экспериментах с цементными материалами всегда оказываются незначительными [22–24]. Низкую концентрацию коллоидов в проведенных экспериментах авторы связывают с высокой ионной силой растворов. В экспериментах концентрация урана за счет коллоидной фракции увеличивалась не более чем на 30% [13]. Данная величина меньше, чем экспериментальная неопределенность предела растворимости, и много меньше, чем возможное увеличение концентрации урана за счет образования растворимых комплексов с продуктами разложения целлюлозы.

Концентрация естественных коллоидов, которые могут поступать в ПГЗРО с подземными водами, очень мала. Это не удивительно, так как значительная часть естественных коллоидов образуются из природных органических материалов (гумус и микроорганизмы), концентрация которых на глубине ПГЗРО крайне незначительна. Даже при поступлении таких коллоидов в ПГЗРО они оказываются нестабильными в условиях высокой ионной силы ПВ.

2.4 Изменение свойств цемента при тепловом воздействии

При захоронении ОВАО необходимо обеспечение стабильных свойств материала в течение длительного (порядка 1000 лет) срока при температурах свыше 100 °С⁴. В предыдущих разделах показано, что цементные материалы сохра-

⁴ При использовании цементных материалов в качестве буфера для ВАО, образующихся при переработке ОЯТ современных реакторов по новым технологиям, снижающим количество ВАО, но увеличивающим их удельную активность, возможен нагрев буфера до 300 °С [24].

няют свои функции обеспечения химического барьера в условиях «старения», которые имитировались высокими температурами. В данном разделе приведены данные об эволюции механических и тепловых свойств цемента из [24].

Прочность на сжатие сокращается примерно на 25% при повышении температуры до 300 °С и падает существенно быстрее при дальнейшем нагреве. Уменьшение прочности связано с обезвоживанием цемента.

Модуль упругости (МУ) снижается сильнее прочности, и его значение более чувствительно к окружающим условиям. Относительное значение МУ линейно уменьшается до нуля при нагревании от 100 до 800 °С; при значениях температуры 300 °С значение МУ составляет от 40 до 90% исходного значения. Однако данный факт не угрожает прочности ПГЗРО, где нагрузка после его закрытия на цементный материал будет связана со сжатием. Уменьшение МУ снизит ожидаемую нагрузку на материал и, таким образом, снизит риск его растрескивания.

Коэффициент теплового расширения бетона (смесь цемента, песка и заполнителей) примерно постоянен до температуры 300 °С и имеет величину около $(10 \pm 2) \cdot 10^{-6}$ мм/(мм·°С). Для цементной заливки деформация при высоких температурах связана со сжатием при обезвоживании, так что деформация оказывается отрицательной.

Коэффициент температуропроводности уменьшается линейно при нагревании от 20 до 300 °С до примерно 0,4 исходного значения.

Проницаемость бетона возрастает при повышении температуры. Основываясь на ограниченном числе данных о повышении пористости цемента при нагреве и связи пористости с проницаемостью, получено, что возможное увеличение проницаемости при нагреве до 300 °С может составить до 10 раз от исходного значения. Данный факт может привести к увеличению потока ПВ через ПГЗРО, однако существенно большее увеличение проницаемости связано с растрескиванием цемента.

По результатам [25], **химический состав** портландцемента, кроме испарения свободной и связанной воды, остается постоянным до температуры примерно 350 °С, когда начинается ослабление химических связей силикатов в геле.

В общем, все проведенные исследования как обычного, так и алюминатного цемента не дают основания считать их непригодными для использования в качестве барьерных и конструкционных материалов в ПГЗРО при температурах свыше 100 °С.

2.5 Влияние цементных материалов на скорость растворения стеклообразной матрицы РАО класса 1

Данный вопрос является наименее изученным, и имеющиеся данные преимущественно относятся к зарубежным боросиликатным стеклам,

существенно отличающимся от натрий-алюмофосфатных стекол, планируемых для первоочередного захоронения в России. Лабораторные опыты с модельными стеклами и растворами показывают высокую скорость их растворения, однако учет реального состава ПВ и контактирующих инженерных барьеров способны снизить консерватизм предварительных оценок.

В условиях, близких к нейтральным ($\text{pH} \approx 7$), начальная стадия растворения при контакте стекла с водой характеризуется диффузией молекул воды в структуру стекла и ионным обменом (стадия I), а затем — гидролизом структуры стекла, приводящим к выходу в раствор элементов-стеклообразователей (стадия II, «режим начального растворения»). Данные процессы ведут к образованию на поверхности стекла структуры (геля), обедненной растворимыми компонентами. При дальнейшем растворении наблюдается сильное снижение скорости выхода в раствор компонентов стекла (стадия III, «режим замедления растворения»), после которого скорость растворения становится относительно постоянной, на 3–4 порядка величины ниже характерного значения для стадии II. Данная фаза называется стадией IV или «режимом остаточного растворения». В некоторых случаях после стадии IV скорость растворения опять возрастает (стадия V) [26]. Данные механизмы хорошо известны, но в некоторых случаях выделяют меньше «стадий» растворения (см., например, [27]).

Скорость растворения стекла в фазе II зависит от pH раствора: она существенно увеличивается как в кислотной, так и в щелочной среде. На рис. 5 показана зависимость скорости растворения боросиликатного стекла от температуры и показателя pH по выходу его составляющих (алюминия, бора, кальция, кремния и натрия) [28]. Закрашенные области соответствуют диапазонам скоростей растворения, определяемым по одному из стеклообразователей [28].

Результаты модельных экспериментов [29–34] показывают, что начальная скорость растворения боросиликатных стекол при температурах около 100 °С в нейтральных растворах составляет порядка 10^{-3} – 10^{-2} г/см²·сут и увеличивается по мере повышения pH по степенному закону (примерно пропорционально $10^{0,4\text{pH}}$).

Скорость растворения российских натрий-алюмофосфатных стекол при комнатных температурах по наиболее растворимым компонентам (типа Na) не превосходит 10^{-4} – 10^{-5} г/см²·сут, однако при нагревании в атмосфере водяного пара они быстро раскристаллизуются с возрастанием скорости выщелачивания до трех порядков величины и переходом многих примесных элементов типа радионуклидов в коллоидную форму [35–38]. В результате в характерных для ОВАО в ПГЗРО условиях

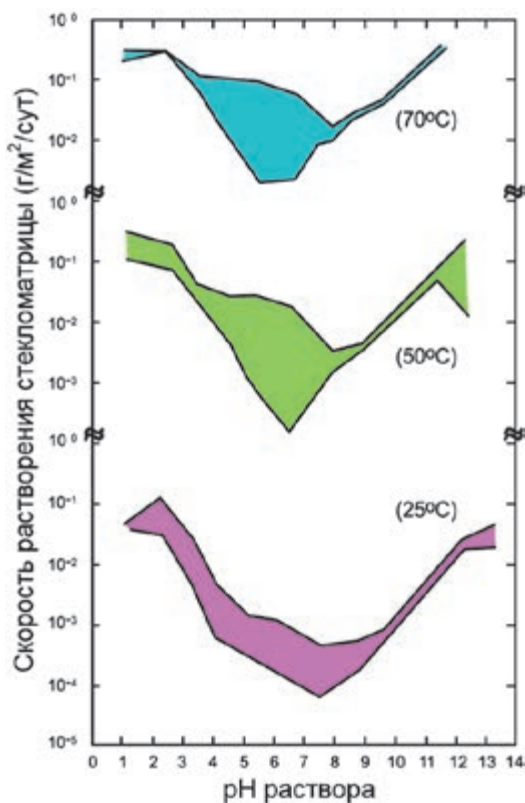


Рис. 5. Зависимость начальной скорости растворения пятикомпонентного боросиликатного стекла от температуры. Закрашенные области соответствуют диапазонам скоростей растворения, определяемым по одному из стеклообразователей [31]

натрий-алюмофосфатные стекла могут по стойкости уступать боросиликатным.

Эксперименты с растворами, чей солевой состав близок к реальным ПВ, показали снижение скорости растворимости стекла примерно на два порядка по сравнению с растворами с низким содержанием солей [39–42].

В расчетной модели [43] учет насыщения контактирующих со стеклом продуктов коррозии стального контейнера привел к оценкам количества «быстро растворяемого» стекла соответствующим лишь 1% его исходной активности за несколько десятков лет. Скорость последующего растворения стекла падала на 3 порядка.

Для стекол, находящихся в природной среде в течение тысяч лет, изучение профилей измененной поверхности показало, что реальная скорость растворения стекла всегда меньше, чем основанная на значениях параметров существующих моделей [44, 45].

Предварительные оценки показывают, что увеличение скорости растворения стекла не является определяющим фактором, и ее увеличение даже на три порядка оказывается не критическим для безопасности ПГЗРО при нормальном функционировании иных барьеров, однако данный вопрос требует более детальной проработки.

Выводы

Проведенный предварительный анализ имеющихся данных показывает, что в настоящее время отсутствуют аргументы, препятствующие применению цементных материалов для создания инженерного барьера для РАО класса 1 в ПГЗРО Нижнеканского массива. Преимуществами использования данного материала являются:

- создание эффективного химического барьера, снижающего предел растворимости большинства радионуклидов и обеспечивающего их повышенную сорбцию;
 - снижение на несколько порядков скорости коррозии стальных контейнеров;
 - высокая газопроницаемость, обеспечивающая предотвращение формирования избыточного давления внутри инженерных барьеров при анаэробной коррозии стали, сопровождающейся выделением водорода;
 - возможность «запечатывания» трещин вокруг выработок материалами типа кальцита;
 - однотипный барьер для РАО класса 2 (для которых цементный барьер является стандартным решением) и РАО класса 1. Негативное влияние цементной закладки РАО класса 2 на бентонит, в случае его использования в качестве инженерного барьера для РАО класса 1, может потребовать разнесения областей захоронения РАО классов 1 и 2;
 - легкость обращения с цементом, позволяющая создавать закладку в глубоких (несколько десятков метров) скважинах. Внесение в такие скважины бентонитового буфера надлежащего качества будет весьма проблематичным и перевешивают связанные с ним проблемы.
- Требуемая продолжительность кондиционирования подземных вод (свыше миллиона лет) решается за счет объема цементного барьера. Для условий ПГЗРО НКМ требуемый диаметр скважины захоронения составит около 2,5 м.
- Растрескивание цемента не является критичным в условиях слабопроницаемых кристаллических пород. Возможность выхода через трещины в закладке слабо сорбируемых радионуклидов ^{36}Cl и ^{129}I компенсируется малым количеством этих радионуклидов⁵ в ОВАО (данные нуклиды почти полностью улетучиваются при переработке ОЯТ).
- «Армирование» поверхности трещин и существование потоков ПВ по границе закладка–контейнер едва ли окажутся существенными, но требуют дополнительного изучения.

⁵ Данные радионуклиды определяют радиационную безопасность ПГЗРО в долгосрочной перспективе и содержатся в основном в РАО класса 2. Возможность выделения РАО с высоким содержанием этих радионуклидов из общего потока и их раздельное захоронение в настоящее время активно обсуждается. Однако этот вопрос выходит за рамки данной работы.

Концентрация коллоидов в растворе с большой концентрацией ионов, обеспечиваемой цементом, ожидается пренебрежимо малой.

Нагрев цемента до температур, максимально возможных в ПГЗРО, не влияет на обеспечение цементом химического контайнмента. Некоторое ухудшение физических характеристик цемента, типа повышения водопроницаемости, не является критичным.

Наиболее проблемным вопросом остается высокая скорость растворимости стекломатрицы ОВАО в щелочной среде. Однако следует отметить, что высокая скорость характерна лишь для ранних стадий растворения стекла и компенсируется содержанием солей в ПВ и насыщением продуктов коррозии стального контейнера ОВАО продуктами разложения стекла. Можно надеяться, что суммарный выход радионуклидов по данному механизму окажется незначительным (несколько процентов).

Литература

1. Материалы обоснования лицензии на размещение и сооружение не относящегося к ядерным установкам пункта хранения РАО, создаваемого в соответствии с проектной документацией на строительство объектов окончательной изоляции РАО (Красноярский край, Нижнеканский массив) в составе подземной исследовательской лаборатории (включая материалы оценки воздействия на окружающую среду). – ФГУП «Национальный оператор по обращению с радиоактивными отходами», Москва, 2015 г. – URL: <http://bezrao.ru/hearings/pzro-zheleznogorsk> (дата обращения 31.08.2017).
2. Poyet S. The Belgian Supercontainer Concept: Study of the Concrete Buffer Behaviour in Service Life // *Journal de Physique IV France*. – 2006. – V.136 – P. 167–175.
3. Hicks T. W., Baldwin T. D., Hill I. et al. The Feasibility of using Multipurpose Containers for the Geological Disposal of Spent Fuel and High Level Radioactive Waste. – Report №1107-1 of Galson Sciences Ltd. – 2011. – 59 p. – URL: <https://rwm.nda.gov.uk/publication/the-feasibility-of-using-multipurpose-containers-for-the-geological-disposal-of-spent-fuel-and-high-level-radioactive-waste-november-2011/> (дата обращения 15.07.2017).
4. Глоссарий МАГАТЭ по вопросам безопасности. Терминология, используемая в области ядерной безопасности и радиационной защиты. – Вена: Международное агентство по атомной энергии, 2007. – 295 с.
5. Revertegat E., Richet C., Gegout P. Effect of pH on the Durability of Cement // *Pastes, Cem. Concr. Res.* – 1992. – V.22 – P. 259–273.
6. The Scientific Foundations of Deep Geological Disposal. – United Kingdom Nirex Ltd, Report № N/016. – 2001. – 118 pp. – URL: <https://rwm.nda.gov.uk/publication/the-scientific-foundations-of-deep-geological-disposal-nirex-report-n016-2001/> (дата обращения 15.07.2017).
7. Hooper A. J., Francis A. J. Made to Measure Safety // *International Cement Review*. – 1994. – P. 59–62.
8. MacPhee D. E., Glasser F. P. Immobilization Science of Cement Systems // *MRS Bulletin*, March 1993. – P. 66.
9. Vines S., Beard R. An Overview of Radionuclide Behaviour Research for the UK Geological Disposal Programme // *Mineralogical Magazine*. – 2012. – Vol. 76. – № 8. – P. 3373–3380.
10. Geological Disposal. Behaviour of Radionuclides and Non-radiological Species in Groundwater Status Report. – NDA Report № DSSC/456/01. – 2016. – 131 p. – URL: <https://rwm.nda.gov.uk/publication/geological-disposal-behaviour-of-radionuclides-and-non-radiological-species-in-groundwater/> (дата обращения 15.07.2017).
11. McCall A., Holmes J., Harrison M. et al. Backfill – Development and Placement of an Engineered Barrier // *Proceedings of the Sixth International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation: ICEM '97*. – Singapore, October 12–16, 1997. – New York, N.Y.: American Society of Mechanical Engineers. – 1997. – P. 347–351.
12. MAQARIN natural analogue study: Phase III / Edited by J A T Smellie. – Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co Technical Report TR-98-04. – 1998. – 401 p.
13. Crossland I. G., Vines S. P. Why a Cementitious Repository? – United Kingdom Nirex Limited, Report N/034. – 2001. – 19 p. – URL: <https://rwm.nda.gov.uk/publication/why-a-cementitious-repository-nirex-report-n034-2001/> (дата обращения 15.07.2017).
14. Rochelle C. A., Purser G., Milodowski A. E. et al. Results of Laboratory Carbonation Experiments on Nirex Reference Vault Backfill Cement. – FORGE Report D3.19. – 2014. – 65 p. – URL: <https://www.bgs.ac.uk/forge/docs/reports/d3.19.pdf> (дата обращения 15.07.2017).
15. Озерский А. Ю. Особенности фильтрации подземных вод в массиве кристаллических пород в южной части Енисейского кряжа / Сб. «Комплексные проблемы гидрогеологии»: Тез. докл. науч. конф. – Санкт-Петербург, Россия, 23–25 октября 2013 г. – С.-Пб. : Санкт-Петербургский гос. ун-т, 2013. – С. 110–113.
16. Swift B. T., Bamforth P. B., Baston G. M. N. Cracking in a Cementitious Backfill and its Implications for Flow and Chemistry // *Mineralogical Magazine*. – 2012. – Vol. 76. – №8. – P. 3071–3082.
17. Brodersen K., Nilsson K. Pores and Cracks in Cemented Waste and Concrete // *Cement and Concrete Research*. – 1992. – V. 22. – P. 405–417.
18. Wang L., Jacques D., De Canniere P. Effects of an Alkaline Plume on the Boom Clay as a Potential Host Formation for Geological Disposal of Radioactive Waste. – External Report, SCK-CEN-ER-28, Mol, Belgium. – October 2007. –

- 193 p. — URL: http://publications.sckcen.be/dspace/bitstream/10038/1397/1/er_28final.pdf (дата обращения 11.07.2017).
19. Demonstration of Disposal Feasibility for Spent Fuel, Vitrified High-Level Waste and Long-Lived Intermediate-Level Waste. — Nationale Genossenschaft für die Lagerung Radioaktiver Abfälle (Nagra) Technical Report 02-05. — 2005. — 472 pp.— URL: [https://www.nagra.ch/data/documents/database/dokumente/\\$default/Default%20Folder/Publikationen/NTBs%202001-2010/e_ntb02-06.pdf](https://www.nagra.ch/data/documents/database/dokumente/$default/Default%20Folder/Publikationen/NTBs%202001-2010/e_ntb02-06.pdf) (дата обращения 11.07.2017).
20. Pflingsten W. Indications for Self-Sealing of a Cementitious Repository for Low and Intermediate-Level Waste.— Nagra Technical Report 01-05.— 2001.— 112 pp.— URL: http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/33/012/33012826.pdf (дата обращения 21.07.2017).
21. Cementitious Materials in Safety Cases for Geological Repositories for Radioactive Waste: Role, Evolution and Interactions. — Nuclear Energy Agency Organisation for Economic Co-operation and Development (NEA OECD), Brussels, Belgium.— November 2009. — 258 p. — URL: <https://www.oecd-nea.org/rwm/docs/2012/rwm-r2012-3.pdf> (дата обращения 21.07.2017).
22. Alexander W. R., Moeri A. Cementitious Colloids: Integration of Laboratory, Natural Analogue and in situ Field Data// *Geochimica et Cosmochimica Acta*. Conference: 13th Annual VM Goldschmidt Conference. — 2003. — Vol. 67. — P. 159—160.
23. Swanton S. W., Alexander W. R., Berry J. A. Review of the Behaviour of Colloids in the Near Field of a Cementitious Repository Report to NDA RWMD. — Technical & Assurance Services Serco Report SERCO/TAS/000475/01. — 2009. — 193 p. — URL: <http://www.natural-analogues.com/nawg-library/colloids-microbes> (дата обращения 25.07.2017).
24. Dickinson M., Holton D., Bamforth Ph., Cairns M. Development of Understanding of Disposability of High-Heat-Generating Wastes in the UK // *WMS Journal*. — 2015. — Vol. 1. — № 2. — 13 p. — URL: <http://www.wmsjournal.org/Volume1Issue2/15359.pdf> (дата обращения 25.07.2017).
25. Naus D. J. A Compilation of Elevated Temperature Concrete Material Property Data and Information for Use in Assessments of Nuclear Power Plant Reinforced Concrete Structures. — Oak Ridge National Laboratory, Report ORNL/TM-20009/175. — 2010. — 328 p. — URL: <https://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/nuregs/contract/cr7031/> (дата обращения 27.07.2017).
26. Jantzen C. M., Brown K. G., Pickett J. B. Durable Glass for Thousands of Years // *International Journal of Applied Glass Science*. — 2010. — Vol. 1. — P. 38—62.
27. Vienna J., Ryan J., Gin S. Current Understanding and Remaining Challenges in Modelling Long-Term Degradation of Borosilicate Nuclear Waste Glasses // *International Journal of Applied Glass Science*. — 2013. — № 4. — P. 283—294.
28. Knaus K. G., Bourcier W. L., McKeegan K. D. et al. Dissolution Kinetics of a Simple Analogue Nuclear Waste Glass as a Function of Time, pH and Temperature // *Materials Research Society Symposium Proceedings*. — 1989. — Vol. 176. — P. 371—381.— MRS Online Proceeding Library Archive 176. — doi: 10.1557/PROC-176-176.
29. Gin S., Jollivet P., Fournier M. et al. The Fate of Silicon During Glass Corrosion under Alkaline Conditions: A Mechanistic and Kinetic Study with the International Simple Glass // *Geochimica et Cosmochimica Acta*. — 2015. — Vol. 151. — P. 68—85.
30. Cassingham N., Corkhill C. L., Backhouse D. J., Hand R. J., Ryan J. V., Vienna J. D., Hyatt N. C. The Initial Dissolution Rates of Simulated UK Magnox-Th ORP Blend Nuclear Waste Glass as a Function of pH, Temperature and Waste Loading // *Mineralogical Magazine*. — 2015. — Vol. 79. — № 6. — P. 1529—1542.
31. Gin S., Frugier P. SON68 Glass Dissolution Kinetics at High Reaction Progress: Experimental Evidence of the Residual Rate // *Materials Research Society Symposium Proceedings*. — 2003. — Vol. 807. — P. 175—182.
32. Abratis P. K., Livens F. R., Monteith J. E. et al. // *Applied Geochemistry*. — 2000. — Vol. 15. — P. 1399—1416.
33. Fournier M., Frugier P., Gin S. Resumption of Alteration at High Temperature and pH: Rates Measurements and Comparison with Initial Rates // *Procedia Material Sciences*. — 2014. — Vol. 7C. — P. 202—208. — URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2211812814010694> (дата обращения 30.07.2017).
34. Fournier M., Frugier P., Gin S. Resumption of Alteration at High Temperature and pH: Rates Measurements and Comparison with Initial Rates // *Journal of Nuclear Materials*. — 2014. — Vol. 448. — P. 348—363.
35. Фосфатные стекла с радиоактивными отходами / Под ред. А. А. Вашмана, А. С. Полякова. — М.: ЦНИИАтоминформ, 1997. — 171 с.
36. Юдинцев С. В., Мальковский В. И., Мохов А. В. Гидротермальные изменения алюмофосфатной стекломатрицы с имитаторами высокоактивных отходов // *Доклады АН*. — 2016. — Т. 468. — № 2. — С. 196—200.
37. Юдинцев С. В., Первухина А. А., Мохов А. В. Влияние раскristализации фосфатного стекла на устойчивость матрицы отходов к выщелачиванию // *Доклады АН*. — 2017. — Т. 473. — № 4. — С. 477—483.
38. Лаверов Н. П., Величкин В. И., Омеляненко Б. И. и др. Изоляция отработавших ядерных материалов: геолого-геохимические основы. — М.: ИФЗРАН, 2008. — 280 с.
39. Ferrand K., Liu S., Lemmens K. The Interaction between Nuclear Waste Glass and Ordinary Portland Cement // *International Journal of Applied Glass Science*. — 2013. — Vol. 4 — № 4. — P. 328—340.
40. Mercado-Depierre S., Angeli F., Frizon F., Gin S. Antagonist Effects of Calcium on Borosilicate Glass Alteration // *Journal Nuclear Materials*. — 2013. — Vol. 441. — P. 402—410.

41. Harrison M. T. Review of Glass Dissolution Rates for use in the Disposal System Safety Case Performance Assessment Models. — National Nuclear Laboratory Report NNL (10) 10734 issue-3. — 2010. — 36 p. — URL: https://tools.nda.gov.uk/publication/nnl_10_10734-review-of-glass-dissolution-rates-final-for-bibliography/ (дата обращения 30.07.2017).
42. Valcke E., Smets S., Labat S., et al. CORALUS: An Integrated in situ Corrosion Test on α -active HLW Glass. — URL: http://cordis.europa.eu/pub/fp6- Euratom/docs/euradwaste04pro_posa-valcke_en.pdf. Дата обращения 20.12.2017.
43. Argile — Phenomenological Evolution of a Geological Repository. — Andra, Dossier 2005. — 2005. — 527 p. — URL: https://www.andra.fr/download/andra-international-en/document/editions/269_va.pdf (дата обращения 20.12.2017).
44. McGrail B. P., Bacon D. H., Meyer P. D., Ojovan M. I., Strachan D. M., Ojovan N. V., Startceva I. V. New Developments in Field Studies of Low Activity Waste Glass Corrosion and Containment Transport / in R. J. Finch and D. B. Bullen (eds.) // Scientific Basis of Nuclear Waste Management XXVI, Materials Research Society Symposium Proceedings. — 2002. — Vol. 757. — P. 83–95.
45. Verney-Carron A., Gin S., Frugier P., Libourel G. Long-Term Modelling of Alteration-Transport Coupling: Application to a Fractured Roman Glass // *Geochimica et Cosmochimica Acta*. — 2010. — Vol. 74. — №8. — P. 2291–2315.

Информация об авторах

Богатов Сергей Александрович, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН (115191, Россия, Москва, ул. Б. Тульская, 52), e-mail: sbg@ibrae.ac.ru.

Библиографическое описание статьи

Богатов С. А. Захоронение остеклованных ВАО в вертикальных скважинах с цементной закладкой — плюсы и минусы с точки зрения обеспечения долговременной безопасности ПЗРО // *Радиоактивные отходы*. — 2018. — № 1 (2). — С. 21–33.

HLW DISPOSAL OF IN VERTICAL DEPOSITION HOLES WITH CEMENT BACKFILL — PRO AND CONTRA WITH REGARD TO LONG TERM SAFETY OF GEOLOGICAL DISPOSAL FACILITY

Sergey A. Bogatov

Nuclear Safety Institute of RAS, Moscow, Russian Federation

Article received 18 January 2018

Usage of cement based material as an engineering barrier for HLW is considered. This option has a verity of advantages concerning: effective chemical barrier creation; iron containers corrosion reduction; high gas permeability; the same types of engineering barriers for HLW and ILW in repository; easy handling of cement. The main challenge in cement application is accelerated corrosion rate of vitrified waste matrix and relatively high permeability for low absorbing nuclides like ^{129}I and ^{36}Cl . However, advantages of cement barrier may override its shortcomings concerning Nigenekansky geological disposal facility where compact HLW emplacement is envisaged within deposition holes of 75 m depth with bentonite barrier and ^{129}I and ^{36}Cl content is insignificant.

Keywords: radioactive waste, geological disposal of, engineering barrier, cement based materials.

References

1. Materialy obosnovaniya litsenzii na razmeshcheniye i sooruzheniye ne odnosyashchegosya k yadernym ustanovkam punkta khraneniya RAO, sozdavayemogo v sootvetstvii s proyektnoy dokumentatsiyey na stroitelstvo obyektov okonchatelnoy izolyatsii RAO (Krasnoyarskiy kray, Nizhnekanskiy massiv) v sostave podzemnoy issledovatel'skoy laboratorii (vkluychaya materialy otsenki vozdeystviya na okruzhayushchuyu sredyu). FGUP «Natsionalnyy operator po obrashcheniyu s radioaktivnymi otkhodami», Moskva, 2015 g. URL: <http://bezrao.ru/hearings/pzro-zheleznogorsk> (data obrashcheniya 31.08.2017). (In Russian).
2. Poyet S. The Belgian supercontainer concept: Study of the concrete buffer behaviour in service life. *Journal de Physique IV France*, 2006, vol. 136, pp 167–175.
3. Hicks T. W., Baldwin T. D., Hill I. et al. The Feasibility of using Multipurpose Containers for the Geological Disposal of Spent Fuel and High Level Radioactive Waste. Report №1107-1 of Galson Sciences Ltd. 2011, 59 p. URL: <https://rwm.nda.gov.uk/publication/the-feasibility-of-using-multi-purpose-containers-for-the-geological-disposal-of-spent-fuel->

- and-high-level-radioactive-waste-november-2011/ (data obrashcheniya 15.07.2017).
4. Glossariy MAGATE povoprosam bezopasnosti. Terminologiya. ispolzuyemaya v oblasti yadernoy bezopasnosti i radiatsionnoy zashchity. Vena: Mezhdunarodnoye agentstvo po atomnoy energii, 2007, 295 c.
 5. *Revertegat E., Richet C. and Gegout P.* Effect of pH on the Durability of Cement. Pastes, Cem. Concr. Res, 1992, vol. 22, pp 259–273.
 6. The Scientific Foundations of Deep Geological Disposal. United Kingdom Nirex Limited. Report No: N/016. 2001, 118 p. URL: <https://rwm.nda.gov.uk/publication/the-scientific-foundations-of-deep-geological-disposal-nirex-report-n016-2001/> (data obrashcheniya 15.07.2017).
 7. *Hooper A. J. and Francis A. J.* Made to Measure Safety. International Cement Review, 1994, pp 59–62.
 8. *MacPhee D.E. and Glasser F.P.* Immobilisation Science of Cement Systems, MRS Bulletin, March 1993, p. 66.
 9. *Vines S. and Beard R.* An overview of radionuclide behaviour research for the UK geological disposal programme. Mineralogical Magazine, 2012, vol. 76, no 8, pp 3373–3380.
 10. Geological Disposal. Behaviour of Radionuclides and Non-radiological Species in Groundwater Status Report. NDA Report no. DSSC/456/01. 2016. 131 pp. URL: <https://rwm.nda.gov.uk/publication/geological-disposal-behaviour-of-radionuclides-and-non-radiological-species-in-groundwater/> (data obrashcheniya 15.07.2017).
 11. *McCall A., Holmes J., Harrison M. et al.* Backfill - Development and Placement of an Engineered Barrier. Proceedings of the Sixth International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation: ICEM '97. Singapore, October 12–16, 1997. New York, N.Y.: American Society of Mechanical Engineers, 1997, pp 347–351.
 12. MAQARIN natural analogue study: Phase III. Edited by J A T Smellie, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co Technical Report TR-98-04, 1998, 401 pp.
 13. *Crossland I. G. and Vines S. P.* Why a cementitious repository? United Kingdom Nirex Limited 2001, Report N/034, 2001, 19 pp. URL: <https://rwm.nda.gov.uk/publication/why-a-cementitious-repository-nirex-report-n034-2001/> (data obrashcheniya 15.07.2017).
 14. *Rochelle C.A., Purser G., Milodowski A.E. et al.* Results of laboratory carbonation experiments on Nirex Reference Vault Backfill cement. FORGE Report D3.19. 2014. 65 pp. URL: <https://www.bgs.ac.uk/forge/docs/reports/d3.19.pdf> (data obrashcheniya 15.07.2017).
 15. *Ozerskiy A. Yu.* Osobennosti filtratsii podzemnykh vod v massive kristallicheskiykh porod v yuzhnoy chasti Eniseyskogo kryazha / Sb. «Kompleksnyye problemy gidrogeologii»: Tez. dokl. nauch. konf., Sankt-Peterburg, Rossiya, 23–25 oktyabrya 2013 g. — S.-Pb. :Sankt-Peterburgskiy gos. un-t, 2013, S. 110–113. (In Russian).
 16. *Swift B. T., Bamforth P.B., Baston G.M.N.* Cracking in a cementitious backfill and its implications for flow and chemistry. Mineralogical Magazine, 2012, vol. 76, no 8, pp 3071–3082.
 17. *Brodersen K. and Nilsson K.* Pores and cracks in cemented waste and concrete. Cement and Concrete Research. Cement and Concrete Research, 1992, vol. 22, pp 405–417.
 18. *Wang L., Jacques D. and De Canniere P.* Effects of an alkaline plume on the Boom Clay as a potential host formation for geological disposal of radioactive waste, External Report, SCK-CEN-ER-28, Mol, Belgium. October 2007, 193 pp. URL: http://publications.sckcen.be/dspace/bitstream/10038/1397/1/er_28final.pdf (data obrashcheniya 11.07.2017).
 19. Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste. Nationale Genossenschaft fur die Lagerung radioaktiver Abfalle (Nagra) Technical Report 02-05. 2005, 472 pp. URL: [https://www.nagra.ch/data/documents/database/dokumente/\\$default/Default%20Folder/Publikationen/NTBs%202001-2010/e_ntb02-06.pdf](https://www.nagra.ch/data/documents/database/dokumente/$default/Default%20Folder/Publikationen/NTBs%202001-2010/e_ntb02-06.pdf) (data obrashcheniya 11.07.2017).
 20. *Pfingsten W.* Indications for self-sealing of a cementitious repository for low and intermediate-level waste. Nagra Technical Report 01-05. 2001, 112 pp. URL: http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/33/012/33012826.pdf (data obrashcheniya 21.07.2017).
 21. Cementitious materials in safety cases for geological repositories for radioactive waste: Role, evolution and interactions. Nuclear Energy Agency Organization for Economic Co-operation and Development (NEA OECD), Brussels, Belgium. November 2009, 258 pp. URL: <https://www.oecd-nea.org/rwm/docs/2012/rwm-r2012-3.pdf> (data obrashcheniya 21.07.2017).
 22. *Alexander W. R. and Moeri A.* Cementitious colloids: integration of laboratory, natural analogue and in situ field data. Geochimica et Cosmochimica Acta. Conference: 13th Annual VM Goldschmidt Conference, 2003, vol. 67, pp 159–160.
 23. *Swanton S. W., Alexander W. R. and Berry J. A.* Review of the behaviour of colloids in the near field of a cementitious repository Report to NDA RWMD. Technical & Assurance Services Serco Report SERCO/TAS/000475/01. 2009, 193 pp. URL: <http://www.natural-analogues.com/nawg-library/colloids-microbes> (data obrashcheniya 25.07.2017).
 24. *Dickinson M., Holton D., Bamforth Ph. and Cairns M.* Development of Understanding of Disposability of High-Heat-Generating Wastes in the UK. WMS Journal, 2015, vol. 1, no. 2, 13 pp. URL: <http://www.wmsjournal.org/Volume1Issue2/15359.pdf> (data obrashcheniya 25.07.2017).
 25. *Naus D. J.* A Compilation of Elevated Temperature Concrete Material Property Data and Information for Use in Assessments of Nuclear Power Plant Reinforced Concrete Structures, Oak Ridge National Laboratory, Report ORNL/TM-20009/175. 2010, 328 pp. URL: <https://www.nrc.gov/reading-rm/>

- doc-collections/nuregs/contract/cr7031/ (data obrashcheniya 27.07.2017).
26. Jantzen C. M., Brown K. G., Pickett J. B. Durable Glass for Thousands of Years. *International Journal of Applied Glass Science*, 2010, vol. 1, pp 38–62.
27. Vienna J., Ryan J., Gin S. Current understanding and remaining challenges in modelling long-term degradation of borosilicate nuclear waste glasses. *International Journal of Applied Glass Science*, 2013, no 4, pp 283–294.
28. Knaus K. G., Bourcier W. L., McKeegan K. D., Merzbacher C. I., Nguyen S. N., Ryerson F. J., Smith D. K., Weed H. C. and Newton L. Dissolution Kinetics of a Simple Analogue Nuclear Waste Glass as a Function of Time, pH and Temperature. *Materials Research Society Symposium Proceedings*, 1989, vol. 176, pp 371–381. MRS Online Proceeding Library Archive 176, doi: 10.1557/PROC-176-176.
29. Gin S., Jollivet P., Fournier M., Berthon C., Wang Z., Mitroshkov A., Zua Z., Ryan J. The fate of silicon during glass corrosion under alkaline conditions: A mechanistic and kinetic study with the International Simple Glass. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2015, vol. 151, pp 68–85.
30. Cassingham N., Corkhill C. L., Backhouse D. J., Hand R. J., Ryan J. V., Vienna J. D., Hyatt N. C. The initial dissolution rates of simulated UK Magnox-ThORP blend nuclear waste glass as a function of pH, temperature and waste loading. *Mineralogical magazine*, 2015, vol. 79, no 6, pp 1529–1542.
31. Gin S., Frugier P. SON68 glass dissolution kinetics at high reaction progress: experimental evidence of the residual rate. *Materials Research Society Symposium Proceedings*, 2003, vol. 807, pp 175–182.
32. Abraitis P. K., Livens F.R., Monteith J. E. et al. *Applied Geochemistry*, 2000, vol. 15, pp 1399–1416.
33. Fournier M., Frugier P., Gin S. Resumption of alteration at high temperature and pH: rates measurements and comparison with initial rates. *Procedia Material Sciences*, 2014, vol. 7C, pp 202–208. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2211812814010694> (data obrashcheniya 30.07.2017).
34. Fournier M., Frugier P., Gin S. Resumption of alteration at high temperature and pH: rates measurements and comparison with initial rates. *Journal of Nuclear Materials*, 2014, vol. 448, pp 348–363.
35. Fosfatnyye stekla s radioaktivnymi otkhodami. Pod red. A. A. Vashmana, A. S. Polyakova. M.: TsNIIatominform, 1997, 171 s. (In Russia).
36. Yuditsev S. V., Malkovskiy V. I., Mokhov A. V. Gidrotermalnyye izmeneniya alyumofosfatnoy steklomatrity s imitatorami vysokoaktivnykh otkhodov. *Doklady AN*, 2016, t. 468, no 2, S. 196–200. (In Russia).
37. Yuditsev S. V., Pervukhina A. A., Mokhov A. V. Vliyaniye raskristallizatsii fosfatnogo stekla na us-toychivost matrity otkhodov k vyshchelachivaniyu. *Doklady AN*, 2017, t. 473, no 4, S. 477–483. (In Russia).
38. Laverov N. P., Velichkin V. I., Omelianenko B. I. i dr. *Izolyatsiya otrabotavshikh yadernykh materialov: geologo-geokhimicheskiye osnovy*. M.: IFZRRAN, 2008, 280 s. (In Russia).
39. Ferrand K., Liu S., Lemmens K. The interaction between nuclear waste glass and ordinary portland cement. *International Journal of Applied Glass Science*, 2013, vol. 4, no 4, pp 328–340.
40. Mercado-Depierre S., Angeli F., Frizon F., Gin S. Antagonist effects of calcium on borosilicate glass alteration. *Journal Nuclear Materials*, 2013, vol. 441, pp 402–410.
41. Harrison M.T. Review of Glass Dissolution Rates for use in the Disposal System Safety Case Performance Assessment Models. *National Nuclear Laboratory Report NNL (10) 10734 issue-3*. 2010, 36 pp. URL: https://tools.nda.gov.uk/publication/nnl_10_10734-review-of-glass-dissolution-rates-final-for-bibliography/ (data obrashcheniya 30.07.2017).
42. Valcke E., Smets S., Labat S., Lemmens K., Van Issegheem P., Thomas P., Godon N., Jollivet P., Parisot G., Mestre J.-P., Jockwer N., Wiczorek K., Pozo C. CORALUS: An integrated in situ corrosion test on α -active HLW glass. URL: http://cordis.europa.eu/pub/fp6- Euratom/docs/euradwaste04pro_posa-valcke_en.pdf (data obrashcheniya 20.12.2017).
43. Argile – Phenomenological evolution of a geological repository. Andra, Dossier 2005. 2005, 527 pp. URL: <https://www.andra.fr/download/andra-international-en/document/editions/269va.pdf> (data obrashcheniya 20.12.2017).
44. McGrail B. P., Bacon D. H., Meyer P. D., Ojovan M. I., Strachan D. M., Ojovan N. V., Startceva I. V. New developments in field studies of low activity waste glass corrosion and containment transport. In R. J. Finch and D. B. Bullen (eds.), *Scientific Basis of Nuclear Waste Management XXVI*, *Materials Research Society Symposium Proceedings*, 2002, vol. 757, pp 83–95.
45. Verney-Carron A., Gin S., Frugier P., Libourel G. Long-term modelling of alteration-transport coupling: application to a fractured Roman glass. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2010, vol. 74, no 8, pp 2291–2315.

Information about the authors

Bogatov Sergey Alexandrovich, PhD, Nuclear Safety Institute of RAS, (52, B. Tulsкая st., Moscow, Russia, 115191), e-mail: sbg@ibrae.ac.ru.

Bibliographic description

Bogatov S. A. HLW Disposal of in Verticale Deposition Holes with Cement Backfill — Pro and Contra with Regard to Long Term Safety of Geological Disposal Facility. *Radioactive Waste*, 2018, no 1 (2), pp. 21–33. (In Russian).