

## ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ОСТЕКЛОВАННЫХ МОДЕЛЬНЫХ ВАО ОДЦ ГХК

А. С. Алой, А. В. Трофименко, Т. И. Кольцова, М. В. Никандрова  
АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина», Санкт-Петербург

Статья поступила в редакцию 25 октября 2018 г.

*В статье приводятся результаты экспериментальной оценки ряда показателей качества боросиликатной стекломатрицы, состав которой разработан для кондиционирования жидких высокоактивных отходов от переработки ОЯТ ВВЭР-1000 по базовой технологии ОДЦ ГХК, г. Железногорск. Проведение таких исследований продиктовано необходимостью дополнения нормативной базы по обращению с РАО характеристиками новой стеклоподобной матрицы, альтернативной алюмофосфатному стеклу.*

**Ключевые слова:** боросиликатное стекло, показатели качества, ВАО, механические свойства, кристаллизация, выщелачиваемость.

### Введение

Основной задачей при обращении с образующимися радиоактивными отходами (РАО) является обеспечение безопасности их для окружающей среды за счет соответствия физико-химических характеристик требованиям создаваемой в Российской Федерации Единой государственной системы обращения с РАО (ЕГС РАО) [1].

Для выработки общих требований в рамках ЕГС РАО, обеспечивающих безопасные и экономически эффективные механизмы ее функционирования, разрабатываются и актуализируются нормативные и правовые документы с учетом развития и внедрения новых технологий и продуктов переработки ОЯТ и РАО.

В соответствии со статьей 26 п. 2 Федерального закона № 190 «Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты Российской Федерации» (2011 г.) все вновь образующиеся жидкие РАО признаются удаляемыми. Они подлежат захоронению в специальных пунктах,

с предварительным переводом их в отвержденную форму в соответствии с критериями приемлемости.

Критерии приемлемости по отношению к наиболее опасным формам отвержденных ВАО определяются допустимым значением химической устойчивости и удельным тепловыделением, условиями теплоотвода ТРО, а также характеристиками хранилища и вмещающих пород предполагаемого пункта окончательной их изоляции [2].

Оценки приемлемости базируются на основных показателях качества отвержденных жидких РАО, которые в отношении стеклоподобных матриц приведены в проекте новой редакции федеральных норм и правил в области использования атомной энергии «Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требование безопасности», утвержденным приказом Федеральной службы по экологическому, технологическому и атомному надзору (НП-019-2015).

В первой редакции НП-019-2000 были приведены допустимые значения ряда показателей качества только для алюмофосфатных стекол. Однако с учетом развития новых технологий остекловывания жидких ВАО возникла необходимость обоснования аналогичных требований к боросиликатным матрицам, которые за рубежом имеют доминирующее значение и по отношению к которым накоплен большой объем научно-технической информации [3, 4].

Целью данной экспериментальной работы являлось проведение серии испытаний физико-химических свойств образцов модельных боросиликатных стекол, разработанных для кондиционирования жидких ВАО, образующихся по базовой технологии переработки ОЯТ ВВЭР-1000 на ОДЦ ГХК полного развития. Результаты, полученные в ходе этих испытаний, а также данные из зарубежных источников могут быть использованы для обоснования определенного набора основных показателей качества боросиликатного стекла при разработке новой редакции нормативных документов.

### Синтез боросиликатных стекол, содержащих модельные ВАО ОДЦ ГХК

Для определения основных показателей качества боросиликатного стеклоподобного компаунда были синтезированы стекла с содержанием оксидов модельных ВАО 15 и 20 масс. % (БСС-15 и БСС-20) (табл. 1). Такое высокое включение отходов позволяет по расчетам получить примерно 100–110 дм<sup>3</sup> высокоактивного стекла с 1 т переработанного ОЯТ. В соответствии с исходными данными на базовую технологию переработки ОЯТ модельные ВАО содержали также продукты коррозии нержавеющей стали (Fe, Cr, Ni) и натрий от промывки и регенерации экстрагента.

Варка проводилась в муфельной печи при температуре (1150±20) °С с выдержкой расплава в течение 2 ч.

Таблица 1. Расчетные составы модельных БСС-15 и БСС-20, масс. %

Оксиды	БСС-15	БСС-20
SiO <sub>2</sub>	48,45	45,60
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15,30	14,40
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2,55	2,40
Na <sub>2</sub> O	13,44	13,35
CaO	2,55	2,40
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,19	0,25
NiO	0,09	0,12
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,54	0,72
Li <sub>2</sub> O	2,98	2,80
MnO <sub>2</sub>	2,55	2,40
Оксиды ПД*	11,38	15,14
SiO <sub>2</sub> + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	66,30	62,40

\*ПД – продукты деления

Контроль однородности и соответствия составов БСС расчетным величинам осуществлялся следующими методами:

- рентгенофазового анализа (РФА) (дифрактометр ДРОН-УМ1 с использованием CuKα-излучения),
- сканирующей электронной микроскопии (СЭМ),
- рентгеноспектрального микроанализа (РСМА) (электронный микроскоп CAMSCAN-4DV, оборудованный системой LINKAN-10000). Обработка данных микроанализа проводилась с использованием программного обеспечения (ZAF4/FLS),
- определение микротвердости.

### Однородность

Предварительная оценка качества синтезированных стекол проводилась методом РФА согласно ГОСТ Р 50926-96 [5]. Данные РФА позволили заключить, что все БСС рентгеноаморфны и не содержат дисперсных фаз. Более детальное изучение однородности проводилось путем многократного определения в стеклах содержания основных компонентов: Na, Al, Si, Ca, Mn, Sr, Cs, La, Zr методом РСМА. Характеристика однородности рассчитывалась по формуле:

$$K = \frac{S}{\bar{x}} \cdot 100 \%, \quad (1)$$

где  $K$  — коэффициент вариации, отражающий степень отклонения содержания рассматриваемого компонента стекла от среднего значения его содержания в стекле, %;  $S$  — среднеквадратичное отклонение, которое дает абсолютную оценку меры разбросанности значений;  $\bar{x}$  — среднее содержание рассматриваемого компонента в стекле.

Полученные данные приведены в табл. 2.

Таблица 2. Характеристика однородности исследуемых стекол

Оксид	Коэффициент вариации, %	
	БСС-15	БСС-20
Na <sub>2</sub> O	2,65	2,32
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7,44	9,13
SiO <sub>2</sub>	1,72	2,42
CaO	6,25	5,10
MnO <sub>2</sub>	7,94	8,30
SrO	10,00	9,92
Cs <sub>2</sub> O	9,96	9,96
La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	8,26	8,04
ZrO <sub>2</sub>	9,42	8,61

Величина однородности состава стекол по макрокомпонентам находится в пределах 10%, включая основные теплогенерирующие нуклиды — Cs и Sr, что характеризует гомогенное распределение компонентов отходов в стекломатрице.

Дополнительно оценка качества БСС-15 и БСС-20 была определена по микротвердости их

аншлифов, которая определялась стандартным методом измерения диагонали остаточных отпечатков на поверхности стекла после внедрения в нее индентора в виде пирамиды Виккерса с углом при вершине  $136^\circ$ , которое производилось на микротвердомере ПМТ-3 (нагрузка — 0,98 Н, время нагружения — 10 с) [6]. Величина микротвердости вычислялась по формуле:

$$H = \frac{1854P}{d^2}, \quad (2)$$

где  $H$  — твердость, ГПа;  $P$  — нагрузка на индентор, Н;  $d$  — диагональ отпечатка, мкм.

В результате экспериментов были получены следующие значения микротвердости (45 измерений):  $(7,1 \pm 0,3)$  ГПа для стекла БСС-15 и  $(7,6 \pm 0,5)$  ГПа для стекла БСС-20. Незначительный разброс значений микротвердости БСС свидетельствует об однородности исследуемых стекол как по составу, так и по структуре.

### Механические свойства

Поскольку стекло представляет собой хрупкий материал, стойкость его к разрушению под действием механических факторов является важным критерием оценки физической устойчивости отвержденной формы отходов. В блоке радиоактивного стекла внутренние напряжения обусловлены наличием температурного градиента между его центром и поверхностью. Данный градиент уменьшается со временем, но сохраняется на протяжении сотен лет, вплоть до распада основных теплогенерирующих радионуклидов. Внутренние термические напряжения вызывают образование трещин и в конечном счете могут привести к самопроизвольному разрушению стеклоблока. Растрескивание увеличивает площадь поверхности стекла, вследствие чего возрастает вероятность увеличения степени выщелачивания и поступления

радионуклидов в окружающую среду. Механические силы (давление, изгибание, кручение и т. п.), действующие на контейнер со стеклом (например, в геологической формации), могут не только разорвать его, но и разрушить содержащее на мелкие частицы.

В связи с этим механические свойства остеклованных РАО, несомненно, требуют количественной регламентации, и их значения должны соответствовать критериям приемлемости для хранения и захоронения.

Для пробоподготовки образцов, в соответствии с требованиями инструментальных методов испытаний, БСС-15 и БСС-20 переплавились в платиновой чашке при температуре  $1150^\circ\text{C}$  и выливались в предварительно нагретые формы из нержавеющей стали. Формы с образцами переносились в печь, где выдерживались при  $420^\circ\text{C}$  в течение 4 ч для отжига с последующим охлаждением вместе с печью до комнатной температуры.

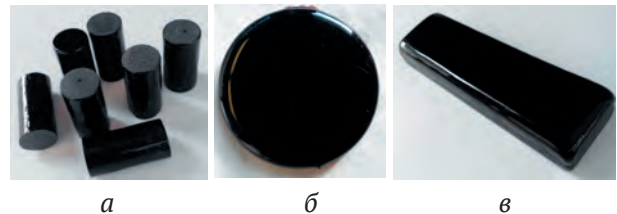


Рис. 1. Фотографии образцов стекол для различных методов испытаний: а — прочность на сжатие и модуль Юнга; б — прочность на изгиб и термостойкость; в — коэффициент линейного термического расширения

На рис. 1 приведены фотографии образцов стекла для проведения испытаний, перечень которых приведен в табл. 3.

На рис. 2 приведены фотографии оборудования, на котором проводилось определение ряда перечисленных в табл. 3 показателей качества боросиликатных стекол.

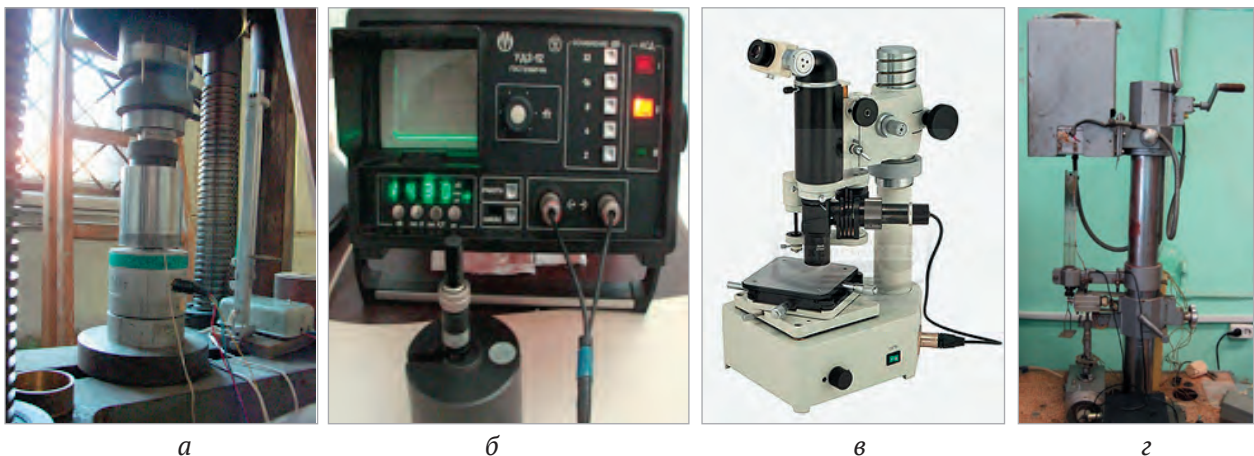


Рис. 2. Фотографии оборудования, на которых проводилось определение основных показателей качества боросиликатных стекол: а — пресс ГМС-50, б — дефектоскоп УД2-12, в — микротвердомер ПМТ-3, г — кварцевый дилатометр-вискозиметр системы Клюева — Черноусова

Таблица 3. Определяемые характеристики, материалы и методы испытаний

Определяемая характеристика	Методика испытания	Используемое оборудование	Размеры образца
Микротвердость	ГОСТ 9450-76 [6]	микротвердомер ПМТ-3 (рис. 2в)	пластины диаметром 50 мм и высотой 8 мм
Плотность	ГОСТ 2409-95 (ИСО 5017-88) [7]	лабораторные весы ОНАУСЕ 12140	плоскопараллельные цилиндрические образцы диаметром 10 мм, высотой 25 мм
Модуль Юнга	ГОСТ Р 53568-2009 [8]	дефектоскоп УД2-12 (рис. 2б)	цилиндрические образцы диаметром 10 мм и высотой 25 мм
Прочность на сжатие	ГОСТ Р 50926-96 [5]	пресс ГМС-50 (рис. 2а)	цилиндрические образцы диаметром 10 мм и высотой 25 мм
Прочность на изгиб	ГОСТ 32281.1-2013 (EN 1288-1:2000) [9]	пресс ГМС-50, динамометр ДС-1	пластины диаметром 70 мм и высотой 4 мм
Термостойкость	ГОСТ 25535-2013 по пункту 8.4, Б [10]	SNOL 24-200	круглые пластины диаметром 70 мм и толщиной 4 мм
Коэффициент линейного термического расширения	дилатометрия	кварцевый дилатометр-вискозиметр системы Ключева – Черноусова (рис. 2г)	балки размером 12 × 2 × 1 см

### Плотность

Плотность стекол ( $\rho$ ) определялась методом гидростатического взвешивания [7]. Расчет плотности проводился по формуле:

$$\rho = \frac{m_0}{(m_1 - m_2)}, \quad (3)$$

где  $m_0$  — масса образца,  $m_1$  — вес образца с подвесом,  $m_2$  — вес образца в воде.

По результатам испытаний было установлено, что плотность боросиликатного стекла БСС-15 составляет 2,68 г/см<sup>3</sup>, а БСС-20 — 2,76 г/см<sup>3</sup>.

### Упругие характеристики (модуль Юнга)

Определение упругих характеристик исследуемых стекол проводилось акустическим (ультразвуковым) методом с помощью дефектоскопа УД 2-12 [8]. Полученные в ходе испытаний данные о скорости распространения продольных ( $C_p$ , км/с) и поперечных ( $C_t$ , м/с) акустических волн в исследуемых образцах позволили рассчитать величины следующих упругих характеристик (табл. 4):

Модуль продольной упругости

$$C_{ll} = \rho \cdot C_l^2. \quad (4)$$

Модуль сдвига

$$G = \rho \cdot C_t^2. \quad (5)$$

Коэффициент Пуассона ( $\mu$ )

$$\mu = \frac{(C_l/C_t)^2 - 2}{2[(C_l/C_t)^2 - 1]}. \quad (6)$$

Модуль Юнга

$$E = C_{ll} \cdot \frac{(1 + \mu) \cdot (1 - 2\mu)}{(1 - \mu)}. \quad (7)$$

Модуль объемного сжатия

$$K = C_{ll} \cdot \frac{1 + \mu}{3(1 - \mu)}. \quad (8)$$

Таблица 4. Упругие характеристики исследуемых стекол

Параметр	БСС-15	БСС-20
Модуль продольной упругости, ГПа	98 ± 3	100 ± 3
Модуль сдвига, ГПа	32 ± 3	33 ± 3
Коэффициент Пуассона	0,26 ± 0,01	0,25 ± 0,01
Модуль Юнга, ГПа	80 ± 3	83 ± 3
Модуль объемного сжатия, ГПа	56 ± 3	56 ± 3

Значение модуля Юнга для БСС-15 и БСС-20 почти в два раза превышают нормированные параметры для алюмофосфатных стекол по НП-019-2000.

### Прочностные характеристики

Определение прочности исследуемых стекол на сжатие проводилось с использованием пресса ГМС-50 [5]. При определении прочности исследуемых образцов стекла на сжатие измерение сдавливающего усилия проводилось двумя способами: а) грубо — по шкале пресса, б) точно — с помощью тензодинамометра с точностью ± 1%. Время нагружения — 20 с. Расчет прочности на сжатие проводился по формуле:

$$\sigma_f = \frac{P_f}{S}, \quad (9)$$

где  $\sigma_f$  — прочность на сжатие, ГПа;  $P_f$  — разрушающая нагрузка, кН;  $S$  — площадь поперечного сечения образца, мм<sup>2</sup>.

По результатам испытаний были получены следующие величины прочности на сжатие исследуемых образцов стекла: (0,8 ± 0,2) ГПа для стекла БСС-15 и (1,4 ± 0,5) ГПа для стекла БСС-20.

При определении прочности исследуемых образцов стекла на изгиб измерение силы осуществлялось с помощью образцового динамометра ДС-1 [9]. Точность измерения — ± 1%. Время нагружения — 20 с.

Расчет прочности на изгиб проводился по формуле:

$$\sigma = \frac{3P_f}{2\pi h^2} \cdot \left[ (1+\mu) \ln \frac{a}{r_0} + (1-\mu) \cdot \frac{a^2 - r_0^2}{2b^2} \right], \quad (10)$$

где  $P_f$  — разрушающая сила, Н;  $h$  — толщина пластины стекла, мм;  $a$  — радиус нижней опоры, мм;  $r_0$  — радиус нагружающего кольца, мм;  $b$  — радиус пластины стекла, мм.

По результатам испытаний было установлено, что величины прочности на изгиб исследуемых образцов стекла БСС-15 и БСС-20 одинаковы и составляют  $(0,16 \pm 0,07)$  ГПа.

### Теплофизические свойства

Теплофизические характеристики стекол имеют важное значение для оценки безопасности перемещения бидонов и последующего длительного хранения при повышенных температурах с гарантией отсутствия нежелательных трансформаций в стекле, способных резко увеличить выщелачиваемость его компонентов.

### Термостойкость

Под термостойкостью понимается способность стекла и изделий из него выдерживать без разрушения резкие перепады температур.

Данный параметр отсутствует в перечне показателей качества стекла с РАО, однако в определенных ситуациях, особенно при транспортировке, его величину можно также принимать во внимание.

Метод испытания заключался в нагревании образцов стекол до определенной температуры в печи SNOOL 24-200 с выдержкой при этой температуре в течение 20 мин и последующим их резким охлаждением в воде с температурой  $(19 \pm 1)^\circ\text{C}$  в течение 40 секунд. После этого образцы вынимались из воды, сушились и осматривались визуально на предмет разрушений. Если разрушений не было замечено, образцы снова помещались в печь, в которой температура повышалась на  $10^\circ\text{C}$ . Эти операции повторялись до разрушения образцов стекла [10]. Разница температур ( $T = T_{\text{зоп.}} - T_{\text{хол.}}$ ), при которой произошло разрушение образца, является значением термостойкости. Согласно результатам проведенных испытаний величины термостойкости образцов БСС-15 и БСС-20 равны и составляют  $(151 \pm 1)^\circ\text{C}$ , что является хорошим показателем в стекольной практике.

### Коэффициент линейного термического расширения

Определение коэффициента линейного термического расширения (КЛТР) проводилось дилатометрическим методом на кварцевом дилатометре-вискозиметре системы В. П. Клюева — М. А. Черноусова.

Величина КЛТР  $\alpha_g (^\circ\text{C}^{-1})$  рассчитывалась по формуле:

$$\alpha_g = \frac{\Delta L}{L_0 \Delta T}, \quad (11)$$

где  $\Delta L$  — изменение длины испытуемого образца стекла (мкм) при нагревании в диапазоне температур  $\Delta T (^\circ\text{C})$ ,  $L_0$  — начальная длина образца (мкм).

Диапазон температур  $\Delta T$  выбирался по дилатометрической кривой в области ниже температуры стеклования  $T_g$ , при котором вязкость стекла становится равной  $10^{13}$  пуаз, и составлял  $300\text{—}450^\circ\text{C}$ . Измерения проводились в циклах нагревание — охлаждение со скоростью изменения температуры  $3^\circ\text{C}/\text{мин}$ .

Рассчитанные значения КЛТР составили  $(10,5 \pm 0,3) \cdot 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$  для БСС-15 и  $(11,8 \pm 0,1) \cdot 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$  для БСС-20.

### Термическая устойчивость

Теоретически стекло способно под воздействием температуры переходить в термодинамически более стабильное состояние за счет образования кристаллических фаз. Но такой процесс расстекловывания протекает чрезвычайно медленно или вообще не реализуется, если стекло находится при температурах ниже значений, характерных для такой трансформации [3]. Согласно бенчмарку, применяемому во Франции для длительного хранения евробидонов с остеклованными ВАО, температура в центральной зоне стеклоблока с БСС должна быть на  $100^\circ\text{C}$  ниже температуры расстекловывания за счет интенсивного охлаждения стенок бидона [11].

В нашем случае термическая устойчивость к расстекловыванию изучалась на примере образца БСС-20.

Дифференциально-термический анализ (ДТА) образца БСС-20 проводился на дериватографе Evo-1750 (фирмы Setaram, Франция) в атмосфере аргона со скоростью нагрева и охлаждения  $10^\circ\text{C}/\text{мин}$ . При нагревании максимальный пик кристаллизации БСС-20 соответствует температуре  $618^\circ\text{C}$ , а при охлаждении  $632^\circ\text{C}$  (рис. 3).

Усреднение этих значений с учетом петли гистерезиса дает значение  $(625 \pm 10)^\circ\text{C}$ .

Уменьшение данного значения на  $100^\circ\text{C}$ , согласно [11], позволяет предположить, что при температуре  $(525 \pm 10)^\circ\text{C}$  процесс кристаллизации БСС не будет протекать со сколько-нибудь заметной скоростью в течение весьма длительного времени.

При организации длительного хранения бидонов с высокоактивным БСС (рис. 4) должны соблюдаться условия, при которых эта характеристическая температура в центре бидона не будет превышена. Такие условия обеспечиваются путем интенсивного воздушного охлаждения стенок бидона, размещенного в стояках хранилища.

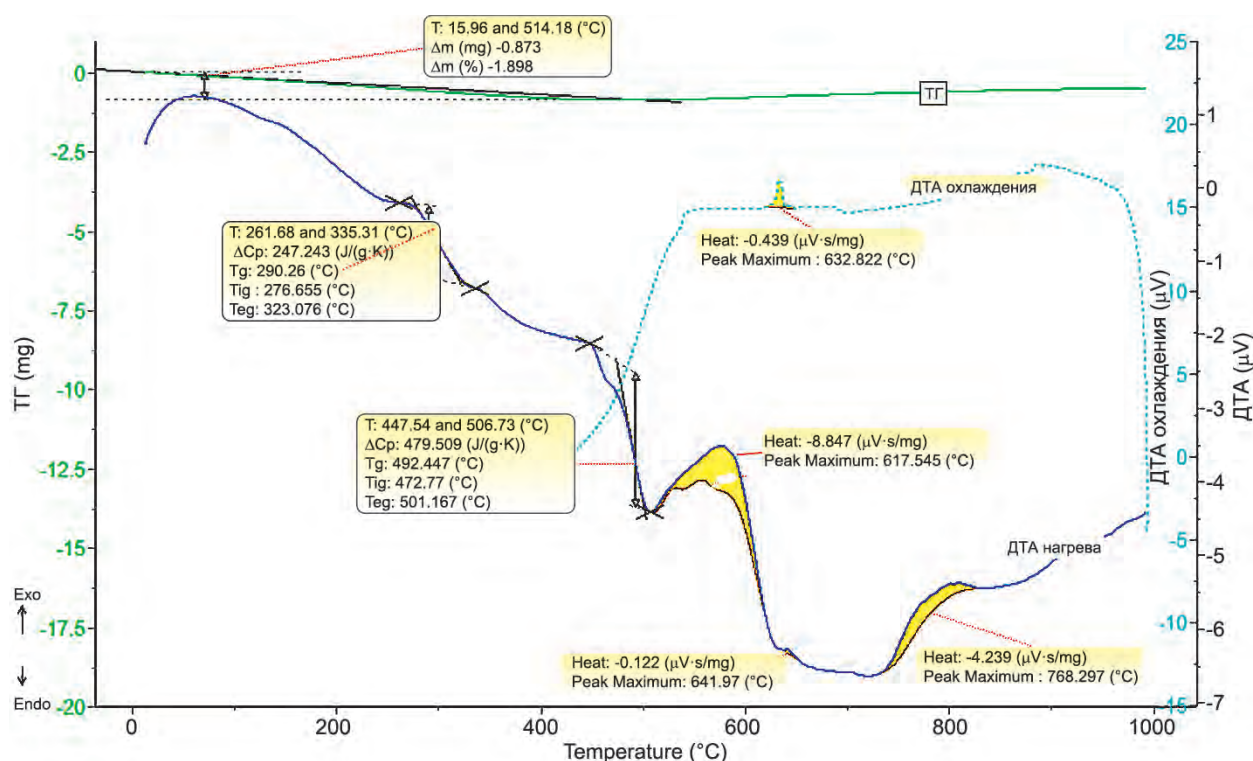


Рис. 3. Дериватограмма образца боросиликатного стекла БСС-20

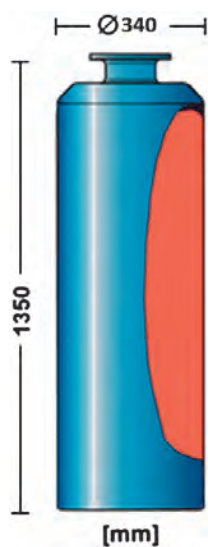


Рис. 4. Общий вид бидона для остеклованных ВАО ОДЦ ГХК ( $V \sim 100 \text{ дм}^3$ )

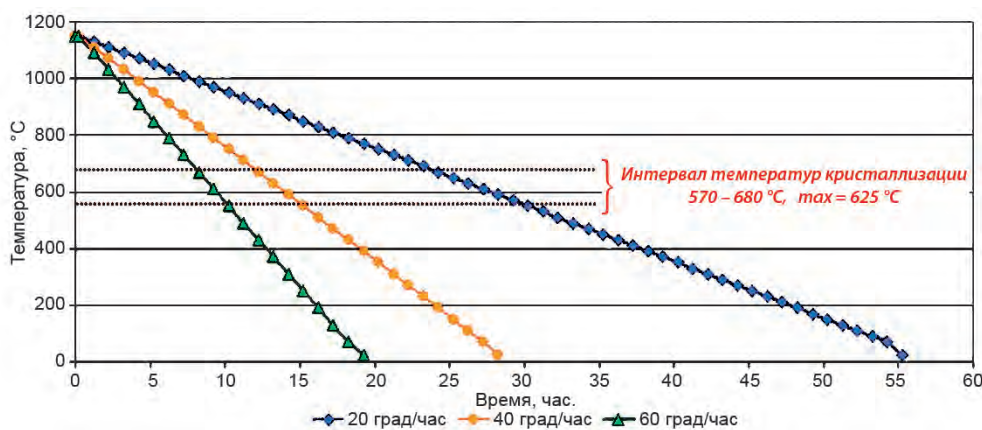


Рис. 5. Температурно-временные режимы проведения опытов по охлаждению расплава БСС-20

Для стекла БСС-20 была изучена зависимость степени кристаллизации от скорости охлаждения расплава, которым будет заполняться этот бидон.

Согласно методике эксперимента образец стекла помещался в алундовый тигель и выдерживался в муфельной печи SNOL при температуре варки 1150 °C в течение 15 мин. Затем нагревание прекращалось, и тигель с расплавом остывал до комнатной температуры в течение заданного промежутка времени. Скорость охлаждения расплава стекла составляла 20, 40 и 60 °C/ч. Графики зависимости температуры от времени приведены на рис. 5.

Остывший тигель разрезался вдоль осевой линии и направлялся на исследование

физико-химических свойств с использованием методов ЕРМА и SEM.

Из рисунка 5 видно, что время нахождения расплава в области температур протекания процесса кристаллизации обратно пропорционально скорости охлаждения (табл. 5).

**Таблица 5. Время прохождения интервала температур 570–680 °C в зависимости от скорости охлаждения образцов стекла**

Скорость охлаждения, °C/ч	Время выдержки, ч
20	6
40	3
60	2

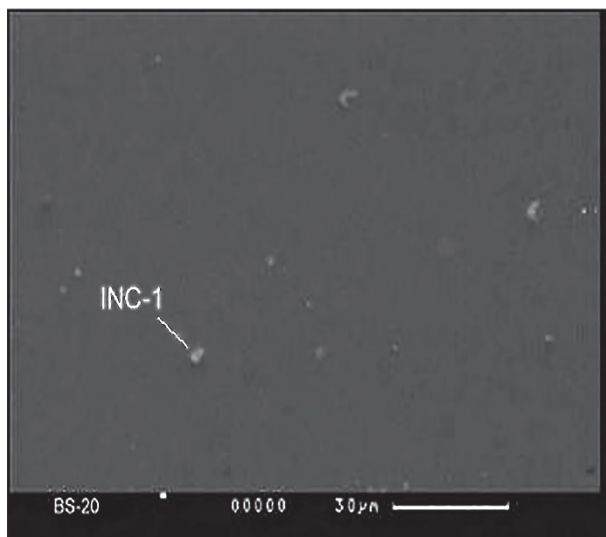


Рис. 6. SEM-микрофотография образца БСС-20, скорость охлаждения 20 °С/ч

Анализ морфологии и состава образцов показал наличие кристаллической фазы лишь в образце, который охлаждался со скоростью 20 °С/ч (рис. 6). Содержание кристаллических включений не превышало 0,2 об. %, а размер частиц составлял в среднем 1,6 мкм.

По данным ЕРМА, состав кристаллической фазы следующий (масс.%): SiO<sub>2</sub> — 68,0; Na<sub>2</sub>O — 20,5; CaO — 5,7; La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> — 5,8.

Таким образом, даже при минимальной скорости охлаждения расплава стекла (20 °С/ч), времени прохождения этой области температур мало для значительных трансформаций стеклоподобной матрицы, способных существенно снизить химическую устойчивость остеклованных РАО.

### Химическая устойчивость

Определение химической устойчивости синтезированных стекол проводилось согласно ГОСТ 52126–2003 [12] на цилиндрических образцах объемом ≈ 1 см<sup>3</sup> при температурах (20±3) и (90±3) °С. Испытания при повышенной температуре проводились с использованием сушильного шкафа SNOL 24/200 в автоклавах специальной конструкции.

Анализ элементного состава выщелатов проводился с использованием метода атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно-связанной плазмой (ИСП-АЭС) на приборе Varian 725-ES. Результатом математической обработки экспериментальных данных по выщелачиванию является нахождение величин нормированного выщелачивания  $N_L(i)$  (г/м<sup>2</sup>) (потери массы) и скорости выщелачивания  $R_L(i)$  (г/см<sup>2</sup>·сут) компонентов остеклованных ВАО:

$$N_L(i) = \frac{m_i}{f_i \cdot S}, \quad (12)$$

$$R_L(i) = \frac{dN_L(i)}{dt} = \frac{1}{f_i \cdot S} \cdot \frac{dm_i}{dt}, \quad (13)$$

где  $m_i$  — полное количество компонента  $i$  в выщелате (г),  $S$  — площадь поверхности, взаимодействующей с контактным раствором (м<sup>2</sup>),  $f_i$  — массовая доля элемента  $i$  в стекле.

Равновесные значения скорости выщелачивания компонентов исследуемых стекол приведены в табл. 6.

Таблица 6. Химическая устойчивость исследуемых стекол

Стекло	БСС-15		БСС-20	
Температура выщелачивания, °С	20 ± 3	90 ± 3	20 ± 3	90 ± 3
RL(Cs), г/(см <sup>2</sup> ·сут)	2,15·10 <sup>-7</sup>	8,60·10 <sup>-6</sup>	2,18·10 <sup>-7</sup>	8,72·10 <sup>-6</sup>
RL(Sr), г/(см <sup>2</sup> ·сут)	5,25·10 <sup>-8</sup>	2,10·10 <sup>-6</sup>	4,98·10 <sup>-8</sup>	1,99·10 <sup>-6</sup>

Более детально результаты изучения процессов, сопровождающих взаимодействие БСС с разными водными растворами, включая образование поверхностных слоев и математическое моделирование выщелачиваемости, приведены в публикациях [13–15].

### Заключение

Приведенные в работе показатели качества БСС-15 и БСС-20, значения которых были определены в ходе экспериментальных исследований с использованием специально изготовленных образцов, превышают аналогичные значения показателей качества, предъявляемые к фосфатным стеклоподобным компаундам. Например, скорости выщелачивания цезия и стронция при комнатной температуре на порядок меньше для боросиликатных стекол, а механическая прочность на сжатие, изгиб и упругость на порядок выше. Термическая стойкость боросиликатных стекол почти на 100 °С выше, чем у алюмофосфатных стекол, что является значительным преимуществом при длительном их хранении.

Полученные в ходе выполнения работы результаты могут быть использованы для внесения предложений по изменению и дополнению целевых показателей качества в окончательную редакцию НП-019-2015, относящихся к боросиликатным стеклам, используемым в технологии кондиционирования жидких ВАО.

### Благодарность

Работа выполнена при поддержке Государственной корпорации по атомной энергии «Росатом» по договору с ФГУП ГХК (№ 25-15-1146/7149/1422).

### Литература

1. Крюков О. В. Краткий комментарий к утверждению «Стратегии создания пункта глубинного захоронения радиоактивных отходов» // Радиоактивные отходы. 2018. №2 (3). С. 16–17.
2. НП-093-14. Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения. — М.: Ростехнадзор, 2015. 24 с.
3. Ожован М. И., Полуэктов П. П. Стекла для иммобилизации ядерных отходов // Природа. 2010. № 3. С. 3–11.
4. Gin S. Jollivet P., Tribet M., Peugeot S., Schuller S. Radionuclides containment in nuclear glasses: an overview // Journal Radiochimica Acta. 2017–V. 105. P. 927–959.
5. ГОСТ Р 50926-96. Отходы высокоактивные отвержденные. Общие технические требования. — М.: Госстандарт России, 1996. — 3 с.
6. ГОСТ 9450-76. Измерение микротвердости вдавливанием алмазных наконечников. — М.: Издательство стандартов, 1993. — 15 с.
7. ГОСТ 2409-95. Огнеупоры. Метод определения кажущейся плотности, открытой и общей пористости, водопоглощения. — Минск: ИПК Изд-во стандартов, 2002. — 10 с.
8. ГОСТ Р 53568-2009. Контроль неразрушающий. Определение констант упругости третьего порядка акустическим методом. Общие требования. — М.: Издательство стандартов, 2010. — 10 с.
9. ГОСТ 32281.1-2013 (EN 1288-1:2000). Стекло и изделия из него. Определение прочности на изгиб. — М.: Стандартинформ, 2014. — 19 с.
10. ГОСТ 25535-2013. Стекло и изделия из него. Методы определения термостойкости. — М.: Стандартинформ, 2014. — 8 с.
11. Nuclear Waste Conditioning: monograph / editorial director Philippe Pradel. — Paris: Nuclear Energy Division, 2009. — 145 p. — ISBN 978-2-281-11380-8.
12. ГОСТ Р 52126-2003. Отходы радиоактивные. Определение химической устойчивости отвержденных высокоактивных отходов методом длительного выщелачивания. — М.: ИПК Изд-во стандартов, 2003. — 10 с.
13. Алой А. С., Трофименко А. В., Кольцова Т. И., Никандрова М. В. Изучение процесса образования поверхностных слоев при выщелачивании боросиликатных стекол с разным включением модельных ВАО // Радиохимия. 2012. Т. 54. № 3. С. 267–273.
14. Алой А. С., Никандрова М. В. Изучение процесса выщелачивания боросиликатных стекол, содержащих модельные ВАО, в растворах перекиси водорода как имитатора продуктов радиолиза // Радиохимия. 2014. Т. 56. № 6. С. 540–549.
15. Алой А. С., Никандрова М. В. Изучение процесса выщелачивания боросиликатных стекол, содержащих модельные ВАО ОДЦ ГХК, в минерализованной воде гранитоидной формации // Радиохимия. 2015. Т. 57. № 5. С. 466–470.

---

### Информация об авторах

Алой Альберт Семенович, доктор технических наук главный научный сотрудник, АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина» (194021, Санкт-Петербург, 2-й Муринский проспект, 28), e-mail: aloy@khlopin.ru.

Трофименко Александр Васильевич, кандидат химических наук, ведущий научный сотрудник, АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина», (194021, Санкт-Петербург, 2-й Муринский проспект, 28), e-mail: aloy@khlopin.ru.

Кольцова Татьяна Ивановна, ведущий инженер, АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина», (194021, Санкт-Петербург, 2-й Муринский проспект, 28), e-mail: koltsova@khlopin.ru.

Никандрова Мария Владимировна, кандидат химических наук, начальник лаборатории, АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина» (194021, Санкт-Петербург, 2-й Муринский проспект, 28), e-mail: nikandrova@khlopin.ru.

### Библиографическое описание данной статьи

Алой А. С., Трофименко А. В., Кольцова Т. И., Никандрова М. В. Физико-химические характеристики остеклованных модельных ВАО ОДЦ ГХК // Радиоактивные отходы. — 2018. — № 4 (5). — С. 67–75.



## PHYSICO-CHEMICAL CHARACTERISTICS OF THE VITRIFIED SIMULATED HLW AT EDC MCC

Aloy A. S., Trofimenko A. V., Koltsova T. I., Nikandrova M. V.

JSC Khlopin Radium Institute, Saint-Petersburg, Russia

Article received 25 October 2018

*Experimental results concerning of quality for simulated borosilicate glass-matrix, which composition was developed for liquid high-level waste conditioning after reprocessing of SNF WWPR-1000 at EDC MCC, Zhelesnogorsk, are submitted in this paper. Performing of such investigations was initiated by necessity for inclusion of a new technical specific data for borosilicate glassy-like matrix alternative to alumophosphate ones into regulatory norms in the area of radioactive waste management.*

**Key words:** borosilicate glass, high level waste, quality characteristics, mechanical properties, crystallization, leachability.

### Acknowledgements

The research was performed under support by the State Atomic Energy Corporation «ROSATOM» in the frame of contract with FSUE MCC (№ 25-15-1146/7149/1422).

### References

1. Kriukov O. V. Kratkii kommentarii k utverzhdeniiu "Strategii sozdaniia punkta glubinnogo zakhoroneniia radioaktivnykh otkhodov". *Radioactive Waste*, 2018, no 2 (3), pp. 16–17.
2. NP-093-14. Kriterii priemlemosti radioaktivnykh otkhodov dlia zakhoroneniia. — M.: Rostekhnadzor, 2015. 24 p. HPI-093-14.
3. Ozhovan M. I., Pouektov P. P. Stekla dlia immobilizatsii iadernykh otkhodov. *Priroda*, 2010, no. 3, p. 3–11.
4. Gin S., Jollivet P., Tribet M., Peugeot S., Schuller S. Radionuclides containment in nuclear glasses: an overview. *Journal Radiochimica Acta*, 2017, v. 105, p. 927–959.
5. GOST R 50926-96. Otkhody vysokoaktivnye otverzhdennye. Obshchie tekhnicheskie trebovaniia. M.: Gosstandart Rossii, 1996. 3 s.
6. GOST 9450-76. Izmerenie mikrotverdosti vdavlivaniem almaznykh nakonechnikov. — Moscow, Izdatelstvo standartov, 1993. 15 s.
7. GOST 2409-95. Ogneupory. Metod opredeleniia kazhushcheisia plotnosti, otkrytoi i obshchei poristosti, vodopogloshcheniia. Minsk. IPK Izd-vo standartov, oktiabr 2002. 10 s.
8. GOST R 53568-2009. Kontrol nerazrushaiushchii. Opredelenie konstant uprugosti tretogo poriadka akusticheskim metodom. Obshchie trebovaniia. — M.: Izdatelstvo standartov, 2010. 10 s.
9. GOST 32281 1-2013 (EN 1288-1:2000). Steklo i izdeliia iz nego. Opredelenie prochnosti na izgib. M.: Standartinform. 2014. 19 s.
10. GOST 25535-2013. Steklo i izdeliia iz nego. Metody opredeleniia termostoikosti. M.: Standartinform, 2014. 8 s.
11. Nuclear Waste Conditioning: monograph / editorial director Philippe Pradel, — Paris: Nuclear Energy Division, 2009. — 145 p. — ISBN 978-2-281-11380-8 a
12. GOST R 52126-2003. Otkhody radioaktivnye. Opredelenie khimicheskoi ustoiчивosti otverzhdennykh vysokoaktivnykh otkhodov metodom dlitel'nogo vyshchelachivaniia. M.: IPK Izd-vo standartov, 2003. 10 s.
13. Aloy A. S., Trofimenko A. V., Kol'tsov a T. I., Nikandrova M. V. Formation of surface layers in leaching of borosilicate glasses incorporating different amounts of simulated HLW. *Radiochemistry*, 2012, vol. 54, iss. 3, pp. 291-297..
14. Aloy A. S., Nikandrova M. V. Leaching of borosilicate glasses containing simulated high-level waste in solutions of hydrogen peroxide as a substance simulating radiolysis products. *Radiochemistry*, 2014, vol. 56, iss. 6, pp. 633-549.
15. Aloy A. S., Nikandrova M. V. Leaching of borosilicate glasses containing simulated high-level waste from the experimental and demonstration center of the mining and chemical combine in mineralized water of a granitoid formation. *Radiochemistry*, 2015, vol. 57, iss. 5, pp. 546-551..

### Information about the authors

*Aloy Albert Semenovich*, Doctor of Sciences, chief researcher, JSC Khlopin Radium Institute, (28, 2-nd Murinskiy Avenue, Saint-Petersburg, 194021, Russia), e-mail: aloy@khlopin.ru.

*Trofimenko Alexander Vasilyevich*, Candidate of Chemical Sciences, leading researcher, JSC Khlopin Radium Institute, (28, 2-nd Murinskiy Avenue, Saint-Petersburg, 194021, Russia), e-mail: aloy@khlopin.ru.

*Koltsova Tatyana Ivanovna*, leading engineer, JSC Khlopin Radium Institute, (28, 2-nd Murinskiy Avenue, Saint-Petersburg, 194021), e-mail: koltsova@khlopin.ru.

*Nikandrova Maria Vladimirovna*, Candidate of Chemical Sciences, head of laboratory, JSC Khlopin Radium Institute, (28, 2-nd Murinskiy Avenue, Saint-Petersburg, 194021, Russia), e-mail: nikandrova@khlopin.ru.

### Bibliographic description

Aloy A. S., Trofimenko A. V., Koltsova T. I., Nikandrova M. V. Physico-chemical characteristics of the vitrified simulated HLW at EDC MCC. *Radioactive Waste*, 2018, no. 4 (5), pp. 67–75. (In Russian)