

Ю. О. Ольховик

ДУ «Інститут геохімії навколишнього середовища НАН України», просп. академіка Палладіна, 34а,  
Київ-142, 03680, Україна

### ЗАСКЛОВУВАННЯ ЛАВОПОДІБНИХ ПАЛИВОВМІСНИХ МАТЕРІАЛІВ ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ»

Розглянуто можливість кондиціонування лавоподібних паливовмісних матеріалів об'єкта «Укриття» шляхом застосування індукційного плавника «холодний тигель» з утворенням боросилікатного скла, стійкого до впливу самопромінення і до дії факторів навколишнього середовища. Запропоновано склад і технологічні параметри установки вітрифікації, яка може бути сполучена із транспортно-технологічною схемою вилучення лавоподібних паливовмісних матеріалів із проміжних та нижніх позначок об'єкта «Укриття» за допомогою методу «горизонтального» доступу.

*Ключові слова:* лавоподібні паливовмісні матеріали, холодний тигель, об'єкт «Укриття», боросилікатне скло, вітрифікація.

Зруйнований унаслідок аварії енергоблок № 4 Чорнобильської АЕС (ЧАЕС), відомий наразі як об'єкт «Укриття», є найбільш радіаційно небезпечним об'єктом в Україні. Потенційна небезпека об'єкта «Укриття» для людини і навколишнього середовища зумовлена наявністю близько 185 т ядерних матеріалів, щодо яких немає засобів активного впливу на їхню критичність.

Ядерну, радіаційну та екологічну небезпеку об'єкта «Укриття» визначають, у першу чергу, лавоподібні паливовмісні матеріали (ЛПВМ), оскільки вони містять близько 90 т опроміненого ядерного палива, тобто близько половини радіонуклідів, накопичених в активній зоні енергоблока № 4 ЧАЕС до моменту аварії.

Відповідно до сучасних уявлень про утворення ЛПВМ хімічний склад лав був сформований передусім при взаємодії високотемпературного розплаву, що складався з  $UO_2$  і  $ZrO_2$ , з бетоном реакторних конструкцій і серпентинітом з основи реактора.

Фактично ЛПВМ є застиглою суспензією, дисперсійним середовищем якої є склоподібна силікатна матриця, а тверда дисперсна фаза представлена великою кількістю різноманітних включень, серед яких установлені оксиди урану, уран-цирконій-киснева фаза  $U_xZr_yO_2$ , циркон («чорнобиліт») і металеві глобули (рис. 1).

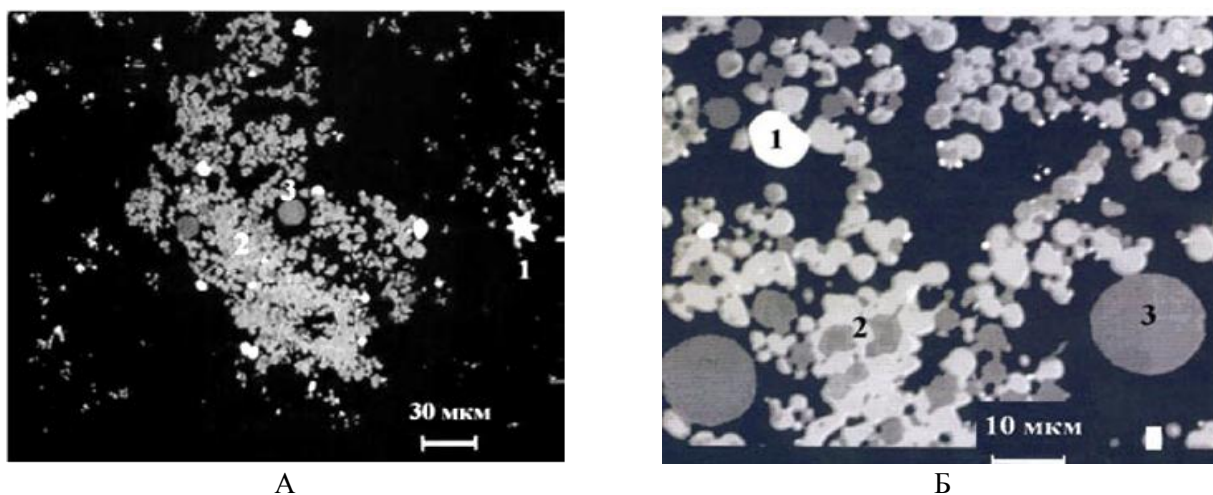


Рис. 1. Мікрофотографія поверхні коричневої лави [1]:

А) 1 – оксиди урану (білий колір); 2 – фаза  $(Zr, U)O_x$  (сірий і світло-коричневий колір); 3 – вкраплення глобул нержавіючої сталі; Б) – те саме при більшому збільшенні.

Основна частина активності в ЛПВМ зосереджена в мікровключеннях розміром 10 - 25 мкм, що складаються здебільше з  $UO_2$ . Мікровключення займають порівняно малий обсяг (близько 5 %) ЛПВМ, але містять значну частину (близько 70 %) загальної активності. Деструктивні процеси, що протікають у ЛПВМ, з кожним роком збільшують їхню небезпеку. ЛПВМ, кількість яких оцінена в 1200 т, руйнуються, і радіонукліди, що містяться в них, переходять зі зв'язаного стану в рухомі час-

© Ю. О. Ольховик, 2019

тинки пилу, які здатні вийти за межі «Укриття» з повітряними потоками. Сучасний прогноз деградації передбачає руйнування ЛПВМ на фрагменти склофази з розмірами 300 – 500 мкм і на звільненні з неї включень опроміненого урану складу  $UO_{2+x}$  розмірами 5 – 15 мкм з подальшим руйнуванням останніх до нанорозмірних часток [2].

Стратегія перетворення об'єкта «Укриття» на екологічно безпечну систему передбачає в незначеному майбутньому вилучення ЛПВМ з об'єкта «Укриття» і переведення їх у контрольований безпечний стан. Тому основним завданням кондиціонування ЛПВМ можна вважати перетворення їх у гомогенний і стійкий до впливу природних факторів матеріал, прийнятний для безпечного тривалого зберігання і подальшого захоронення в геологічному сховищі. Цей процес перетворення ЛПВМ повинен забезпечити розчинення зерен  $UO_2$  і рівномірний розподіл урану та напрацьованих ізотопів трансуранових елементів (у першу чергу, ізотопів плутонію) в матриці, властивості якої зможуть на тривалий період забезпечити ізоляцію довгоживучих радіонуклідів від навколишнього середовища. При цьому матриця повинна бути стійкою до радіаційного впливу, перш за все до впливу  $\alpha$ -розпаду трансуранових елементів.

Завдання кондиціонування ЛПВМ може бути вирішене шляхом перетворення зазначеної речовини в боросилікатне скло, відоме високою стійкістю до корозії у водних середовищах, малою сприйнятливостю до дії радіації і низькою чутливістю до змін хімічного складу матеріалів, що іммобілізуються. У зв'язку з цим боросилікатне скло нині є найбільш поширеною матрицею для іммобілізації високоактивних радіоактивних відходів.

У попередніх публікаціях [3 - 5] наведено обґрунтування можливості кондиціонування ЛПВМ об'єкта «Укриття» шляхом введення бору та лугів і формування боросилікатного скла, близького за складом до скла SON68, яке розроблене у Франції для іммобілізації високоактивних відходів від переробки відпрацьованого ядерного палива і тому містить не тільки продукти поділу, а й значну кількість трансуранових елементів (ізотопи плутонію і мінорних актинідів).

Модифікація складу ЛПВМ об'єкта «Укриття» шляхом введення бору та лугів і формування боросилікатного скла дозволить розраховувати на отримання кінцевого продукту, здатного відповідати вимогам механічної, хімічної і радіаційної стійкості на період 100 і більше тисяч років [5]. Таке перетворення ЛПВМ дасть змогу запобігти їхній подальшій деструкції внаслідок розвитку тріщин, які вочевидь є результатом збільшення об'єму кристалічних включень за рахунок окислення оксиду урану і утворення нанорозмірних каналів, що виникають у результаті накопичення радіаційних дефектів у ЛПВМ під час їхнього самоопромінення [6].

Наразі накопичено значний практичний досвід кондиціонування високоактивних відходів і ядерних матеріалів у вигляді боросилікатного скла.

Оптимальним методом отримання боросилікатного скла на основі ЛПВМ є індукційне плавлення в холодному тиглі (ПХТ), де відбувається пряма взаємодія з розплавом електромагнітного поля, що проникає через стінку тигля, прозору для високочастотного поля. За рахунок наявності в розплаві, що знаходиться в «холодному» тиглі, місцевих зон його перегріву і конвективного перемішування досягається швидке максимальне розчинення оксиду урану і його рівномірний розподіл в об'ємі скломаси, чого не вдається досягти у разі плавлення в муфельній печі через седиментацію урановмісної фази в донну частину скломаси [7]. Висока ефективність затвердіння радіоактивних відходів методом ПХТ підкреслюється у багатьох публікаціях [8, 9].

Основними перевагами ПХТ, на відміну від інших плавників для заскловування високоактивних відходів, є:

- малі габарити одночасно з високою питомою продуктивністю;
- можливість працювати як безперервно, так і періодично;
- широкий діапазон температур процесу заскловування (до 3000 °С);
- відсутність проблеми корозійної стійкості конструкційних матеріалів;
- відсутність важкого і громіздкого футерування, матеріал якого взаємодіє з розплавом і має кінцевий строк використання;

можливість змінювати склад розплаву під час роботи.

Установка заскловування має включати такі основні вузли і системи (рис. 2):

- вузол подачі подрібнених ЛПВМ;
- вузол подачі флюсуєючих добавок;
- вузол змішування ЛПВМ із флюсуєючими добавками;
- дозатор суміші у плавник;
- індукційний плавник із «холодним» тиглем;

- високочастотний генератор, призначений для постачання до ПХТ енергії, необхідної для плавлення скла;
- система очищення повітря від радіоактивних аерозолів, що утворюються у процесі заскловування;
- вузол зливу скломаси у приймальний контейнер;
- транспортна система видалення контейнерів, заповнених заскловуваними ЛПВМ;
- тимчасовий склад охолодження заповнених контейнерів;
- система водопостачання високочастотного генератора та ПХТ;
- система контролю та управління;
- допоміжне обладнання (насоси, арматура тощо).

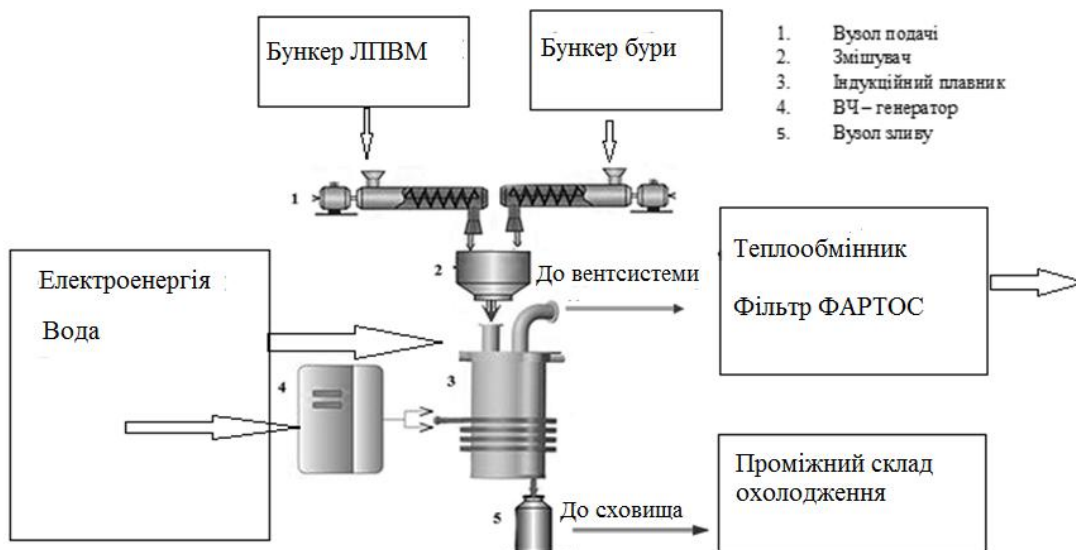


Рис. 2. Загальна схема установки вітрифікації.

Важливим аргументом на користь ПХТ є компактність тигля. Наприклад, діаметр тигля з продуктивністю 35 кг/год, який використовується в Науково-виробничому об'єднанні (НВО) «Мос-РАДОН», становить лише 420 мм (рис. 3).



Рис. 3. Розмір і характеристики холодного тигля. Основний матеріал – сталь 12X18Н10Т4; маса  $\approx$  300 кг; витрата води на охолодження – 10 м<sup>3</sup>/год.

З огляду на високу потужність експозиційної дози, притаманну ЛПВМ, елементи обладнання, системи управління, контрольно-вимірювальні прилади тощо, які контактують із радіоактивними середовищами й потребують обслуговування, повинні обслуговуватися дистанційно або бути винесені із зони радіаційного впливу.

Проектні рішення щодо розташування обладнання установки вітрифікації мають базуватись на створенні фізичних бар'єрів на шляхах можливого розповсюдження іонізуючого випромінювання і радіоактивних речовин. Тому обладнання логічно розподілити у трьох зонах.

Зона 1 - приміщення, що не обслуговуються: приміщення розташування основного обладнання установки вітрифікації.

Зона 2 – приміщення з періодичним доступом персоналу: приміщення розташування високочастотного обладнання, ремонтні приміщення.

Зона 3 – приміщення постійного перебування персоналу: пульт, службові приміщення.

Розміри та конструкція плавника ПХТ і потужність ВЧ-генератора мають бути конкретизовані залежно

від необхідної продуктивності установки, що визначається як заданим періодом для переробки  $\sim$ 1200 т ЛПВМ, так і технологічними параметрами процесу заскловування (температура, час гомогенізації розплаву, швидкість розливу скла тощо).

Якщо поставити завдання, що ЛПВМ, маса яких оцінена приблизно в 1200 т, слід кондиціювати, наприклад, за 5 років, то можна вже зараз визначити потрібні для цього характеристики індукційного плавника і ВЧ-генератора. Припускаючи, що установка буде працювати загалом 4800 год на рік, її продуктивність має становити 50 кг ЛПВМ на годину. У перерахунку для боросилікатного скла ця величина буде дорівнювати  $\approx 60$  кг/год.

Ключовим параметром є питома продуктивність плавника. Досвід експлуатації великомасштабного (діаметром 420 мм) індукційного плавника в НВО «Радон» у процесі заскловування рідких радіоактивних відходів свідчить, що питома продуктивність по склу  $2,5$  кг/(год  $\cdot$   $\text{дм}^2$ ). Беручи до уваги наявність у ЛПВМ включень, що складаються з тугоплавких сполук  $\text{UO}_2$  і  $\text{ZrO}_2$ , консервативно припустимо, що питома продуктивність по склу дорівнюватиме  $2$  кг/(год  $\cdot$   $\text{дм}^2$ ). Для отримання  $60$  кг/год потрібна ефективна площа плавлення  $30$   $\text{дм}^2$ , відповідно діаметр плавника має дорівнювати  $620$  мм. Для досягнення продуктивності  $60$  кг/год енергетичні витрати орієнтовно становитимуть  $600$  кВт/год. На сьогодні вже доступні серійні транзисторні ВЧ-генератори з напівпровідниковими перетворювачами частоти потужністю  $480 - 960$  кВт у діапазоні частот  $200 - 500$  кГц, що дає змогу планувати можливу продуктивність установки в  $60 - 80$  кг скла на годину [10].

Під час проектування вентиляційної системи, виходячи з вимог високої ефективності при одночасній мінімізації габаритних розмірів обладнання газоочищення, можна припустити, що в суміші, яка завантажується в ППХТ, відсутні хімічні сполуки, при розкладанні яких утворюються газоподібні продукти і, у першу чергу, виділяється водяна пара. Оскільки основним флюсуючим компонентом при утворенні боросилікатного скла є тетраборат натрію  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$  (відомий під назвою «бура»), слід передбачити попереднє її зневоднення, що дозволить виключити із системи газоочищення вузол збору конденсату, залишивши лише теплообмінник та аерозольні фільтри ФАРТОС.

### Висновки

Беручи до уваги стійкість боросилікатного скла як до чинників довкілля, так і до самоопромінення, його низьку чутливість до змін хімічного складу, вітрифікацію ЛПВМ можна вважати оптимальним заходом для створення стійкої довговічної матриці, спроможної забезпечити ізоляцію високоактивних відходів для довгострокового зберігання у поверхневому сховищі з подальшим розміщенням у геологічному сховищі.

Компактність основного обладнання для вітрифікації ЛПВМ дає підстави розглядати можливість розміщення установки в будівлі блока гарячих камер, що з часом має бути збудована у просторі під аркою нового безпечного конфайнмента. Це дозволить сполучити транспортно-технологічну схему вилучення ЛПВМ із проміжних та нижніх позначок об'єкта «Укриття» за допомогою методу «горизонтального» доступу із використанням дистанційно керованих агрегатів [2] із процесами кондиціювання [11] і таким чином мінімізувати дозові та фінансові витрати на перевантаження й довгострокове складування необроблених ЛПВМ.

### СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Арутюнян Р. В. Ядерное топливо в объекте «Укрытие» Чернобыльской АЭС / Р. В. Арутюнян, Л. А. Большов, А. А. Боровой и др. – М. : Наука, 2010. – 240 с.
2. Об'єкт «Укриття»: 30 років після аварії : монографія / В. О. Краснов, А. В. Носовський, В. М. Рудько, В. М. Щербін. – Чернівці : Ін-т проблем безпеки АЕС НАН України, 2016. – 512 с.
3. Ольховик Ю. А. О кондиціонуванні лавових паливо-содержащих масс объекта «Укрытие» / Ю. А. Ольховик // Ядерная энергетика та довкілля. – 2014. – № 2 (4). – С. 52 – 55.
4. 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.
5. Ольховик Ю. А. Локализация топливосодержащих масс объекта «Укрытие» в боросиликатных стеклах / Ю. А. Ольховик // Сб. науч. тр. Ин-та геохимии окружающей среды. – № 26. – 2016. – С. 17 – 26.
6. Наноразмерные поровые каналы как составляющая порового пространства лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие» / С. В. Габелков, А. А. Ключников, Е. Е. Олейник и др. // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2014. – № 22. – С. 70 – 73.
7. 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.
8. Ожован М. И. Применение стекол при иммобилизации радиоактивных отходов / М. И. Ожован, П. П. Полуэктов // Безопасность окружающей среды. – 2010. – № 1. – С. 112 – 119.
9. Ojovan M. I. Glassy wastefoms for nuclear waste immobilization / M. I. Ojovan, W. E. Lee // Metallurgical and Materials Transactions A. – 2011. – Vol. 42A. – P. 837 – 851.
10. Ольховик Ю. О. Щодо технологічного забезпечення вітрифікації лавових паливовмісуючих мас об'єкта «Укриття» / Ю. А. Ольховик // Ядерная энергетика та довкілля. – 2016. – № 2 (8). С. 53 – 57.

11. *Ольховик Ю. О.* Щодо вітрифікації лавових паливовмісних матеріалів об'єкта «Укриття» / Ю. А. Ольховик // Тези III Міжнар. наук.-практ. конф. «Екологічна безпека як основа сталого розвитку суспільства. Європейський досвід і перспективи». – Львів, 2018. – С. 68.

**Ю. А. Ольховик**

*ГУ «Институт геохимии окружающей среды НАН Украины», просп. Палладина, 34а, Киев-142, 03680, Украина*

**ОСТЕКЛОВАНИЕ ЛАВООБРАЗНЫХ ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩИХ МАТЕРИАЛОВ – ПЕРСПЕКТИВНОЕ МЕРОПРИЯТИЕ ПО ПРЕОБРАЗОВАНИЮ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ» В ЭКОЛОГИЧЕСКИ БЕЗОПАСНУЮ СИСТЕМУ**

Рассмотрена возможность кондиционирования лавообразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ) объекта «Укрытие» путем применения индукционного плавителя «холодный тигель» с формированием боросиликатного стекла, устойчивого к воздействию самооблучения и действию факторов окружающей среды. Предложен состав и технологические параметры установки витрификации, которая может быть соединена с транспортно-технологической схемой извлечения ЛТСМ из промежуточных и нижних отметок объекта «Укрытие» по методу «горизонтального» доступа.

*Ключевые слова:* лавообразные топливосодержащие массы, холодный тигель, объект «Укрытие», боросиликатное стекло, витрификация.

**Yu. A. Olkhovik**

*SI “Institute of Environmental Geochemistry NAS Ukraine”, Palladina prospect, 34a, Kyiv-142, 03680, Ukraine*

**VITRIFICATION OF LAVA FUEL-CONTAINING-MATERIALS – A PROMISING EVENT ON TRANSFORMATION OF THE SHELTER OBJECT INTO AN ECOLOGICALLY SAFE SYSTEM**

Chernobyl NPP (ChNPP) lava fuel-containing materials (LFCM) chemical composition and properties are analysed with emphasis on corrosion resistance. It is shown that LFCM need additional conditioning as changes occur and overall low corrosion resistance. The expedience to vitrify ChNPP LFCM is discussed with an optimal conditioning method which would combine joint vitrification of ChNPP LFCM and dehydrated boron-containing compound using cold crucible melters. Glass corrosion resistance is analysed with focus on alkali-borosilicate glasses typical for nuclear waste immobilization. Technical ability to create installation of lava fuel-containing materials vitrification using of the serial equipment is demonstrated, the main components and systems of such a facility are identified. The diameter of the cold crucible melters and generator power are calculated, it is shown that processing 1200 tons LFCM can be carried out in 5 years

*Keywords:* borosilicate glass, lava fuel-containing materials, vitrification, cold crucible melter, Shelter object.

**REFERENCES**

1. *Arutiunian R. V.* Nuclear fuel in the Shelter object of the Chernobyl NPP / R.V. Arutyunyan, L. A., Bolshov A. A. Borovoy et al. – Moskva : Nauka, 2010. – 240 p. (Rus)
2. *Shelter Object : 30 years after the accident : monograph / V. O. Krasnov, A. V. Nosovsky, V. M. Rudko, V. M. Shcherbin ; National Academy of Sciences of Ukraine, Institute for Safety Problems of the NPP. – Chernobyl : Institute for Safety Problems of the NPP. – 2016. – 512 p. (Ukr)*
3. *Olkhovik Yu. A.* On the conditioning of lava fuel-containing masses of the Shelter / Yu. A. Olkhovik // Nuclear power and the environment. – 2014. – No. 2 (4). – P. 52 – 55. (Rus)
4. *Olkhovik Yu.* 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.
5. *Olkhovik Yu. A.* Localization of the fuel-containing masses of the Shelter in borosilicate glasses / Yu. A. Olkhovik // Collected Works of the Institute of Environmental Geochemistry. – No. 26. – 2016. – P. 17–26. (Rus)
6. *Nanoscale pore channels as a component of the pore space of lava-like fuel-containing materials of the Shelter object / S. V. Gabelkov, A. A. Klyuchnikov, E. E. Oleinik et al. // Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobylya (Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chernobyl). – 2014. – Iss. 22. - P. 70 – 73. (Rus)*
7. *Matyunin Yu. I.* Investigation of uranium-containing borosilicate glasses synthesized in a cold crucible induction melter (CCIP) / Yu. I. Matyunin, C. B. Yudinsev // Voprosy radiatsionnoj besopasnosti. – 2000. – No. 1. – P. 15 – 23. (Rus)
8. *Ojovan M. I.* Use of glasses for the immobilization of radioactive waste / M. I. Ojovan, P. P. Poluektov // Besopasnost' okruzhajushchcej sredy. – 2010. – No. 1. – P. 112 – 119. (Rus)
9. *Ojovan M. I.* Glassy wasteforms for nuclear waste immobilization / M. I. Ojovan, W. E. Lee // Metallurgical and Materials Transactions A. – 2011. – Vol. 42A. – P. 837 – 851.
10. *Olkhovik Yu. O.* About technological provision of vitrification of lava fuel-containing masses of the Shelter object / Yu. A. Olkhovik // Nuclear power and the environment. – 2016. – No. 2 (8). – P. 53 – 57. (Ukr)
11. *Olkhovik Yu. O.* About vitrification of lava fuel-containing materials of the Shelter object / Yu. A. Olkhovik // Theses of the III International scientific and practical conference “Ecological safety as the basis of sustainable development of society. European experience and perspectives”. – Lviv, 2018. – P. 68. (Ukr)

Надійшла 14.01.2019

Received 14.01.2019