

## ИССЛЕДОВАНИЕ РАДИАЦИОННОЙ УСТОЙЧИВОСТИ БОРОСИЛИКАТНОГО СТЕКЛА К БЕТА- И ГАММА- ИЗЛУЧЕНИЮ С ПОМОЩЬЮ УСКОРЕННЫХ ПРОТОНОВ

А. С. Алой<sup>1</sup>, Н. В. Ковалев<sup>1</sup>, А. М. Прокошин<sup>1</sup>, Н. Ф. Карпович<sup>1</sup>, Т. И. Кольцова<sup>1</sup>, Н. Г. Горшков<sup>1</sup>,  
В. А. Калинин<sup>1</sup>, А. И. Блохин<sup>2</sup>, П. А. Блохин<sup>2</sup>, А. Н. Дорофеев<sup>3</sup>

<sup>1</sup>АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина», Санкт-Петербург

<sup>2</sup>Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, Москва

<sup>3</sup>Госкорпорация «Росатом», Москва

Статья поступила в редакцию 06 февраля 2021 г.

Сохранение основных физико-химических свойств остеклованных высокоактивных отходов (ВАО) под мощным радиационным воздействием в течение длительного периода времени является обязательным критерием безопасности промежуточного хранения в контролируемых условиях и последующего окончательного захоронения. На основании ранее проведенных расчетов на период времени до  $10^4$  лет были установлены максимальные дозовые нагрузки по  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучению для боросиликатного стекла (БСС) базового состава, разработанного для остекловывания жидких ВАО Опытного-демонстрационного центра ФГУП «ГКХ» (далее – ОДЦ ГКХ) [1]. Также в настоящей работе приводится обоснование возможности использования пучка ускоренных протонов для моделирования радиационных повреждений по типу  $\beta$ - и  $\gamma$ -воздействия на БСС и изучение последствий такого воздействия на его свойства.

**Ключевые слова:** радиоактивные отходы, боросиликатное стекло, радиационная стойкость, расчетное моделирование, поглощенная доза, циклотрон.

### Введение

Источниками воздействия радиации на остеклованные ВАО являются:  $\beta$ -распад продуктов деления,  $\alpha$ -распад актинидов и сопровождающее их  $\gamma$ -излучение [2, 3]. Радиационные повреждения, происходящие в таких стеклах, аккумулируются вместе с дозовой нагрузкой на протяжении до  $10^6$  лет и дольше. Фактор времени в ходе лабораторных исследований по обоснованию устойчивости конкретных составов стекол к радиационному воздействию может быть ускорен за счет применения нескольких видов внешнего и внутреннего облучения.

В данной статье рассматриваются варианты ускоренного набора дозы за счет внешнего облучения, эмулирующего  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучение. Основными видами взаимодействия  $\gamma$ -излучения с веществом являются комптон-эффект, фотоэффект и образование электрон-позитронных пар, если энергия квантов превышает 1,22 МэВ. Результатом этих взаимодействий всегда является образование в веществе электронов с энергией, значительно превышающей энергию химических связей в решетке, вследствие чего возникают химические изменения и деструктивные

процессы в стекле. Действие  $\beta$ -лучей на вещество приводит к тем же последствиям.

Так, при оценке влияния  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучений обычно используются три метода: облучение мощным электронным пучком в специальных ускорителях, проведение трансмиссионного электронного сканирования (TEM/SEM) и  $\gamma$ -облучение от источников с  $^{60}\text{Co}$  или  $^{137}\text{Cs}$ .

Недостатком методов  $\gamma$ -облучения от источников с  $^{60}\text{Co}$  или  $^{137}\text{Cs}$  является длительное время экспозиции. На мощных установках по облучению с  $^{60}\text{Co}$ , дающих мощность дозы порядка 10 Гр/с, для набора поглощенной дозы в  $10^{10}$  Гр необходимо несколько десятков лет. Недостатком методов облучения электронными пучками является генерирование и накопление отрицательного пространственного заряда из-за поглощения первичных электронов в образце [4]. Для сохранения электронейтральности происходит миграция щелочных элементов в места имплантации электронов и сокращение содержания их в поверхностных слоях стекла, поэтому на полученные результаты могут влиять процессы химической модификации стекла, что не является репрезентативным для сценария старения остеклованных отходов.

Существует еще один эффективный метод, вызывающий химические изменения и деструктивные процессы. Высокоэнергетические электроны могут возникать при торможении протонного пучка на стадии ионизационного торможения. При этом количество возникающих высокоэнергетических электронов с энергией 5 МэВ по крайней мере на три порядка превышает количество электронов, образующихся при взаимодействии  $\beta$ - или  $\gamma$ -излучения. Разрушение структуры вещества при столкновении непосредственно протонов с атомами происходит лишь в самом конце их траектории — пик Брэгга, — что соответствует полному поглощению энергии протонов.

Чем больше начальная кинетическая энергия ионов, тем большую долю составляет потеря энергии на ионизацию и тем меньшую — на стохастические взаимодействия с ядрами. Если исключить из рассмотрения стадию окончательного замедления частиц в веществе, торможение быстрых частиц и передача энергии электронам приводит к тем же самым результатам, что и торможение  $\beta$ -частиц или рассеяние  $\gamma$ -лучей. Происходит образование электронов с энергией, значительно превышающей энергию химических связей в решетке. Это обстоятельство позволяет изучать процессы трансформации стекла под действием  $\gamma$ - и  $\beta$ -лучей в условиях ускоренного моделирования, заменяя

облучение  $\beta$ - и  $\gamma$ -лучами бомбардировкой образцов пучками протонов.

С учетом этих обстоятельств было решено в ходе лабораторных экспериментов использовать облучение тонких образцов стекла базового состава ОДЦ ГХК потоком ускоренных на циклотроне протонов для моделирования радиационных повреждений от больших дозовых нагрузок при  $\beta$ - и  $\gamma$ -воздействии.

### Облучение протонами на ускорителе МГЦ-20

Для проведения исследований были изготовлены три типа боросиликатного стекла. Стекло БС-1 соответствовало базовому составу ОДЦ ГХК [1].

В стекле БС-2 отсутствовал оксид железа, а содержание оксида церия было увеличено до 4,0 масс. % за счет уменьшения концентрации оксида лантана до 2,2 масс. % по сравнению с составом БС-1.

Третье стекло (СФ-1), состав которого приведен в табл. 1, представляло собой практически чистую стеклофритту базового состава, но без добавки красителя в виде оксида марганца. Такое прозрачное стекло позволяло по степени его потемнения в ходе облучения верифицировать однородность поглощенной дозы по доступной для пучка протонов части образца за счет использования устройства по его развертке.

Таблица 1. Химический состав СФ-1, масс. %

Компонент	Содержание в стекломассе, масс. %
$\text{SiO}_2$	58,76
$\text{Na}_2\text{O}$	12,89
$\text{Li}_2\text{O}$	3,61
$\text{B}_2\text{O}_3$	18,56
$\text{CaO}$	3,09
$\text{Al}_2\text{O}_3$	3,09

В качестве источника излучения использовался пучок протонов с рабочей энергией 14 МэВ, которые генерируются на циклотроне МГЦ-20 [5]. Для облучения образцов БСС использовалось мишенное устройство, обеспечивающее коллимацию пучка на мишени, охлаждение мишени и измерение тока пучка. Образец стекла фиксировался в подложке, выполненной из алюминий-магниевого сплава, с помощью прижимного кольца, выполненного из дюралюминия для обеспечения упругости, с внутренним диаметром 1 см. Сверху мишень дополнительно накрывалась алюминиевой фольгой толщиной 50 мкм для съема электрического заряда,

наведенного пучком ускоренных ионов водорода, и для улучшения охлаждения поверхности образца с учетом крайне низкой тепло- и электропроводности стекла. Вдоль пучка располагались две фольги толщиной 50 мкм и еще одна непосредственно перед мишенью. В результате на мишень падали протоны с максимальной энергией  $E_p = 12,95$  МэВ.

На ускорителе МГЦ-20 было облучено семь образцов БСС разного состава и толщины. Время облучения образцов составляло от одного до восьми часов, ток пучка — ~1,5 мкА. Такая величина тока выбрана как компромисс между снижением рисков поверхностного перегрева и растрескивания образца и приемлемым временем набора дозы.

Равномерность распределения пучка обеспечивалась растровой разверткой при помощи двух ортогонально расположенных на ионопроводе П-образных магнитов. Ввиду того, что мишенная станция находится на значительном удалении от циклотрона и последней квадрупольной линзы, расходимость пучка на толщине образца порядка 1 мм пренебрегали. В расчетах пространственное распределение пучка на торцевой поверхности образца принималось равномерным.

### Математическое моделирование эксперимента

Математическое моделирование выполнялось с целью определения величины поглощенной дозы, которую удалось достичь в эксперименте. Моделирование проводилось на основе программных средств PHITS [6] и RTS&T [7, 8], использующих метод прецизионного статистического моделирования связанного переноса многокомпонентного излучения (более

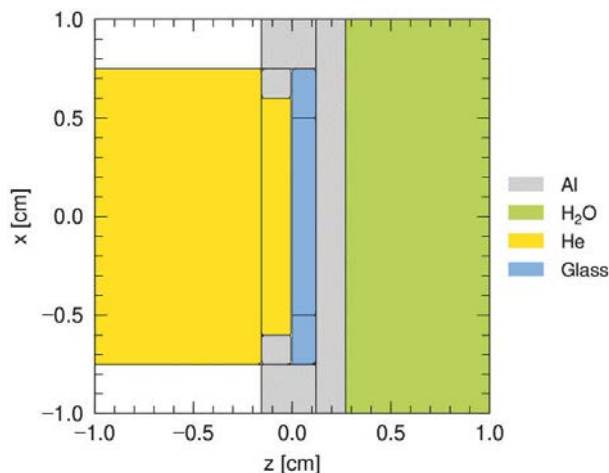


Рис. 1. Сечение модели по оси XZ

200 типов частиц и резонансов) в гетерогенных пространственно-неоднородных средах в широком диапазоне энергий. Реализованный в комплексе подход ориентирован на использование библиотек оцененных ядерных данных в формате ENDF-6 [9].

На рис. 1 представлено сечение геометрической модели, разработанной для программного средства PHITS.

На рис. 2 приведен результат расчетного тока частиц, налетающих и прошедших через мишень. Для примера приведена мишень СФ-1/1. Помимо протонов, на мишень попадают нейтроны и фотоны, образовавшиеся в результате взаимодействия пучка протонов с алюминиевыми фольгами.

Модельные БСС различной толщины были приготовлены в виде дисков радиусом 0,75 см. Основные характеристики мишеней и параметры их облучения приведены в табл. 2.

В результате моделирования выявлено, что не все мишени соответствовали требованию

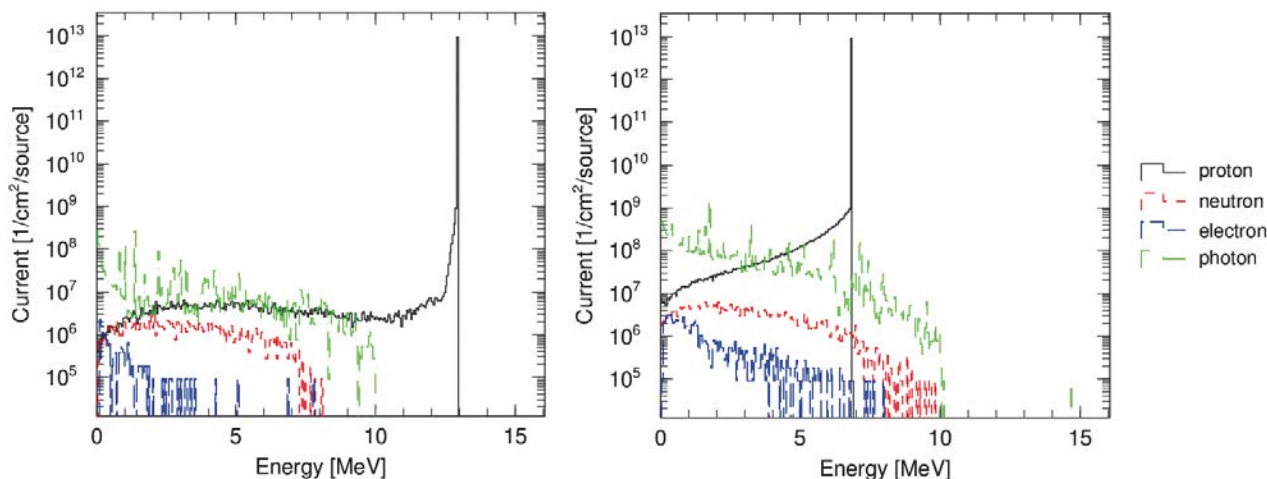


Рис. 2. Ток частиц, налетающих (слева) и проходящих через мишень (справа) диаметром 1 см

**Таблица 2. Характеристики модельных образцов БСС и параметры их облучения**

Образец (мишень)	Радиус образцов, см	Радиус облучения образцов, см	Толщина образцов, см	Плотность, г/см <sup>3</sup>	Время облучения, ч	Ток, мкА
БС-1/1	0,75	0,50	0,12	2,66	1,0	1
БС-1/2			0,07	2,66	4,67	1,75
БС-1/3			0,12	2,73	8,0	1,6
БС-2/1			0,09	2,66	1,0	1
БС-2/2			0,08	2,66	4,25	1,75
БС-2/3			0,11	2,66	8,0	1,9
СФ-1/1			0,07	2,24	4,5	1,5

полного прохождения пучка через них с целью имитации ускоренного набора поглощенной дозы. На рис. 3 приведены треки протонов в сечении XZ модели мишеней БС-1/1 и БС-1/2.

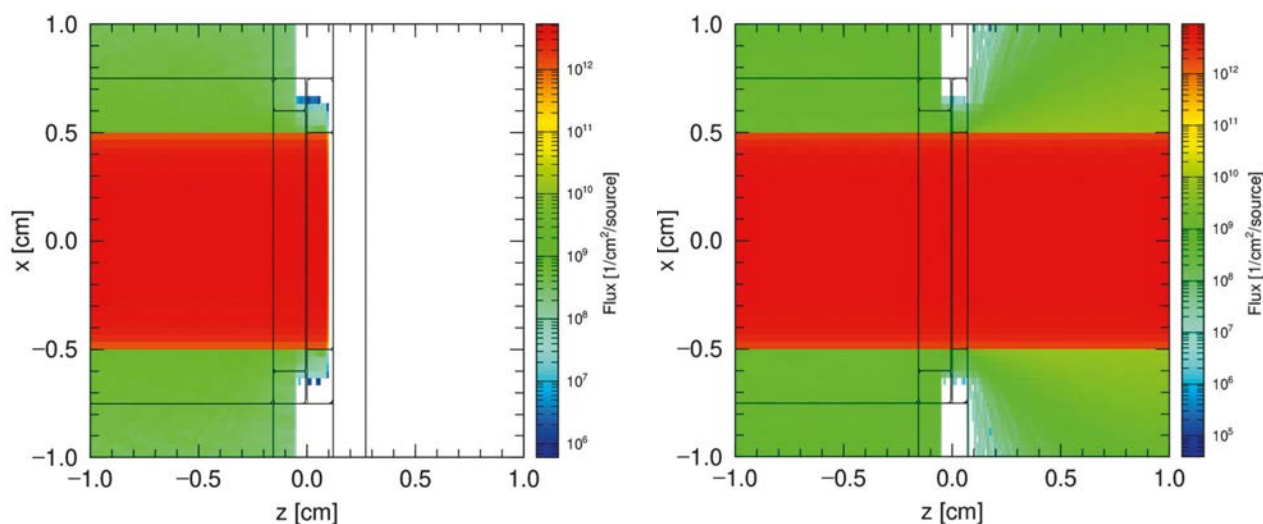


Рис. 3. Треки протонов в сечении XZ модели мишеней БС-1/1 (слева) и БС-1/2 (справа)

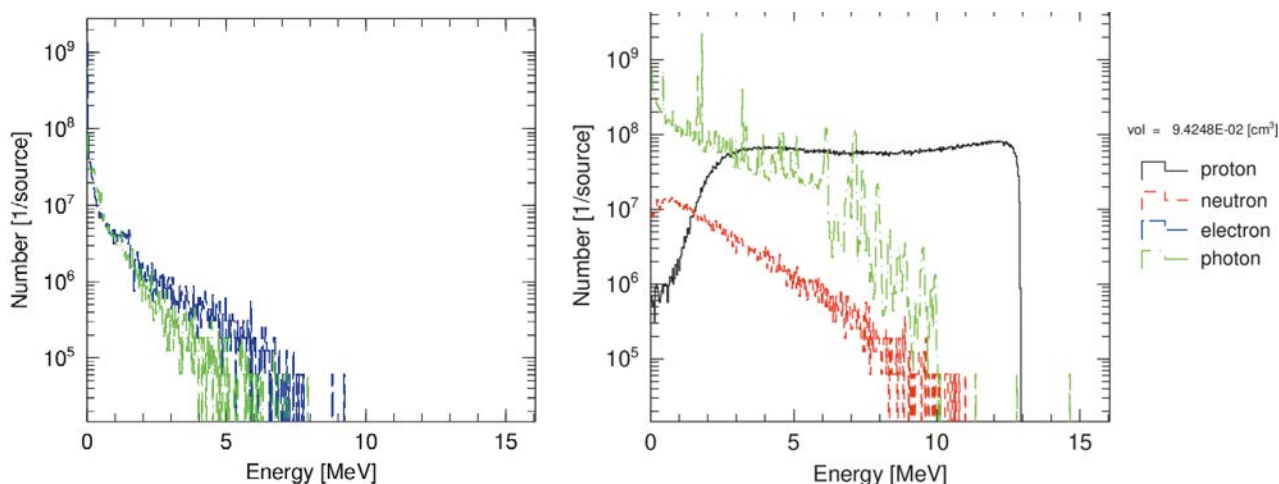


Рис. 4. Энергетическое распределение электронов и фотонов, включая упругое рассеяние, в результате атомного взаимодействия протонов с мишенью (слева) и вторичных частиц, образовавшихся в результате ядерных реакций, в мишени (справа)

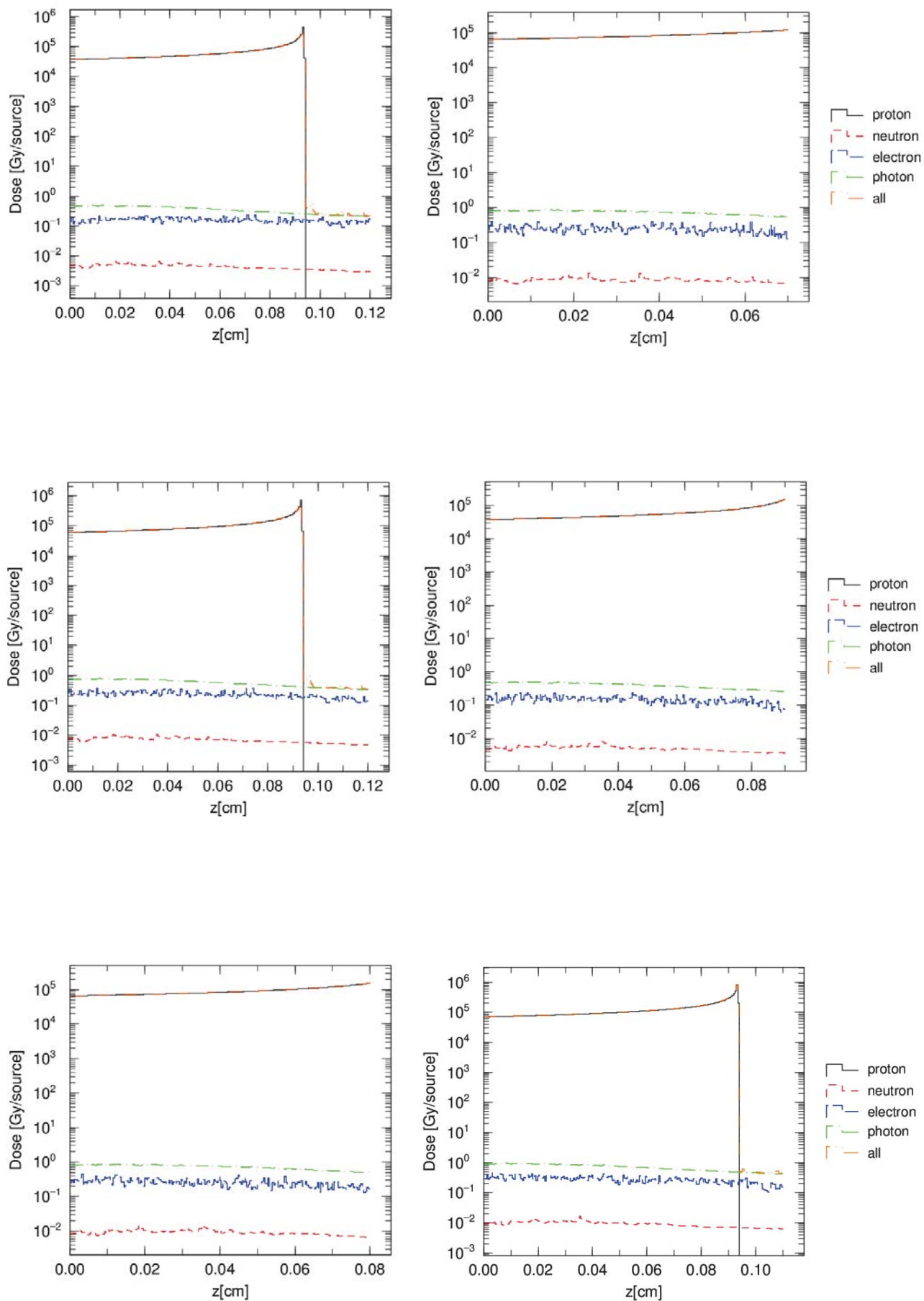
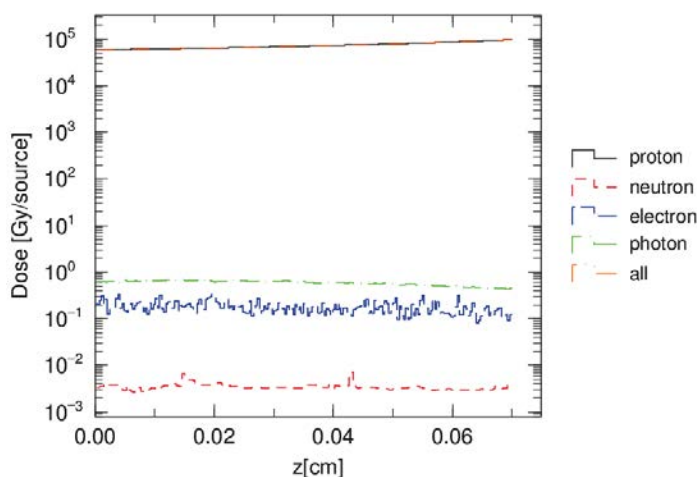


Рис. 5. Распределение поглощенной дозы при прохождении толщины мишеней (БС-1/1, БС 1/2, БС 1/3, БС 2/1, БС 2/2, БС 2/3, СФ 1/1) вдоль оси пучка



Продолжение рис. 5. Распределение поглощенной дозы при прохождении толщины мишеней (БС-1/1, БС 1/2, БС 1/3, БС 2/1, БС 2/2, БС 2/3, СФ 1/1) вдоль оси пучка

**Таблица 3. Поглощенная доза в мишени за время облучения, Гр**

Стекло	Расчетная поглощенная доза (РНТС), Гр	Выполнение условий имитации β- и γ-излучения
БС-1/1	1,85·10 <sup>8</sup>	нет
БС-1/2	1,41·10 <sup>9</sup>	да
БС-1/3	2,37·10 <sup>9</sup>	нет
БС-2/1	2,08·10 <sup>8</sup>	да
БС-2/2	1,38·10 <sup>9</sup>	да
БС-2/3	3,07·10 <sup>9</sup>	нет
СФ-1/1	1,19·10 <sup>9</sup>	да

В результате эксперимента удалось провести облучение четырех образцов стекол, соответствующее условию имитации β- и γ-излучения. Максимальная поглощенная доза составила 1,41·10<sup>9</sup> в образце БС-1/2. Тем не менее все образцы, приведенные в табл. 3, были включены в программу исследований их физико-химических свойств после облучения с целью определения возможного ухудшения характеристик БСС, в частности водоустойчивости, возникающего вследствие прямого соударения протонов с атомами стекла на тонком участке образца, превышающем допустимую толщину 0,9 мм.

#### Свойства БСС после облучения протонами

Известно, что воздействие β- и/или γ-излучения с накоплением дозы радиации (за счет распада некоторых радионуклидов) может приводить к изменению структуры и, как следствие, свойств стекла [10]. Прежде чем начнется деформация стекла за счет проникновения воды, произойдет изменение его структуры и выброс

в окружающую среду токсичных элементов, поэтому необходимо четкое понимание влияния облучения на структуру модельной матрицы стекла, предназначенной для утилизации РАО.

По завершении облучения образцы выдерживались за свинцовой защитой до уменьшения мощности дозы, равной или менее 6 мкЗв/ч. После спада наведенной активности были исследованы основные свойства образцов БСС. Наибольший вклад в долгоживущую наведенную γ-активность образцов стекла сложного химического состава вносят образованные в протон-индуцированных реакциях такие нуклиды, как <sup>56</sup>Co и <sup>57</sup>Co, а также <sup>7</sup>Be. Измерения γ-активности проводились с использованием германиевого полупроводникового детектора фирмы CANBERRA с колодцем GCW3023 №b11002 и анализатора InSpector 2000 № 13000180.

Плотность исходных и облученных протонами БСС определена методом гидростатического взвешивания соответственно ГОСТ 9553-2017 [11]. В табл. 4 приведены результаты определения плотности облученных и необлученных образцов.

Из табл. 4 видно, что плотность образцов БС-1 при облучении до дозы 10<sup>8</sup> Гр увеличивается на 1,87%, а при дальнейшем увеличении дозовой

**Таблица 4. Плотность БСС, г/см<sup>3</sup> ± 1%**

Доза облучения, Гр	Плотность, г/см <sup>3</sup> ± 1%	
	БС-1	БС-2
необлученный	2,782	2,782
10 <sup>8</sup>	2,831	-
(1,38–1,41)·10 <sup>9</sup>	2,824	2,783
(2,37–3,07)·10 <sup>9</sup>	2,824	2,793

нагрузки практически не изменяется. Плотность образцов БС-2 при увеличении дозовой нагрузки изменяется в пределах погрешности измерения.

Рентгенофлуоресцентный анализ (РФА) образцов выполняли на дифрактометре D2 PHASER фирмы BRUKER с использованием  $Cu_{K\alpha}$ -излучения. Напряжение рентгеновской трубки составляло 30 кВ, сила тока — 10 мА, съемка проводилась в диапазоне углов  $2\theta$  от  $7^\circ$  до  $70^\circ$  в режиме сканирования с шагом  $0,02^\circ$  и скоростью  $0,5$  град/мин. Обработка результатов проводилась с использованием программы DIFFRAC.EVA.V5.0.

На дифрактограммах всех образцов (рис. 6 и 7) присутствует рентгеноаморфное гало, которое свидетельствует в пользу сохранения стеклообразного состояния после больших дозовых нагрузок.

Об изменении структуры БСС после облучения с дозой более  $10^9$  Гр может свидетельствовать появление второго пика в виде диффузного гало, связанного, видимо, с некоторым упорядочением стеклообразующей сетки, хотя аморфное состояние в целом сохраняется. Дифрактограммы стекол БС-2/1 и БС-2/3 после выдержки 7 месяцев идентичны дифрактограмме исходного стекла БС-2. Возможно, это обусловлено

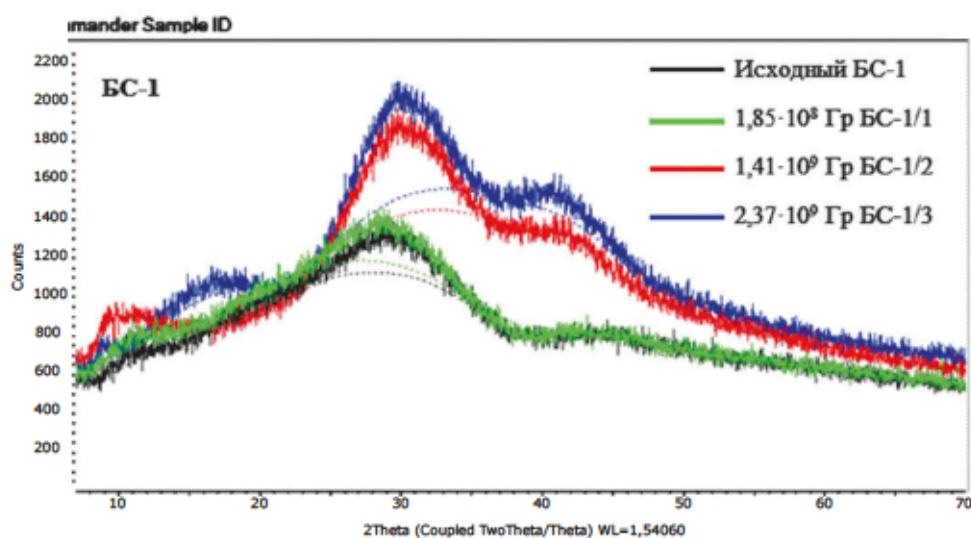


Рис. 6. Дифрактограммы исходного образца БС-1 и образцов БС-1/1, БС-1/2, БС-1/3 с разной дозой облучения

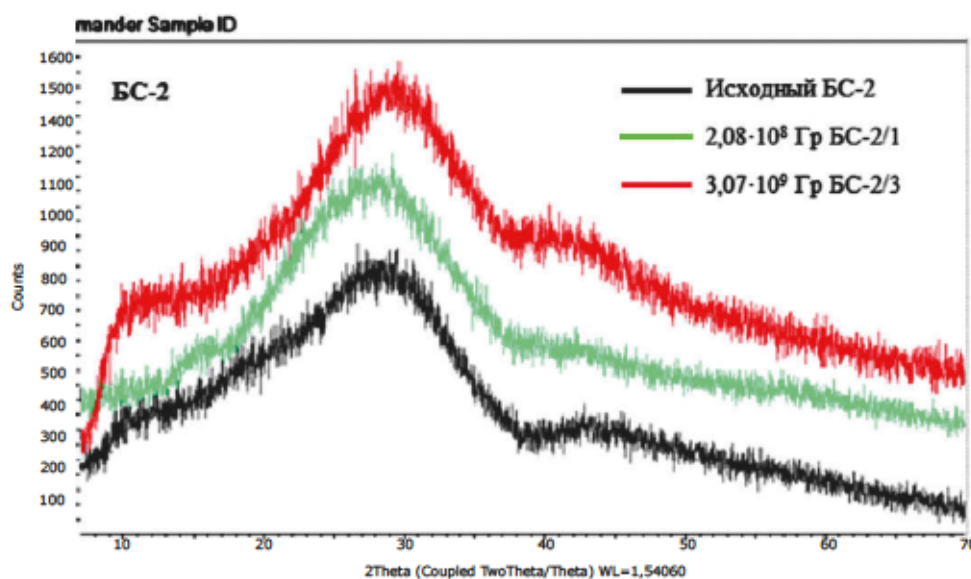


Рис. 7. Дифрактограммы исходного образца БС-2 и образцов БС-2/1 и БС-2/3 (съемка проводилась через 7 месяцев после облучения)

**Таблица 5. Скорости выщелачивания ( $г/см^2\cdotсут$ ) в дистиллированной воде компонентов исследуемых стекол на 28 сутки при температуре  $90 \pm 3$  °С с учетом необлученной площади поверхности образца (15%)**

Образец	Определяемые элементы				
	Si	B	Na	Sr	Cs*
БС-1	1,7E-04	2,9E-04	2,2E-04	3,0E-05	< 5,8E-06
БС-1/2	2,0E-04	3,3E-04	3,1E-04	3,9E-05	< 5,8E-06
БС-1/3	2,4E-04	3,8E-04	5,2E-04	1,0E-05	< 5,8E-06
БС-2	1,3E-05	1,7E-05	3,0E-05	4,6E-06	< 5,8E-06
БС-2/2	2,9E-04	5,2E-04	4,5E-04	1,8E-05	< 5,8E-06
БС-2/3	9,6E-05	1,0E-04	1,6E-04	6,4E-05	< 5,8E-06

\*Расчетная величина, если концентрацию Cs в выщелате принять равной пределу обнаружения – 0,5 мг/л

реставрацией нарушений в структуре образцов в процессе спада наведенной активности, вызванной образованием новых изотопов при взаимодействии с протонами.

Определение водоустойчивости образцов проводилось по ГОСТ 52126-2003 [12]. Эксперименты по выщелачиванию проводили в автоклавах из нержавеющей стали при  $(90 \pm 3)$  °С при контроле температуры в сушильном шкафу терморегулятором ВАРТА ТП 400 с погрешностью  $\pm 1$  %.

Концентрации в выщелатах элементов Na, Si, B и Sr определяли методом атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно-связанной плазмой на спектрометре Varian 725 EC (США), пределы обнаружения Na – 4, Si – 20, B – 2 и Sr – 0,1 мкг/дм<sup>3</sup>. Концентрацию Cs определяли на пламенном фотометре FP-640 (Финляндия), предел обнаружения Cs – 0,5 мг/дм<sup>3</sup>.

Кромка под прижимным кольцом не подвергалась облучению. В табл. 5 представлены величины скоростей выщелачивания при температуре  $(90 \pm 3)$  °С с учетом необлученной площади под прижимным кольцом, которая составила  $\approx 15$  % от общей геометрической поверхности образцов.

Концентрации цезия в выщелатах оказались ниже предела обнаружения. При консервативном подходе к оценке содержания цезия на уровне предела обнаружения – 0,5 мг/л, скорость его выщелачивания можно оценить величиной  $5,8 \cdot 10^{-6}$  г/см<sup>2</sup>·сут.

Сравнивая величины скоростей выщелачивания (табл. 5) необлученных и облученных до дозы  $1,41 \cdot 10^9$  Гр образцов БС-1, можно видеть, что они остаются практически постоянными, изменяются в пределах одного порядка.

Скорость выщелачивания компонентов из облученного образца БС-2/2 (до дозы  $1,38 \cdot 10^9$  Гр) увеличивается по сравнению с необлученным БС-2 (табл. 5), но образец стекла БС-2/3 (с дозой  $3,07 \cdot 10^9$  Гр), где, согласно расчетам, эффект

Брегга проявлялся в наибольшей степени, при выщелачивании спустя 7 месяцев после облучения обладал водоустойчивостью практически такой же, что и необлученное стекло.

Возможно, это свидетельствует о способности стекла к релаксации внутренних напряжений и других дефектов в структуре, возникших в ходе облучения.

Из табл. 5 видно, что скорости выщелачивания радионуклидов цезия и стронция соответствуют значениям водостойкости, нормативы которой по этим элементам приведены в НП-019-15 без указания температуры водной среды [13].

## Заключение

Полученные экспериментальные данные основных физико-химических свойств боросиликатного стекла после внешнего облучения протонами до дозы  $3,07 \cdot 10^9$  Гр по  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучениям показали, что стекло базового состава БС-1 сохраняет неизменность структуры и водоустойчивости в пределах  $\pm 10$  % по отношению к исходному состоянию.

При этом все показатели качества БСС после набора дозовых нагрузок соответствовали величинам, регламентированным действующим нормативным документом НП-019-15, для фосфатного стекла.

Экспериментально, путем облучения образцов стекла протонами с последующим изучением их основных свойств, установлено, что БСС базового состава сохраняет свое качество при дозах по  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучениям до достигнутых  $3,07 \cdot 10^9$  Гр.

## Литература

1. 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.



2. Алой А. С., Ковалев Н. В., Прокошин А. М., Блохин А. И., Блохин П. А. и др. К вопросу об оценке поглощенной дозы в остеклованных высокоактивных радиоактивных отходах с учетом реальной геометрии бидонов // Ядерная и радиационная безопасность. 2020. № 4 (98). С. 61–72.
3. Алой А. С., Блохин А. И., Блохин П. А., Ковалев Н. В. Радиационные характеристики боросиликатного стекла, содержащего высокоактивные отходы // Радиоактивные отходы. 2020. № 3 (12). С. 93–100.
4. Gin S., Jollivet P., Tribet M., Peugeot S., Schuler S. Radionuclides Containment in Nuclear Glasses: an Overview // Radiochim. Acta. 2017. Vol. 105. № 11. Pp. 927–959.
5. Изохронный циклотрон МГЦ-20. URL: <http://www.niiefa.spb.su/site/right/medicine/nuclear/mgc-20> (дата обращения: 01.08.2020).
6. Sato T., Iwamoto Y., Hashimoto S., Ogawa T. et al. Features of Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS Version 3.02 // J. Nucl. Sci. Technol. 2018. Vol. 55. Pp. 684–690.
7. Degtyarev I. I., Novoskoltsev F. N., Liashenko O. A., Gulina E. V., Morozova L. V. RTS&T-2014 code status // Nuclear Energy and Technology. 2015. Vol. 1. Iss. 3. Pp. 222–225.
8. Пряничников А. А., Симаков А. С., Дегтярев И. И., Новоскольцев Ф. Н., Алтухова Е. В., Алтухов Ю. В., Синюков Р. Ю., Блохин А. И. Верификация мировых библиотек оцененных ядерных данных на основе базовых интегральных экспериментов в рамках программного комплекса RTS&T // Сб. ВАИТ, сер. Ядерно-реакторные константы. 2018. Вып. 1. С. 127–136.
9. Herman M., Trkov A. ENDF-6 Formats Manual Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data Files ENDF/B-VI and ENDF/B-VII. CSEWG Document ENDF-102 Report BNL-90365-2009 Rev. 1. URL: <https://www.oecd-nea.org/dbdata/data/manual-endf/endf102.pdf>.
10. Weber W. J., Ewing R. C., Angell C. A. et al. Radiation effects in glasses used for immobilization of high-level waste and plutonium disposition // J. Mat. Res. 1997. Vol. 12. № 8. Pp. 1946–1978.
11. ГОСТ 9553-2017. Межгосударственный стандарт. Стекло и изделия из него. Метод определения плотности.
12. ГОСТ Р 52126-2003. Национальный стандарт Российской Федерации. Отходы радиоактивные. Определение химической устойчивости отвержденных высокоактивных отходов методом длительного выщелачивания.
13. НП-019-15. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии «Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности».

### 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 пр., д. 28), e-mail: [aloy@khlopin.ru](mailto:aloy@khlopin.ru).

Ковалев Никита Владимирович, научный сотрудник, АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина» (194021, Санкт-Петербург, 2-й Муринский пр., д. 28), e-mail: [kovalev@khlopin.ru](mailto:kovalev@khlopin.ru).

Прокошин Александр Михайлович, ведущий инженер, АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина» (194021, Санкт-Петербург, 2-й Муринский пр., д. 28), e-mail: [a.m.prokoshin@khlopin.ru](mailto:a.m.prokoshin@khlopin.ru).

Карпович Наталья Федоровна, кандидат химических наук, ведущий научный сотрудник, АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина» (194021, Санкт-Петербург, 2-й Муринский пр., д. 28), e-mail: [knf@khlopin.ru](mailto:knf@khlopin.ru).

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

Горшков Николай Георгиевич, кандидат химических наук, ведущий научный сотрудник, АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина» (194021, Санкт-Петербург, 2-й Муринский пр., д. 28) до декабря 2020 г.

Калинин Валерий Анатольевич, кандидат физико-математических наук, заведующий лабораторией циклотронных технологий, АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина» (194021, Санкт-Петербург, 2-й Муринский пр., д. 28), e-mail: [v\\_kalinin@khlopin.ru](mailto:v_kalinin@khlopin.ru).

Блохин Анатолий Иванович, кандидат физико-математических наук, ведущий научный сотрудник, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН (115191, Москва, Большая Тульская ул., д. 52), e-mail: [bai@ibrae.ac.ru](mailto:bai@ibrae.ac.ru).

Блохин Павел Анатольевич, кандидат технических наук, заведующий лабораторией, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН (115191, Москва, Большая Тульская ул., д. 52), e-mail: [blokhin@ibrae.ac.ru](mailto:blokhin@ibrae.ac.ru).

Дорофеев Александр Николаевич, кандидат технических наук, руководитель проектного офиса «Формирование единой государственной системы обращения с РАО», Госкорпорация «Росатом» (119017, Москва, ул. Большая Ордынка, д. 24), e-mail: ANDorofeev@rosatom.ru.

### Библиографическое описание статьи

Алой А. С., Ковалев Н. В., Прокошин А. М., Карпович Н. Ф., Кольцова Т. И., Горшков Н. Г., Калинин В. А., Блохин А. И., Блохин П. А., Дорофеев А. Н. Исследование радиационной устойчивости боросиликатного стекла к бета-и гамма-излучению с помощью ускоренных протонов // Радиоактивные отходы. 2021. № 1 (14). С. 8–18. DOI: 10.25283/2587-9707-2021-1-8-18.

## RADIATION RESISTANCE OF BOROSILICATE GLASS TO BETA AND GAMMA RADIATION EVALUATED USING THE ACCELERATED PROTON METHOD

Aloy A. S.<sup>1</sup>, Kovalev N. V.<sup>1</sup>, Prokoshin A. M.<sup>1</sup>, Karpovich N. F.<sup>1</sup>, Koltsova T. I.<sup>1</sup>, Gorshkov N. G.<sup>1</sup>, Kalinin V. A.<sup>1</sup>, Blokhin A. I.<sup>2</sup>, Blokhin P. A.<sup>2</sup>, Dorofeev A. N.<sup>3</sup>

<sup>1</sup>JSC V. G. Khlopin Radium Institute, St. Petersburg, Russia

<sup>2</sup>Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

<sup>3</sup>State Corporation Rosatom, Moscow, Russia

Article received on February 06, 2021

Preservation of the main physical and chemical properties of vitrified high-level waste over a long-time period under the influence of heavy radiation exposure is considered as an essential criterion for its quality assessment used to demonstrate the safety of intermediate storage under controlled conditions and subsequent final disposal of the waste. Earlier calculations covering a time period of up to  $10^4$  years allowed to identify the maximum beta- and gamma-radiation induced dose loads for borosilicate glass (BSS) of a basic composition specifically designed to vitrify liquid HLW from ODC MCC [1]. This study evaluates potential feasibility of applying an accelerated proton beam to simulate radiation damage according to the type of beta-gamma effects produced on the BSS and investigates the consequences of such effects on its properties which is seen as a distinctive feature of this research.

**Keywords:** radioactive waste, borosilicate glass, radiation resistance, computational modeling, absorbed dose, cyclotron.

### References

1. Aloy A. S., Trofimenko A. V., Kol'tsova T. I., Nikandrova M. V. Fiziko-khimicheskie kharakteristiki osteklovannykh model'nykh VAO ODTs GKHK [Physico-Chemical Characteristics of the Vitrified Simulated HLW at EDC MCC]. *Radioaktivnye otkhody — Radioactive Waste*, 2018, no. 4 (5), pp. 67–75.
2. Aloy A. S., Kovalev N. V., Prokoshin A. M., Blokhin A. I., Blokhin P. A. et al. K voprosu ob otsenke pogloshchennoi dozy v osteklovannykh vysokoaktivnykh radioaktivnykh otkhodakh s uchetom real'noi geometrii bidonov [On the Evaluation of Absorbed Dose in Vitrified High Level Radioactive Waste with the Account of Real Can Geometry]. *Yadernaya i radiatsionnaya bezopasnost' — Nuclear and Radiation Safety*, 2020, no. 4 (98), pp. 61–72.
3. Aloy A. S., Blokhin A. I., Blokhin P. A., Kovalev N. V. Radiatsionnye kharakteristiki borosilikatnogo stekla, soderzhashchego vysokoaktivnye otkhody [Radiation Characteristics of Borosilicate Glass Containing High-Level Waste]. *Radioaktivnye otkhody — Radioactive Waste*, 2020, no. 3 (12), pp. 93–100.
4. Gin S., Jollivet P., Tribet M., Peugeot S., Schuler S. Radionuclides Containment in Nuclear Glasses: an Overview. *Radiochim. Acta*, 2017, vol. 105, no. 11, pp. 927–959.
5. Izokhronnyy tsiklotron MGTs-20 [Isochronous cyclotron MGTs-20]. URL: <http://www.niiefa.spb.su/site/right/medicine/nuclear/mgc-20> (accessed 01.08.2020).
6. Sato T., Iwamoto Y., Hashimoto S., Ogawa T. et al. Features of Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS Version 3.02. *J. Nucl. Sci. Technol*, 2018, vol. 55, pp. 684–690.
7. Degtyarev I. I., Novoskoltsev F. N., Liashenko O. A., Gulina E. V., Morozova L. V. RTS&T-2014 code status. *Nuclear Energy and Technology*, 2015, vol. 1, iss. 3, pp. 222–225.
8. Pryanichnikov A. A., Simakov A. S., Degtyarev I. I., Novoskoltsev F. N., Altukhova E. V., Altukhov Yu. V., Sinyukov R. Yu., Blokhin A. I. Verifikatsiya mirovykh bibliotek otsenennykh yadernykh dannykh na

osnove bazovykh integral'nykh ehksperimentov v ramkakh programmnoy kompleksa RTS&T [Verification of the World Evaluated Nuclear Data Libraries on the Basis of Integral Experiments Using the RTS&T Code System]. *VANT, ser. Yaderno-reaktornye konstanty — Problems of Atomic Science and Technology. Series: Nuclear and Reactor Constants*, 2018, no. 1, pp. 127–136.

9. Herman M., Trkov A. ENDF-6 Formats Manual Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data Files ENDF/B-VI and ENDF/B-VII. CSEWG Document ENDF-102 Report BNL-90365-2009 Rev. 1. URL: <https://www.oecd-nea.org/dbdata/data/manual-endf/endf102.pdf>.

10. Weber W. J., Ewing R. C., Angell C. A. et al. Radiation effects in glasses used for immobilization of high-level waste and plutonium disposition. *J. Mat. Res.*, 1997, vol. 12, no. 8, pp. 1946–1978.

11. GOST 9553-2017. Mezhhgosudarstvennyi standart. Steklo i izdeliya iz nego. Metod opredeleniya plotnosti [Glass and glass products. Density determination method].

12. GOST R 52126-2003. Natsional'nyi standart Rossiiskoi Federatsii. Otkhody radioaktivnye. Opredelenie khimicheskoi ustoychivosti otverzhdennykh vysokoaktivnykh otkhodov metodom dlitel'nogo vyshchelachivaniya [Radioactive waste. Long time leach testing of solidified radioactive waste forms].

13. NP-019-15. Federal'nyye normy i pravila v oblasti ispol'zovaniya atomnoy energii. Sbor, pererabotka, khraneniye i konditsionirovaniye zhidkikh radioaktivnykh otkhodov. Trebovaniya bezopasnosti [Federal norms and rules in the field of atomic energy use Collection, Processing, Storage and Conditioning of Liquid Radioactive Waste. Safety requirements].

### Information about the authors

*Aloy Albert Semenovich*, Doctor of Sciences, chief researcher, JSC V. G. Khlopin Radium Institute (28, 2nd Murinsky Ave., St. Petersburg, 194021, Russia), e-mail: [aloy@khlopin.ru](mailto:aloy@khlopin.ru).

*Kovalev Nikita Vladimirovich*, researcher, JSC V. G. Khlopin Radium Institute (28, 2nd Murinsky Ave., St. Petersburg, 194021, Russia), e-mail: [kovalev@khlopin.ru](mailto:kovalev@khlopin.ru).

*Prokoshin Alexander Mikhailovich*, lead engineer, JSC V. G. Khlopin Radium Institute (28, 2nd Murinsky Ave., St. Petersburg, 194021, Russia), e-mail: [a.m.prokoshin@khlopin.ru](mailto:a.m.prokoshin@khlopin.ru).

*Karpovich Natalia Fedorovna*, Ph.D., leading researcher, JSC V. G. Khlopin Radium Institute (28, 2nd Murinsky Ave., St. Petersburg, 194021, Russia), e-mail: [knf@khlopin.ru](mailto:knf@khlopin.ru).

*Koltsova Tatyana Ivanovna*, lead engineer, JSC V. G. Khlopin Radium Institute (28, 2nd Murinsky Ave., St. Petersburg, 194021, Russia), e-mail: [koltsova@khlopin.ru](mailto:koltsova@khlopin.ru).

*Gorshkov Nikolay Georgievich*, Ph.D., leading researcher, JSC V. G. Khlopin Radium Institute (28, 2nd Murinsky Ave., St. Petersburg, 194021, Russia) until December 2020.

*Kalinin Valery Anatolyevich*, Ph.D., head of laboratory, JSC V. G. Khlopin Radium Institute (28, 2nd Murinsky Ave., St. Petersburg, 194021, Russia), e-mail: [v\\_kalinin@khlopin.ru](mailto:v_kalinin@khlopin.ru).

*Blokhin Anatoly Ivanovich*, Ph.D., leading researcher, Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tulsкая st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: [bai@ibrae.ac.ru](mailto:bai@ibrae.ac.ru).

*Blokhin Pavel Anatolievich*, Ph.D., head of laboratory, Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tulsкая st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: [blokhin@ibrae.ac.ru](mailto:blokhin@ibrae.ac.ru).

*Dorofeev Aleksander Nikolaevich*, Ph.D., Head of the Project Office on the Development of a Unified Radioactive Waste Management System, State Corporation Rosatom (24, Bolshaya Ordynka st., Moscow, 119017, Russia), e-mail: [ANDorofeev@rosatom.ru](mailto:ANDorofeev@rosatom.ru).

### Bibliographic description

Aloy A. S., Kovalev N. V., Prokoshin A. M., Karpovich, N. F., Koltsova T. I., *Gorshkov N. G.*, Kalinin V. A., Blokhin A. I., Blokhin P. A., Dorofeev A. N. Radiation resistance of borosilicate glass to beta and gamma radiation evaluated using the accelerated proton method. *Radioactive Waste*, 2021, no. 1 (14), pp. 8–18. DOI: 10.25283/2587-9707-2021-1-8-18. (In Russian).