

## ПРИРОДА ФОРМИРОВАНИЯ НАНОРАЗМЕРНЫХ ПОРОВЫХ КАНАЛОВ ЛАВООБРАЗНЫХ ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩИХ МАТЕРИАЛОВ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

*С.В. Габелков, А.А. Ключников, П.Е. Пархомчук, Г.Ф. Чемерский*  
*Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль, Украина*  
*E-mail: gabelkov@ipbaes.org.ua*

Исследована эволюция составляющих порового пространства – коричневой и черной керамик лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие» при термообработке. С повышением температуры часть наноразмерных поровых каналов закрывается при 100...150 °С, часть трещин – при 200 и 400 °С, полностью закрываются наноразмерные каналы при 400 °С, трещины – при 530 °С, а нанопоры – при 600 °С. Открытые наноразмерные каналы являются результатом объединения, по крайней мере, части трещин  $\alpha$ -частиц, образовавшихся за счет  $\alpha$ -распада трансураниевых радионуклидов при самооблучении в течение длительного периода времени. Наноразмерные поровые каналы и трещины сформировались в результате процессов, проходящих в материалах значительно позднее их «приготовления» во время аварии.

Ядерную, радиационную и экологическую безопасность объекта «Укрытие» определяют лавообразные топливосодержащие материалы (ЛТСМ) по причине того, что они содержат основную часть радионуклидов вышедшего из-под контроля ядерного реактора 4-го блока Чернобыльской АЭС. Структуру ЛТСМ и её характеристики необходимо знать для долгосрочного прогнозирования их деградации. За десятилетия, прошедшие после аварии, достаточно полно изучены не только кристаллические включения, но и силикатная стекломатрица ЛТСМ. Получены данные по фазовому составу, содержанию и размерам кристаллических включений, распределению урана между кристаллическими включениями и силикатной стеклофазой, элементному составу стеклофазы и параметрам открытой пористости [1–3].

Исследования, проведенные в последнее время [4, 5], показали, что наряду с известными ранее газовыми порами и трещинами ЛТСМ содержат наноразмерные поровые каналы. Показано, что именно наноканалы соединили газовые поры между собой и с внешней средой и обеспечили формирование открытой пористости материала, которая ответственна за поступление воздуха и воды в ЛТСМ и, тем самым, оказывает существенное влияние на процессы деградации их структуры и свойств.

Полученные ранее данные [5] дают основания полагать, что наноразмерные поровые каналы в ЛТСМ являются результатом накопления радиационных дефектов, и основной механизм их формирования – взаимодействие с материалом  $\alpha$ -частиц, образовавшихся при  $\alpha$ -распаде радионуклидов. Для углубления наших представлений о ЛТСМ необходимо выяснить природу формирования наноразмерных поровых каналов. Знания о природе формирования каждого из всех имеющихся составляющих порового пространства ЛТСМ позволит на качественно более высоком уровне подойти к пересмотру модели деградации структуры и физико-механических свойств ЛТСМ, т.е. однозначно определить этапы деградации материала, выяснить их очередность, оценить их продолжительность и т.д. Это позволит значительно повысить надеж-

ность прогнозирования поведения ЛТСМ и создаст предпосылки для выбора путей обращения с ЛТСМ в будущем на последующих этапах работ на объекте «Укрытие».

Целью работы было определение природы формирования наноразмерных поровых каналов для совершенствования модели деградации ЛТСМ объекта «Укрытие» путем изучения изменений характеристик всех составляющих порового пространства ЛТСМ в результате термообработки.

### МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследовались образцы коричневой и черной керамик, характерные для парораспределительного коридора и помещений 305/2, 304/2 соответственно.

При исследованиях использовался метод определения объемов каждой из имеющихся в пористом теле совокупностей открытых поровых каналов по удалению рабочей жидкости из них при её испарении [6, 7]. Образцы ЛТСМ в виде пластин с размерами (3...3,5) x (20...30) x (30...40) мм помещали в вакуумную камеру. Проводили откачку до давления  $6 \cdot 10^{-2}$  мм рт. ст. для удаления воздуха из поровых каналов и заполняли их рабочей жидкостью – дистиллированной водой. Далее проводили контролируемую сушку для удаления рабочей жидкости при её испарении и определяли зависимость массы системы от времени при постоянной температуре.

Каждый из образцов ЛТСМ проходил серию термообработок при постоянных температурах в течение 5 ч в лабораторной печи на воздухе. Последующую термообработку проводили при более высокой постоянной температуре, чем предыдущую. Температуру повышали и снижали со скоростью 2,5...4,5 °С/мин. После каждой термообработки определяли объемы всех открытых поровых каналов и объем твердой фазы. Термообработки проводили при температурах из интервала 70...800 °С.

Кажущуюся плотность образцов ЛТСМ определяли методом гидростатического взвешивания, пикнометрическую – методом водной пикнометрии.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Образцы коричневой керамики (№1 и 2) имели кажущуюся плотность 2,70 и 2,81 г/см<sup>3</sup> и открытую пористость 6,9 и 7,2% соответственно. Образец черной керамики имел кажущуюся плотность 2,16 г/см<sup>3</sup> и открытую пористость 9,8%.

Зависимость массы системы «коричневая керамика–вода» для исходного образца №1 от времени при температуре контролируемой сушки 3...37 °С показана на рис. 1. Масса системы с течением времени убывает. Зависимость содержит пять линейных участков: четыре наклонных и один параллельный оси абсцисс. Прямые, продолжающие линейные участки до пересечения с осью ординат, отсекают на последней величины масс, разности которых ( $m_0 - m_1$ ), ( $m_1 - m_2$ ), ( $m_2 - m_3$ ) и ( $m_3 - m_4$ ) численно равны объемам четырех совокупностей поровых каналов различного диаметра. Величина массы, соответствующая пятому участку, равна массе твердой фазы. Абсциссы точек последовательного пересечения этих прямых друг с другом дают значения продолжительностей стадий испарения воды из каждой совокупности поровых каналов. Относительные объемы поровых каналов и продолжительности стадий испарения воды представлены в таблице.

Относительные объемы открытых поровых каналов, продолжительности стадий удаления рабочей жидкости из них и объемы твердой фазы у коричневой керамики (образец №1) лавообразных топливосодержащих материалов до и после термообработки

Стадии		I	II	III	IV	V
Составляющая структуры		Большие газовые поры	Малые газовые поры	Трещины	Нано-каналы	Твердая фаза
Относительные объемы до и после термообработки, об. %	исходный	5,43	0,61	0,39	0,44	93,13
	300 °С	5,35	0,66	0,32	0,14	93,52
	530 °С	6,03		0,0	0,0	93,97
Погрешность, ±%		0,10	0,08	0,05	0,05	0,10
Продолжительности стадий до и после термообработки, ч	исходный	0,24	0,54	1,2	4,5	–
	300 °С	0,24	0,5	1,0	3,5	–
	530 °С	0,2	0,36	–	–	–
Погрешность, ± ч		0,014	0,03	0,04	0,4	–

Примечание. Температура контролируемой сушки составляла 36...37 °С.

В результате термообработки при 300 °С масса образца уменьшилась с 2,8526 до 2,8492 г за счет отделения от него нескольких крупинок. Термообработка при 530 °С привела к разрушению образца на семь крупных и множество мелких фрагментов. Масса семи крупных фрагментов составила 2,0276 г.

Термообработка при 300 °С не привела к изменению относительного объема больших и малых газовых пор. Но объем трещин уменьшился на 0,07% (в 1,2 раза), а объем наноразмерных каналов – на 0,3% (в 3,1 раза). Объем твердой фазы увеличился на 0,39%. Это указывает на закрытие некоторой части трещин и значительной части наноразмерных поровых каналов. Продолжительности удаления воды из больших и малых газовых пор практически не изменились, а из трещин и наноразмерных поровых каналов уменьшились (см. таблицу).

Термообработка при 530 °С также не привела к изменению относительного объема больших и ма-

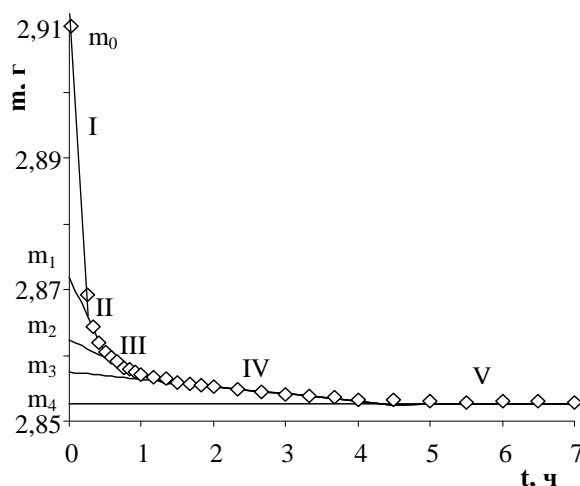


Рис. 1. Зависимость массы системы «коричневая керамика–вода» от времени сушки

Ранее [5] показано, что стадии I – IV удаления воды из поровых каналов коричневой керамики соответствуют большим и малым газовым порам, трещинам и наноразмерным поровым каналам соответственно. Стадия V соответствует твердой фазе.

Их суммарный объем не изменился. На зависимости массы системы «коричневая керамика–вода» отсутствуют стадии III и IV, соответствующие трещинам и наноканалам. Объем твердой фазы увеличился еще на 0,45%. Это свидетельствует о закрытии всех наноканалов и преобладающей части трещин. Продолжительности удаления воды из больших и малых газовых пор несколько уменьшились за счет увеличения поверхности образцов из-за увеличения их боковой поверхности при разрушении на несколько фрагментов (см. таблицу).

Для более полного изучения поведения составляющих порового пространства ЛТСМ при термообработке её проводили у образца №2 коричневой керамики последовательно с продолжительностью по 5 ч при 150, 200, 250, 300, 350, 400 и 450 °С. Масса образца с увеличением температуры термообработки уменьшается (рис. 2): в интервале температур 20...300 °С – на 0,002...0,005 г через каждые

50 °С в связи с отделением от образца по несколько частиц материала диаметром 0,1...0,3 мм, а в интервале 350...450 °С – более значительно, на 0,13...0,4 г через каждые 50 °С, за счет более интенсивного отделения частиц материала при разрушении образца на 4, 6 и 8 частей соответственно.

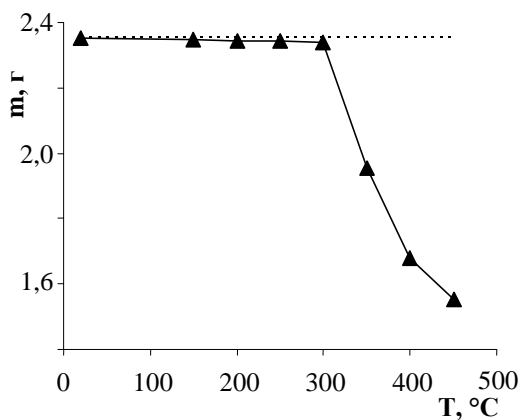


Рис. 2. Зависимость массы образца №2 коричневой керамики ЛТСМ от температуры термообработки

Зависимости относительных объемов открытых поровых каналов и твердой фазы коричневой керамики (образец №2) от температуры термообработки приведены на рис. 3. Температура контролируемой сушки составляла 35...37 °С. В интервале температур 20...300 °С объем твердой фазы не изменяется и составляет в среднем 92,8% (см. рис. 3, кривая 1). С повышением температуры до 400 и 450 °С он возрастает до 93,04...93,12%.

Относительные объемы как больших, так и малых газовых пор не зависят от температуры термообработки (см. рис. 3, кривые 2 и 3). После термообработки при 400 и 450 °С их суммарный объем также не изменился (см. рис. 3, кривая 4).

С увеличением температуры термообработки относительный объем трещин сначала уменьшился в интервале 20...200 °С, а затем достиг постоянной величины со средним значением 0,5% (см. рис. 3, кривая 5). Относительный объем наноразмерных поровых каналов с увеличением температуры до 150 °С уменьшился, затем увеличился (при 200 °С) и практически не менялся до 350 °С, а при 400 и 450 °С стал равен нулю (кривая 6).

Продолжительности стадий удаления воды из больших и малых газовых пор и трещин практически не меняются в интервале 20...350 °С (рис. 4, кривые 2, 3 и 5). С увеличением температуры до 400 и 450 °С продолжительности стадий уменьшаются, по-видимому, из-за увеличения поверхности образца по причине его разрушения на несколько кусков. Продолжительность стадий удаления воды из наноразмерных каналов с увеличением температуры термообработки до 150 °С увеличивается до 3,1 ч, а затем в интервале 150...350 °С существенно уменьшается до 1,86 ч (см. рис. 4, кривая 6). Это указывает на то, что при 150 °С происходит некоторое уменьшение среднего диаметра наноразмерных поровых каналов, а при дальнейшем росте температуры термообработки – его увеличение.

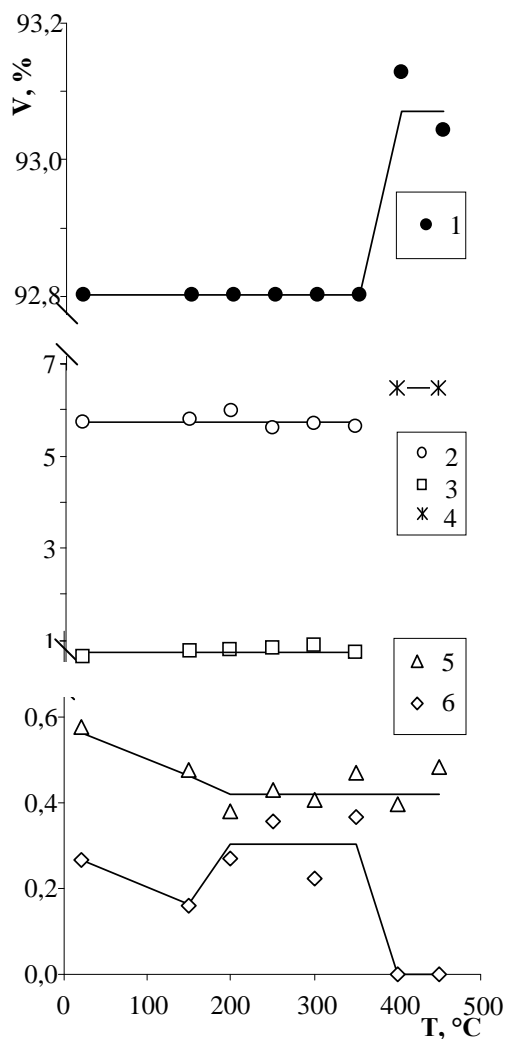


Рис. 3. Зависимости относительных объемов открытых поровых каналов и твердой фазы образца №2 коричневой керамики ЛТСМ от температуры термообработки (1 – твердая фаза; поры газовые: 2 – большие; 3 – малые; 4 – большие и малые (сумма); 5 – трещины; 6 – наноразмерные поровые каналы)

Уменьшение относительного объема трещин в интервале температур 20...150 °С при практически не меняющейся продолжительности удаления воды из них свидетельствует о закрытии части трещин. Уменьшение же объема наноразмерных поровых каналов в этом интервале температур при увеличении продолжительности стадии удаления воды (т. е. уменьшении их среднего диаметра) однозначно свидетельствует о закрытии некоторой их части. Последующее повышение температуры до 200 °С приводит к увеличению их объема, т. е. к открытию части закрывшихся ранее наноразмерных поровых каналов. Постоянство объема наноразмерных поровых каналов и уменьшение продолжительности стадий удаления воды из них в интервале температур 200...350 °С указывает на то, что при этом происходит увеличение их среднего диаметра, которое при 400 °С приводит к их полному закрытию.

Зависимость массы системы «черная керамика–вода» от времени при температуре контролируемой сушки 68 °С имеет также один параллельный оси абсцисс и четыре наклонных линейных участка. Она подобна таковой для системы «коричневая керамика–вода» (см. рис. 1). Анализ данных этой статьи и ранее полученных результатов [5] показал, что стадии I – IV удаления воды из поровых каналов черной керамики ЛТСМ соответствуют газовым порам, трещинам, наноразмерным поровым каналам и нанопорам соответственно. Стадия V соответствует твердой фазе.

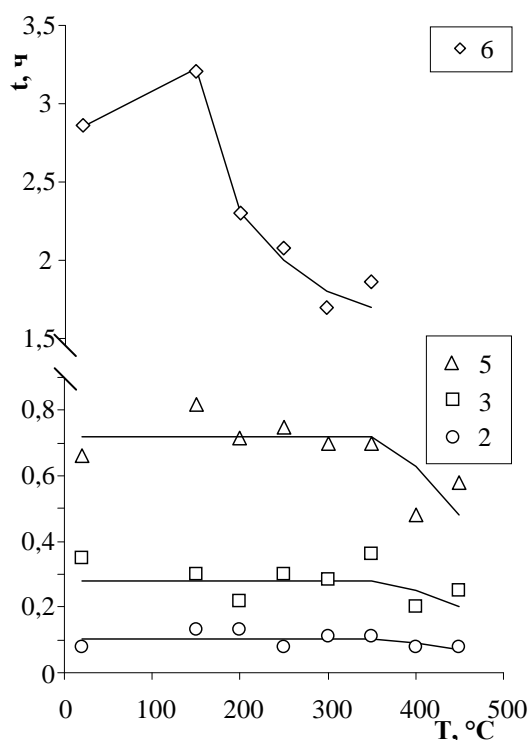


Рис. 4. Зависимости продолжительностей стадий удаления воды из открытых поровых каналов образца №2 коричневой керамики ЛТСМ от температуры термообработки (обозначения см. на рис. 3)

Для изучения поведения составляющих порового пространства ЛТСМ при термообработке провели термообработку образца черной керамики последовательно с продолжительностью по 5 ч при 70, 100, 150, 210, 260, 300, 350, 400, 500, 600, 700 и 800 °С. Масса образца в интервале температур 20...300 °С практически не изменяется и составляет  $(4,276 \pm 0,005)$  г (рис. 5). В интервале температур 300...500 °С масса уменьшается на 0,12...0,2 г через каждые 50 °С в связи с отделением от образца крупинок материала при его разрушении на несколько частей.

Зависимости относительных объемов открытых поровых каналов и твердой фазы черной керамики от температуры термообработки показаны на рис. 6. Температура контролируемой сушки составляла 68...70 °С. С повышением температуры термообработки до 70 °С объем твердой фазы увеличился с 90,2 до 90,83% и далее в интервале 70...300 °С остался постоянным. С ростом температуры до

400 °С он увеличился до 91,6% и далее в интервале 400...800 °С остался постоянным (кривая 1). Относительный объем газовых пор не зависит от температуры термообработки и составляет 7,5% (кривая 2). Относительный объем трещин в интервале 20...300 °С не зависит от температуры термообработки и равен 0,93%. С увеличением температуры до 400 °С он уменьшился до 0,35% и остался таковым до 800 °С (кривая 3). С увеличением температуры до 100 °С относительный объем наноразмерных поровых каналов резко уменьшился с 1,09 до 0,23%, а с увеличением до 150 °С резко увеличился до 0,72%, далее с увеличением до 400 °С несколько уменьшился до 0,42% и до 800 °С не изменялся (кривая 4). Относительный объем нанопор в интервале 20...500 °С не зависел от температуры термообработки и составил 0,19%. С увеличением температуры до 600 °С он уменьшился до нуля и остался таковым до 800 °С (кривая 5).

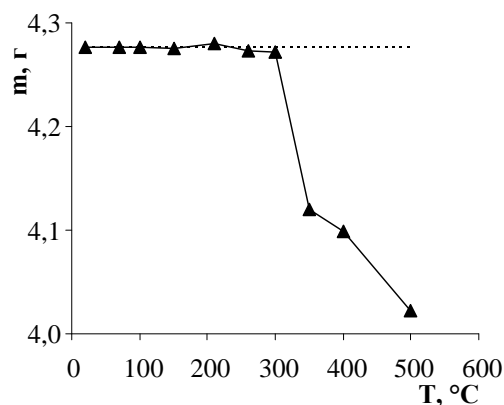


Рис. 5. Зависимость массы образца черной керамики ЛТСМ от температуры термообработки

Продолжительности стадий удаления воды из газовых пор, трещин, наноразмерных поровых каналов и нанопор не зависят от температуры термообработки (рис. 7, кривые 2–5).

Уменьшение относительного объема наноразмерных поровых каналов с увеличением температуры термообработки до 100 °С в сочетании с увеличением относительного объема твердой фазы указывает на закрытие их значительной части (см. рис. 6, кривые 4 и 1). Увеличение объема наноразмерных поровых каналов с последующим повышением температуры свидетельствует об открытии их существенной части (60%). Уменьшение объема трещин в интервале 300...400 °С указывает на закрытие большей части трещин (кривая 3). Уменьшение до нуля объема нанопор в интервале 500...600 °С свидетельствует о закрытии всех нанопор (кривая 5).

## ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Анализ полученных нами ранее результатов [5] показывает, что у черной керамики стадия II соответствует трещинам, а стадия III – наноразмерным поровым каналам. Учитывая, что определение объемов открытых поровых каналов проведено при близких температурах (36...37 и 41...42 °С, табл. 1, 2 [5]), можно сравнить продолжительности стадий удаления воды из поровых каналов. Видно, что про-

должительность стадии II у черной керамики (3,2 ч) близка к продолжительности стадии III у коричневой керамики (3 ч), а стадии III у черной керамики (7,2 ч) близка к продолжительности стадии IV у коричневой керамики (6,94 ч).

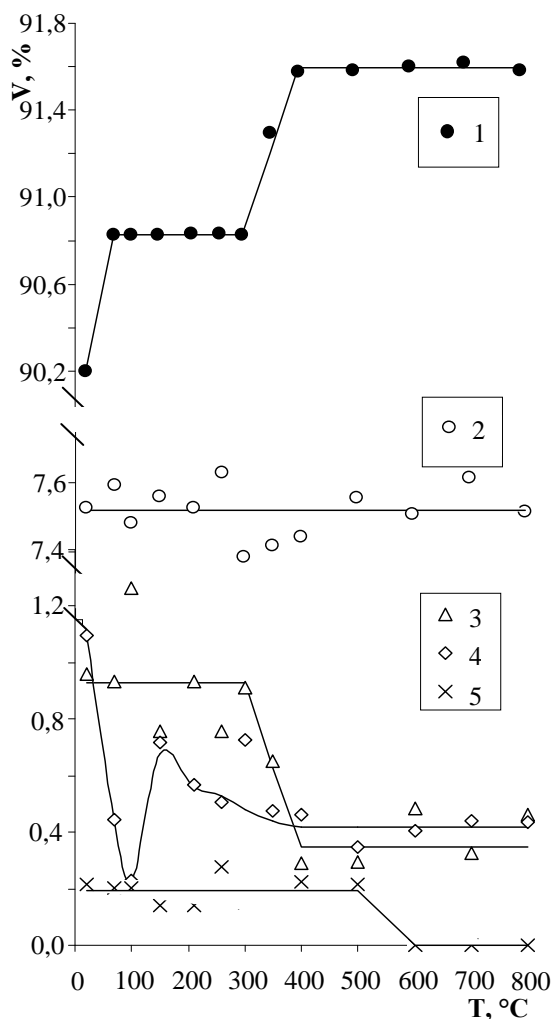


Рис. 6. Зависимости объемов открытых поровых каналов и твердой фазы от температуры термообработки образца черной керамики ЛТСМ (1 – твердая фаза; 2 – газовые поры; 3 – трещины; 4 – наноразмерные поровые каналы; 5 – нанопоры)

Накопленный опыт использования метода определения объемов поровых каналов по удалению рабочей жидкости из них [7, 8] позволяет оценить величину среднего диаметра нанопор у черной керамики в 15...35 нм. Формирование нанопор, по-видимому, произошло при охлаждении ЛТСМ во время аварии и вызвано различием в коэффициенте линейного теплового расширения основной массы стеклофазы и её областей, возможно сформировавшихся в результате ликвации силикатного расплава.

В результате последовательных термообработок образцов коричневой и черной керамик (см. рис. 2 и 5) наблюдается разрушение материала. При температурах термообработки менее 300 °С отмечается отделение от образцов крупинки материала. Термообработка при более высоких температурах приводит к разрушению образцов на несколько частей. Это обусловлено развитием нескольких имеющихся

в образцах трещин при повышении и понижении температуры материалов.

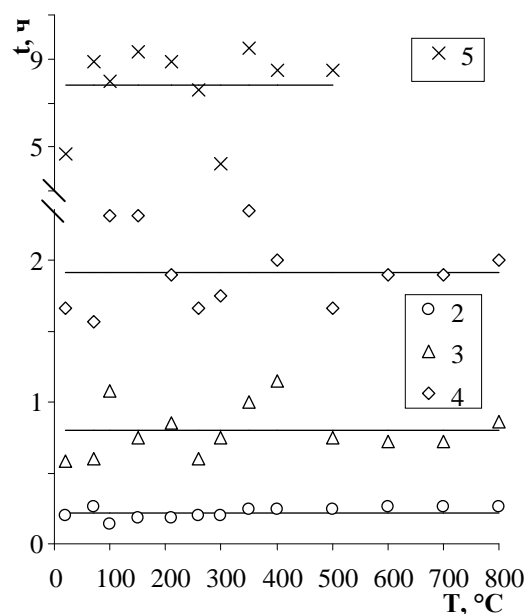


Рис. 7. Зависимости продолжительностей стадий удаления воды из открытых поровых каналов образца черной керамики ЛТСМ от температуры термообработки (обозначения см. на рис. 6)

Экспериментальные данные свидетельствуют о том, что с повышением температуры термообработки поровое пространство ЛТСМ эволюционирует (см. рис. 3 и 6). Термообработка при 100...150 °С приводит к закрытию части наноразмерных поровых каналов как у образцов коричневой (см. рис. 3), так и черной керамик (см. рис. 6). Дальнейшее повышение температуры до 150...200 °С приводит к полному открытию у коричневой керамики или к открытию их большей части у черной керамики. Закрытие части трещин у коричневой керамики происходит в интервале температур 20...200 °С. У черной керамики закрытие части трещин отмечается при повышении температуры до 300...400 °С. Полностью трещины в коричневой керамике закрываются при температуре 530 °С. У черной керамики трещины полностью не закрываются до температуры 800 °С. Нанопоры черной керамики полностью закрылись в интервале 500...600 °С. Объемы газовых пор как у коричневой, так и черной керамик не зависят от температуры термообработки.

Изменения объемов и средних диаметров составляющих порового пространства ЛТСМ при термообработке (см. рис. 3 и 6) еще раз подтверждают соответствие стадий удаления воды из поровых каналов, стадии III у коричневой керамики и стадии II у черной – трещинам, а стадий IV у коричневой керамики и стадии III у черной – наноразмерным каналам.

Поведение наноразмерных поровых каналов однозначно указывает на то, что они являются результатом объединения как минимум некоторой части имеющихся в материале треков  $\alpha$ -частиц. Известно [9], что при использовании метода твердотельных ядерных детекторов для измерения активности

$\alpha$ -активных материалов применяют пластины из силикатного стекла. После выдержки исследуемых образцов на пластинах и химического травления на их поверхности подсчитывают количество треков  $\alpha$ -частиц. Для последующих измерений исследователи добиваются удаления  $\alpha$ -треков с поверхности стекла с помощью термообработки при температуре 150 °С в течение нескольких часов.

Оценка величины поверхности всех составляющих порового пространства исходной (не термообработанной) черной керамики – газовых пор, трещин, наноразмерных каналов и нанопор, при использовании данных их объемов (см. таблицу и рис. 3, 6) и средних диаметров (или толщин) [5] показывает, что их поверхности в 1 см<sup>3</sup> ЛТСМ соответственно равны 62, 90, 1700 и 76 см<sup>2</sup>. В ряду уменьшения удельной поверхности составляющие порового пространства располагаются таким образом: наноразмерные поровые каналы, трещины, нанопоры, газовые поры. Это коррелирует с рядом температур, при которых наблюдаются уменьшения объемов составляющих порового пространства с ростом температуры термообработки. Температура начала уменьшения объема наноразмерных каналов имеет наименьшее значение (100...150) °С, по сравнению с таковыми других, составляющей порового пространства по причине того, что наноразмерные каналы имеют наибольшую удельную поверхность. Также следует отметить, что уменьшение объема при относительно низких температурах термообработки отмечается у составляющих порового пространства с большим отношением поверхности к их объему – у наноразмерных каналов и трещин. Они сформировались позже в результате внутренних процессов, проходивших в материалах. Такие составляющие структуры не могли образоваться при высоких температурах, характерных для формирования ЛТСМ во время аварии, как, например, газовые поры. Газовые поры, имеющие форму, близкую к сферической, и относительно большой средний диаметр в несколько единиц или десятков микрометров [4, 5], в исследованном интервале температур термообработки не эволюционировали.

По данным расчетно-теоретических оценок [10] среди радиационных повреждений в ЛТСМ, вызванных всеми возможными в условиях объекта «Укрытие» излучениями ( $\alpha$ - и  $\beta$ -частицами,  $\gamma$ -квантами, нейтронами и т. д.), основной вклад в формирование дефектов структуры вносят повреждения за счет  $\alpha$ -частиц и тяжелых ядер отдачи. Принято считать, что 90% всех радиационных дефектов обеспечиваются вследствие тяжелых ядер отдачи [10]. Однако только открытые наноразмерные поровые каналы, среди всех составляющих порового пространства, являются дефектами структуры, обусловленными самооблучением ЛТСМ. Они сформировались в результате объединения, по крайней мере, части имеющихся в материале треков  $\alpha$ -частиц.

Газовые поры сформировались при охлаждении ЛТСМ за счет выделения газов из расплава при охлаждении по причине уменьшения их растворимости [1–3]. Газовые поры в стеклах практически

всегда являются закрытыми [11]. Но уже через 11...12 лет после аварии было установлено [12, 13], что ЛТСМ имеют открытую пористость, представленную двумя физически существенно различающимися по размерам порами: макро- и ультрамикроскопическими. По-видимому, уже тогда начали формироваться наноразмерные поровые каналы, которые соединили между собой и с внешней средой закрытые газовые поры. Уже в то время высказывались предположения, что формирование ультрамикропор связано с радиационным дефектообразованием [13].

Трещины сформировались позднее, ориентировочно в 2004–2011 годах, за счет увеличения объема кристаллических включений оксидов урана при их окислении, о чем свидетельствует значительное уменьшение механических свойств ЛТСМ [14].

## ВЫВОДЫ

Проведенные исследования показали, что составляющие порового пространства коричневой и черной керамики ЛТСМ объекта «Укрытие» эволюционируют в результате термообработки. С повышением температуры происходит частичное закрытие наноразмерных поровых каналов при 100...150 °С у коричневой и черной керамики, трещин при 200 °С у коричневой и при 400 °С у черной керамики, полное закрытие наноразмерных поровых каналов при 400 °С и трещин при 530 °С у коричневой керамики и нанопор при 600 °С у черной керамики. Движущей силой процесса уменьшения объемов составляющих порового пространства является понижение поверхностной энергии за счет уменьшения площади их удельной поверхности.

Установлена природа формирования открытых наноразмерных поровых каналов в ЛТСМ. Наноканалы являются результатом объединения, по крайней мере, части треков  $\alpha$ -частиц, образовавшихся в ЛТСМ в результате  $\alpha$ -распада трансураниевых изотопов при самооблучении в течение длительного периода времени (до десяти лет). Поведение при термообработке (частичное закрытие) наноразмерных поровых каналов в ЛТСМ совпадает с поведением треков  $\alpha$ -частиц в силикатном стекле, используемом для измерения активности образцов, содержащих трансураниевые радионуклиды, в методе твердотельных ядерных детекторов.

Показано, что наноразмерные поровые каналы и трещины являются составляющими порового пространства ЛТСМ с большим отношением их поверхности к объему. Это однозначно указывает на то, что трещины во внутренней части материала (не на поверхности) и наноразмерные каналы не могут быть результатом «приготовления» ЛТСМ во время аварии, а сформировались позже в результате внутренних процессов, проходивших как ранее, так и сейчас в ЛТСМ.

## БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Р.В. Арутюнян, Л.А. Большов, А.А. Боровой, Е.П. Велихов. *Ядерное топливо в объекте «Укрытие» Чернобыльской АЭС*. М.: «Наука», 2010, 240 с.

2. В.И. Краснов, Э.П. Пазухин, Н.М. Огородников и др. *Изучение физико-химических свойств ядерно-опасных делящихся материалов объекта «Укрытие», влияющих на степень ядерной и радиационной безопасности объекта «Укрытие»*: Отчет о НИР ИПБ АЭС №3970, Чернобыль, 2007, 217 с.
3. Э.М. Пазухин. Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока Чернобыльской АЭС: топография, физико-химические свойства, сценарий образования // *Радиохимия*. 1994, в. 2, с. 97-142.
4. С.В. Габелков, А.А. Ключников, Е.Е. Олейник, П.Е. Пархомчук, Г.Ф. Чемерский. Наноразмерные поровые каналы в лавообразных топливосодержащих массах объекта «Укрытие» // *Тезисы докладов 4 Междунар. конф. «HighMat-Tech»*, Киев, 2013, с. 197.
5. С.В. Габелков, А.А. Ключников, Е.Е. Олейник и др. Наноразмерные поровые каналы как составляющая порового пространства лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие» // *Проблемы безпеки атомних станцій і Чорнобиля*. 2014, в. 22, с. 70-75.
6. С.В. Габелков, В.В. Макаренко, А.Г. Миронова и др. Определение объема поровых каналов пористых материалов по удалению из них воды при испарении // *Огнеупоры и техническая керамика*. 2006, №12, с. 41-47.
7. С.В. Габелков. Физические основы и опыт применения метода определения объемов совокупностей поровых каналов в порошках и пористых телах // *ВАНТ. Серия «Вакуум, чистые материалы, сверхпроводники»*. 2011, №6, с. 71-75.
8. С.В. Габелков, Р.В. Тарасов, А.Г. Миронова и др. Эволюция структурной организации ксерогеля при получении наноразмерного порошка оксида циркония // *Наносистемы, наноматериалы, нанотехнологии*. 2008, т. 6, в. 4, с. 1315-1330.
9. С. Дюрани, Р. Бал. *Твердотельные ядерные детекторы* / Пер. с англ. М.: «Энергоатомиздат», 1990, 264 с.
10. В.Г. Барьяхтар, В.В. Гончар, А.В. Жидков, А.А. Ключников. *Радиационные повреждения в лавообразных топливосодержащих материалах объекта «Укрытие»*: Препринт МНТЦ «Укрытие», Чернобыль, 1998, 17 с.
11. О.В. Кузьмина. *Химическая технология стекла и ситаллов*: Учебное пособие. Томск: Томский политехнический университет, 2012, 184 с.
12. А.В. Жидков, В.М. Гончар, П.Е. Пархомчук и др. *Исследование взаимодействия лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие» с водой и атмосферой*: Отчет о НИР МНТЦ «Укрытие», инв. №3651, Чернобыль, 1997, 68 с.
13. А.В. Жидков, В.М. Гончар, П.Е. Пархомчук и др. *Доступная пористость и молекулярно-ситовые свойства лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие»*: Отчет о НИР МНТЦ «Укрытие», №3723, Чернобыль, 1998, 48 с.
14. С.В. Габелков, П.Е. Пархомчук, Г.Ф. Чемерский та ін. *Вивчення фізичних механізмів дії внутрішніх і структурних чинників, відповідальних за процеси деградації паливовмісних матеріалів об'єкту «Укриття» в період його переведення в екологічно безпечну систему*: Звіт про НДР ПІБ АЕС НАН У №4007, Чорнобиль, 2012, 56 с.

Статья поступила в редакцию 20.01.2015 г.

## ПРИРОДА ФОРМУВАННЯ НАНОРОЗМІРНИХ ПОРОВИХ КАНАЛІВ ЛАВОПОДІБНИХ ПАЛИВОВМІСНИХ МАТЕРІАЛІВ ОБ'ЄКТУ «УКРИТТЯ»

*С.В. Габелков, О.О. Ключников, П.Е. Пархомчук, Г.Ф. Чемерський*

Досліджено еволюцію складових порового простору коричневої та чорної керамік лавоподібних паливовмісних матеріалів об'єкту «Укриття» при термообробці. З підвищенням температури частина нанорозмірних порових каналів закривається при 100...150 °С, частина тріщин – при 200 і 400 °С, повністю закриваються нанорозмірні канали при 400 °С, тріщини – при 530 °С, а нанопори – при 600 °С. Відкриті нанорозмірні канали є результатом об'єднання принаймні частини треків  $\alpha$ -часток, що утворилися за рахунок  $\alpha$ -розпаду трансуранових радіонуклідів при самопромінненні протягом тривалого періоду часу. Нанорозмірні порові канали та тріщини сформувалися в результаті процесів, що проходять в матеріалах значно пізніше їх «приготування» під час аварії.

## NATURE OF FORMATION OF NANOSIZED PORE CHANNELS OF LAVA-LIKE FUEL-CONTAINING MATERIALS OF “SHELTER” OBJECT

*S.V. Gabielkov, A.A. Klyuchnikov, P.E. Parkhomchuk, G.F. Chemersky*

The evolution of components of pore space of brown and black ceramic lava-like fuel-containing materials of object "Shelter" during heat treatment was investigated. With increasing temperature part of the nanoscale pore channels closed at 100...150 °С, part of the cracks – at 200 and 400 °С, all nanoscale channels closed at 400 °С, cracks – 530 °С, and the nanopores – at 600 °С. Open nanoscale channels are the result of combining at least part of  $\alpha$ -particles tracks formed at the expense of  $\alpha$ -decay of transuranic radionuclides at self-irradiation during the long periods of time. Nanoscale pore channels and cracks formed as results of the processes taking place in the materials much later their “producing” during the crash.