

# AMORF ANYAGOK ÖSSZETÉTELÉNEK OPTIMALIZÁLÁSA RADIOAKTÍV HULLADÉKOK KONDICIONÁLÁSÁRA

Fábián Margit  
MTA Energiatudományi Kutatóközpont

A radioaktív hulladékok végső elhelyezése a jelen és jövő egyre sürgetőbb környezeti problémája. Nem képzelhető el az atomenergia, a nukleáris medicina és a nukleáris ipar más ágazatai által nyújtott előnyök igénybevétele anélkül, hogy ne tudnánk választ adni a hulladék végleges elhelyezésének kérdésére.

Napjainkban általánosan elfogadott műszaki megoldás, hogy a nagy aktivitású radioaktív hulladékok mélyen fekvő geológiai tárolókban elhelyezve szigeteljük el a bioszférától. A zárt és nyílt üzemyanagciklus esetén is ez a műszaki megoldás tűnik elfogadhatónak és biztonságosnak. A mélygeológiai tároló kialakítása többszörös védelmi rendszer megépítésével valósul meg. Az itt bemutatott munka a hulladékok kondicionálásával foglalkozik, amely „mérnöki gátnak” tekinthető. A kondicionálás célja a hulladék szilárdítása, valamint a hulladékban található szennyezők immobilizálása. A folyamat során a hulladékot különféle kötőanyagokba ágyazzák, stabil hulladékmátrixot képezve. A nagy aktivitású hulladékok elhelyezésére az amorf rendszerek a legalkalmasabbak [1].

A kondicionálási eljárások során figyelembe kell venni a gazdaságos előállítás szempontjait, továbbá követelmény a hulladék stabil, biztonságos tárolása és a tárolásra való előkészítése is. A kondicionáló anyag (melyet mátrixanyagnak hívunk) aránya minél kisebb legyen a végleges hulladékban, az előállítás ipari méretben gazdaságos legyen, miközben stabil beépülés valósuljon meg. Javítani kell tehát a hulladék/mátrix

arányt, a mátrixösszetétel a legkülönbözőbb típusú hulladék befogadására legyen alkalmas, jó kémiai ellenállóképességgel rendelkezzen (azaz stabilitását őrizze meg a hulladék jelenlétében is).

Az eddig ismert amorf összetételek nem tartalmazzák az összes adatot (több esetben iparjogvédelmi előírás miatt), amely segítségével kondicionálni lehet a hulladékot.

Legfőbb célom a különböző összetételű radioaktív hulladékok végleges tárolásához megtalálni a megfelelő mátrixüveget. Továbbá fontos feladat meghatározni a maximálisan adalékolható hulladék mennyiségét, vizsgálni a radionuklidok beépülését és hatásukat az üveg stabilitására, higroszkópos tulajdonságaira.

A minták vizsgálatához azonos előállítási feltételeket alkalmaztam, ugyanazokat a mérési eljárásokat használtam és a kiértékelés is hasonló módon történt. Mindezek nagyban hozzájárultak ahhoz, hogy az eredményeket megfelelően tudjam összehasonlítani, a kapott lehetséges szerkezeteket értelmezni. Neutron- és röntgendiffrakciós méréseim feldolgozására a Reverse Monte Carlo (RMC) szimulációs módszert alkalmaztam. A módszer ezen mintákra történő alkalmazása kihívást jelent, eddigi tanulmányokat tekintve nincs jól bevált séma. A peremfeltételeket az egyszerű és a több komponensű összetételekre is külön meg kell határozni, ezeket a minta összetevőinek függvényében lehet megadni.

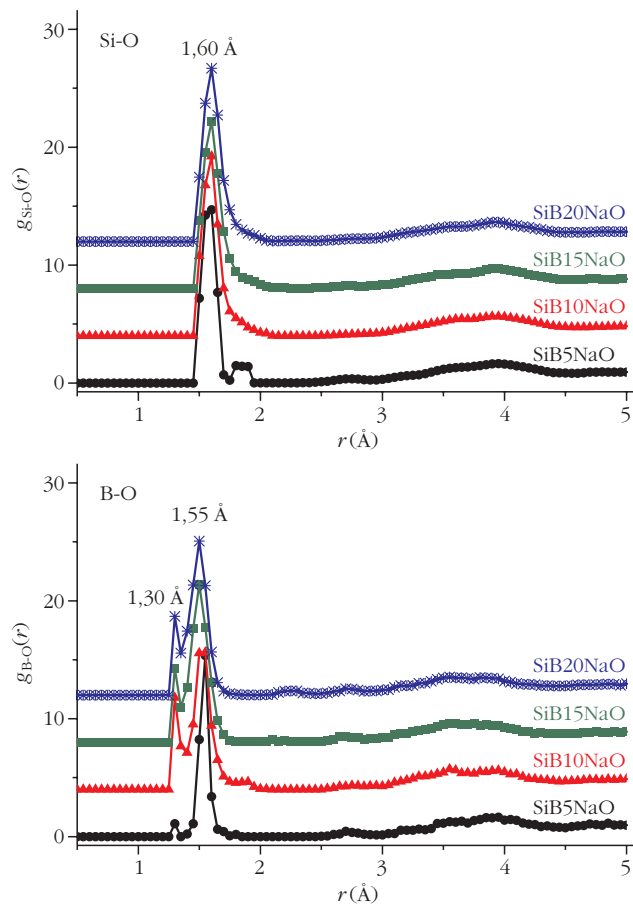
## Kísérleti háttér

Az OTKA-PD pályázat beruházási tételeiként sikerült kialakítani egy radioaktív anyagok használatára is alkalmas, biztonságos minta-előállítási környezetet, be-



Fábíán Margit vegyész-fizikus diplomáját 2003-ban a Babeş-Bolyai Tudományegyetemen, doktori fokozatát 2009-ben az ELTE-n szerezte. 2003–2011 között az MTA Szilárdtestfizikai és Optikai Kutatóintézet, 2012 óta az MTA Energiatudományi Kutatóközpont munkatársa. Kutatási tevékenysége a nagyaktivitású radioaktív hulladékok biztonságos tárolása. Módszert fejlesztett ki stabil, de egyszerű kondicionáló összetételek előállítására. Több tudománynpszerűsítő és -szervező tevékenységben vesz részt.

Köszönetet mondok mindenekelőtt *Sváb Erzsébetnek* és *Mészáros Györgynek* (MTA Wigner FK), akiknek a szakmai és emberi támogatását sok éven keresztül élvezhettem. A röntgendiffrakciós mérések során jelentős segítséget kaptam *Martin von Zimmermanntól* (HASYLAB). A munkát az OTKA-PD 109384 pályázat támogatta.



1. ábra. A Si-O és B-O parciális párkorrelációs függvények és koordinációs számeloszlások RMC modellezéssel számolva az  $\text{SiB}_x\text{NaO}$ , azaz B5, B10, B15 és B20 mintákra.

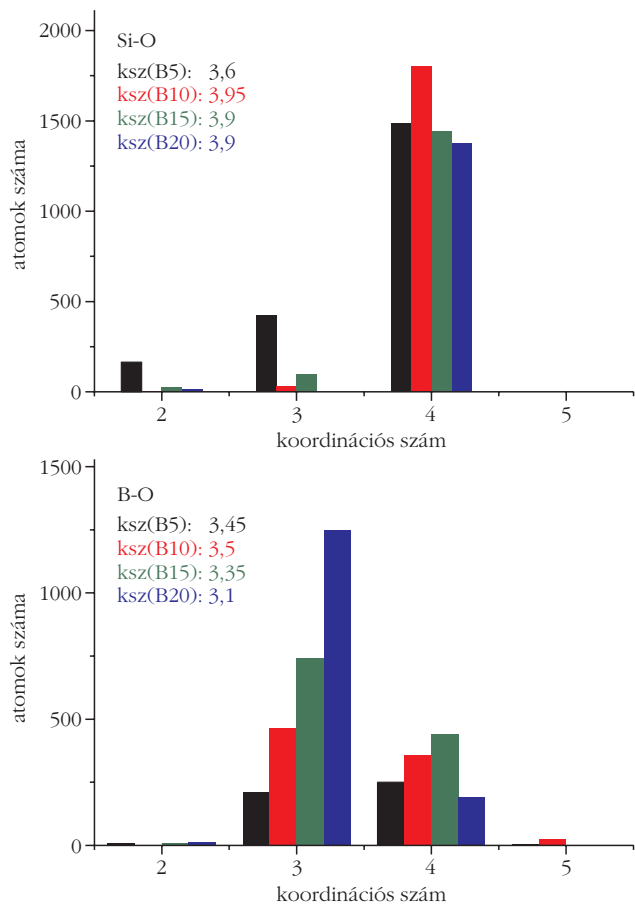
rendezni egy minta-előállító laboratóriumot a Budapesti Kutatóreaktor épületében.

Az elektromos fűtésű, magas hőmérsékletű LAC VP 10/17 típusú kályha maximális hőmérséklete 1700 °C, így teljes mértékben elegendő tesz a vizsgált üvegek előállítási követelményeinek. A minták olvasztással készültek, majd olvadátkállapotból (1300–1450 °C) gyorshűtéssel értem el az üvegállapotot.

Kiinduló anyagként a következő oxidokat használtam:  $\text{SiO}_2$  és  $\text{B}_2\text{O}_3$  (üvegalkotó oxidok az üveg amorf állapotban való előállításáért felelősek),  $\text{Na}_2\text{O}$  és  $\text{BaO}$  (módosító oxidok, az olvasztás körülményeinek optimalizálásáért alkalmazzuk őket),  $\text{ZrO}_2$  (stabilizáló oxid, a kristályosodás elkerüléséért adjuk a rendszerhez), valamint  $\text{UO}_3$ ,  $\text{CeO}_2$  és  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  voltak. A természetes bór nagy neutronabszorpciója miatt B-11 izotópban dúsított (99,6% – Sigma Aldrich Co.) diborátot használtam.

Neutron- és röntgendiffrakciós módszereket alkalmaztam az üvegminék szerkezetvizsgálatára. Neutrondiffrakciós méréseimet a Budapesti Kutatóreaktor 9. számú termikus, vízszintes, tangenciális csatornájánál működő PSD helyzetérzékeny neutrondiffraktométeren végeztem [2].

Kiegészítő mérésekre került sor a Saclay-i kutatóreaktornál üzemelő 7C2 [3] berendezésen és a Los Alamos-i impulzus-neutronforrásnál működő NPDF és HIPPO [4] berendezéseken. Utóbbi mérőhelyek



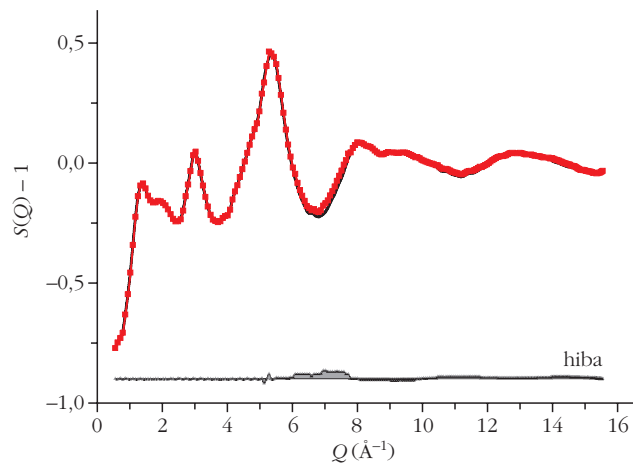
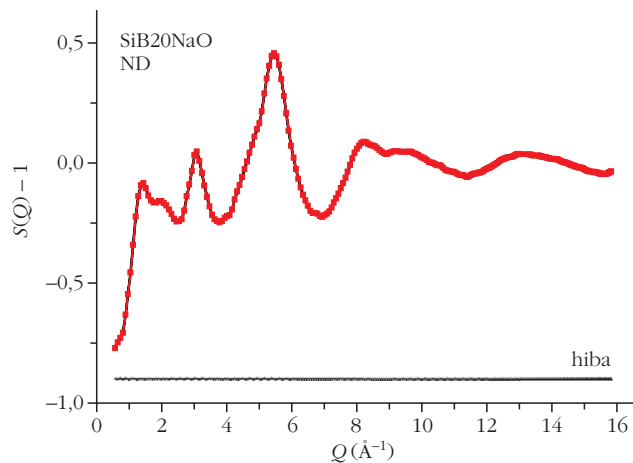
lehetővé tették a mérés kiterjesztését nagy  $Q$  tartományig<sup>1</sup>, jellemzően 20–35  $\text{\AA}^{-1}$ -ig. Ennek előnye, hogy az  $r$ -térben az atomi párkorrelációs függvények számításánál lényegesen jobb felbontást kapunk ( $\Delta r = \pi/Q_{\text{max}}$ ).

A könnyű atomok (B, O, Si) környezetére a neutrondiffrakció ad pontosabb szerkezeti információt, míg a nehéz atomok (Ba, Zr, U) a röntgendiffrakciós mérésben figyelhetők meg jobban. A vizsgált többkomponensű összetételek könnyű és nehéz atomokat egyaránt tartalmaznak, ezért indokolt röntgendiffrakciós méréseket is végezni. Utóbbiakat a hamburgi, Doris szinkrotronnál működő BW5 diffraktométeren [5] végeztem, 109,5 keV energián, amely a  $Q = 0,5\text{--}25 \text{\AA}^{-1}$  szórési tartományt tette elérhetővé. A kétfajta diffrakciós mérés együttes kiértékelését az RMC szimulációs programmal végeztük.

A szerkezet jellemzéséhez elsősorban a  $g_{ij}(r)$  parciális párkorrelációs függvényeket<sup>2</sup> és a koordinációs

<sup>1</sup> A  $Q$  szórési amplitúdó, a szórési vektor ( $Q = k - k'$ , ahol  $k$  a beérkező, és  $k'$  a  $\Delta\Omega$  térszögben szóródott neutronok hullámvektora) abszolút értéke, amit a  $\lambda$  hullámhossz és a  $2\Theta$  szórési Bragg-szög ismeretében az alábbi képlet alapján kapunk meg:  $Q = 4\pi \sin\Theta/\lambda$ .

<sup>2</sup> A  $g_{ij}(r)$  parciális párkorrelációs függvény megmutatja, hogy egy  $i$  típusú részecskétől  $r$  távolságban a  $j$  típusú részecskék lokális sűrűsége hogyan aránylik az  $j$  típusú részecskék átlagos sűrűségéhez. A  $g_{ij}(r)$  függvények invariánsak az  $i \leftrightarrow j$  részecskékre nézve, hiszen a két részecske közötti távolság azonos, a  $g_{ij}(r) = g_{ji}(r)$ .



2. ábra. A SiB20NaO mintára a kísérleti és RMC szimulációval illesztett neutrodiffrakciós szerkezeti függvények (jobb oldalon az 1,55 Å-ös B-O csúcs kizárásával számított függvény). A kísérleti görbén fekete vonal jelöli az RMC-vel előállított modellt.

számokat<sup>3</sup> határoztuk meg, valamint – egyszerűbb összetételeknél – a kötési szögeloszlásokat és a lehetséges gyűrűeloszlásokat. Az egyes atompárokat jellemző parciális párkorrelációs függvények meghatározásához itt is az RMC szimulációs módszert [6, 7] használtuk, amely széles körben alkalmazott eljárás a rendezetlen kondenzált rendszerek diffrakciós spektrumainak értelmezésére.

## Eredmények és következtetések

### Háromkomponensű SiNaO minta

Előállítottam a  $70\text{SiO}_2 \cdot 30\text{Na}_2\text{O}$  alapösszetételű nátriumszilikát üvegmintát, amelynek kombinált neutron- és röntgendiffrakciós méréseire együttes RMC szimulációt alkalmazva, meghatároztuk az eddig ismert egyik legpontosabb szerkezeti modellt. Megadva a parciális párkorrelációs függvényeket, a koordinációs számokat, a 3-részecske szögeloszlás-függvényeket, valamint a kovalens kötésekkel álló Si-O háló szerkezetet alkotó gyűrűk eloszlását. Legfontosabb megállapítások, hogy az oxigénatomok körülbelül 63%-a vesz részt a  $\text{SiO}_4$  tetraéderek egymáshoz való kötésében, míg körülbelül 37%-a terminális, azaz a Si-O lánc megszakad és az oxigén nátriumhoz is kötődik. A Na-O kötéstávolság 2,29 Å és két szomszédos Na szeret egy adott O környezetében lenni, ami a szerkezet kompaktságára utal [8].

### Négykomponensű SiBNaO mintasorozat

A négykomponensű  $(75-x)\text{SiO}_2 \cdot x\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 25\text{Na}_2\text{O}$  ( $x = 5-20$  mol%) alapösszetételű nátrium-boroszilikát üvegsorozat rövid távú rendjét is neutron- és röntgendiffrakciós mérések, valamint RMC szimuláció segítségével vizsgáltuk. A parciális párkorrelációs függvényeket és a koordinációs számokat (KSz) meghatá-

rozva választ kaphatunk az üveg szerkezetének kialakulására (1. ábra).

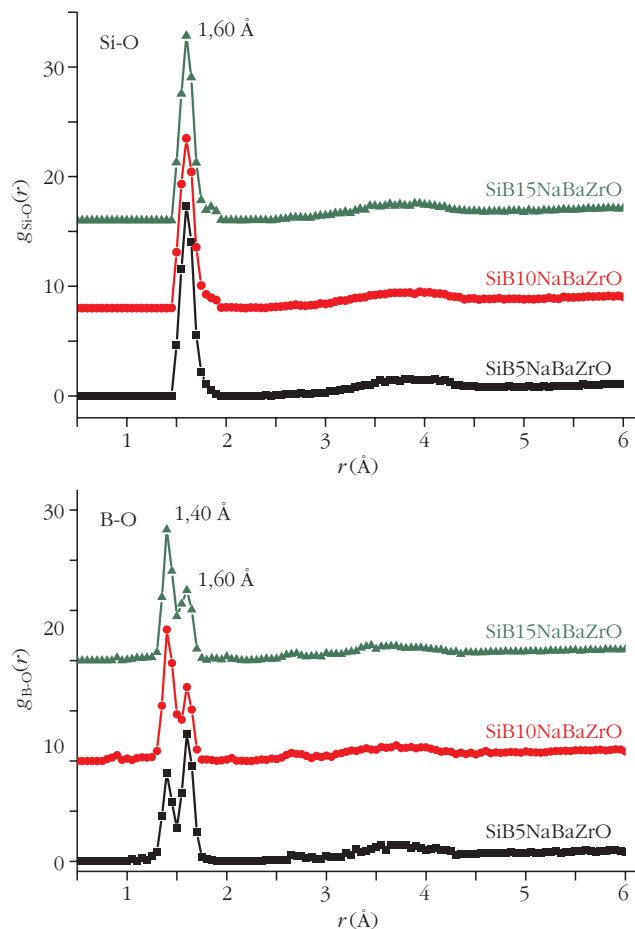
Legfontosabb megállapításunk az, hogy a Na-atom bevitele a hármas koordinációval rendelkező B-atomok környezetét részben átalakítja és megjelennek a négyes koordináltaságú B-atomok. Az  $r_{\text{Si-O}} = 1,60 \pm 0,01$  Å távolság, valamint a 3,6–3,9 közötti Si-O koordinációs számok a tetraéderez  $\text{SiO}_4$  kialakulását mutatják. Ezek az értékek az előzőleg vizsgált amorf  $70\text{SiO}_2 \cdot 30\text{Na}_2\text{O}$  munkánk eredményével megegyezők. A B-O elsőszomszéd-távolságra kapott 1,30 és  $1,55 \pm 0,05$  Å értékeknél – a koncentráció függvényében – intenzitásváltozás figyelhető meg. (Az áttekinthetőség kedvéért a vizsgált üvegek Si-O és B-O távolságait a cikk végén külön táblázatban is közöljük). Mivel az 1,55 Å-ös B-O csúcs átfed a 1,60 Å-ös Si-O csúccsal, felmerül a gyanú, hogy a B-O és Si-O parciális párkorrelációs függvények szétválasztása nem megfelelő. Ezért ellenőrző szimulációs futtatásokat végeztünk, amelyekben az 1,55 Å-nél található B-O csúcs kialakulását kizártuk. Ennek eredményeként a szerkezeti függvény<sup>4</sup> illeszkedése romlott (2. ábra). Mindezek alapján arra következtetünk, hogy a fenti B-O távolság valós, és a vizsgált üvegekben  $\text{BO}_4$  és  $\text{SiO}_4$  szerkezeti egységek találhatóak [9].

### Hatkomponensű SiBNaBaZrO mintasorozat

A  $(65-x)\text{SiO}_2 \cdot x\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 25\text{Na}_2\text{O} \cdot 5\text{BaO} \cdot 5\text{ZrO}_2$  ( $x = 5-15$  mol%) hatkomponensű sorozatot számos előállítási próbálkozás előzte meg. A mátrixüveg összetételének optimalizálása bonyolult, de végül sikeres folyamatnak bizonyult. Az előzőekhez hasonlóan erre a rendszerre is meghatároztuk az alapszerkezetet jellemző legfontosabb atompárok parciális párkorrelációs függvényeit és a koordinációszám-eloszlásokat (3. ábra).

<sup>3</sup> A KSz koordinációs szám megadja, hogy egy  $i$  típusú atomot átlagosan hány  $j$  típusú atom vesz körül egy megadott távolságtartományban.

<sup>4</sup> Az  $S(Q)$  szerkezeti függvény a szórtintenzitás-eloszlásból számolt koherens, rugalmas szórás normált alakja, figyelembe véve a háttér, abszorpció és az adott mérőberendezésre jellemző egyéb korrekciós tényezőket.



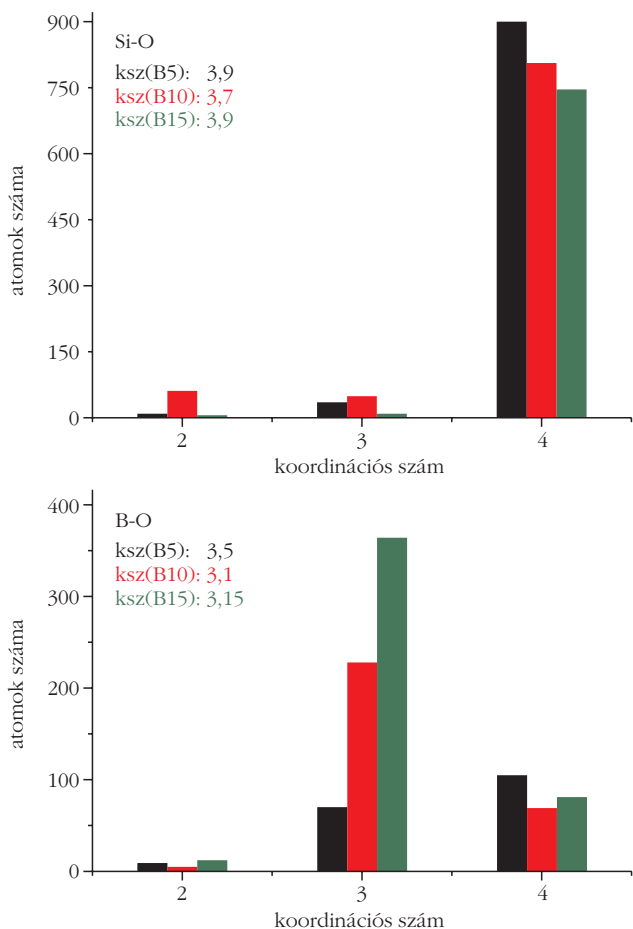
3. ábra. A Si-O és B-O parciális párkorrelációs függvények és koordinációs számeloszlások RMC modellezéssel számolva az  $\text{SiB}_x\text{NaBaZrO}$ , azaz B5, B10, és B15 mintákra.

Megállapítottuk, hogy a mátrixüveg szerkezeti felépítésében elsősorban a tetraéderez koordináltóságú  $(\text{SiO}_4)^{4-}$  egységek játszanak fontos szerepet, míg a bór 3-as és 4-es koordináltóságú oxigén környezetben helyezkedik el. A B-O eloszlásra most is két karakterisztikus elsőszomszéd-távolságot kapunk  $1,40 \pm 0,01$  Å, illetve  $1,60 \pm 0,01$  Å-nél. A bór itt is beépül a Si-alapú hálószerkezetbe és  $^{13}\text{B-O-}^{14}\text{Si}^5$ , illetve  $^{14}\text{B-O-}^{14}\text{Si}$  vegyes láncok alakulnak ki. További eredmény, hogy a Zr-atom, a Zr-O párkorrelációs függvények és a koordinációs számok alapján mintáinkban üvegképző szerepet is betölt („töltéskompENZáló” kationként a kettőnél kevesebb Si/B szomszédal rendelkező oxigénekhez köt, lezárva a felszakadt hálózatot) [10, 11].

### Hétkomponensű $\text{SiBNaBaZrUO}$ mintasorozat

Kísérleteink alapján bebizonyítottuk, hogy az optimalizált mátrixüveg-összetétel 30 s%  $\text{UO}_3$  befogadására alkalmas. Előállítottam a 70 s%  $[(65-x)\text{SiO}_2-x\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 25\text{Na}_2\text{O} \cdot 5\text{BaO} \cdot 5\text{ZrO}_2] + 30$  s%  $\text{UO}_3$  ( $x = 5, 10, 15$  és 20, rövidített jelöléssel UB5, UB10, UB15, illetve UB20) sorozatot is. Az RMC program által generált

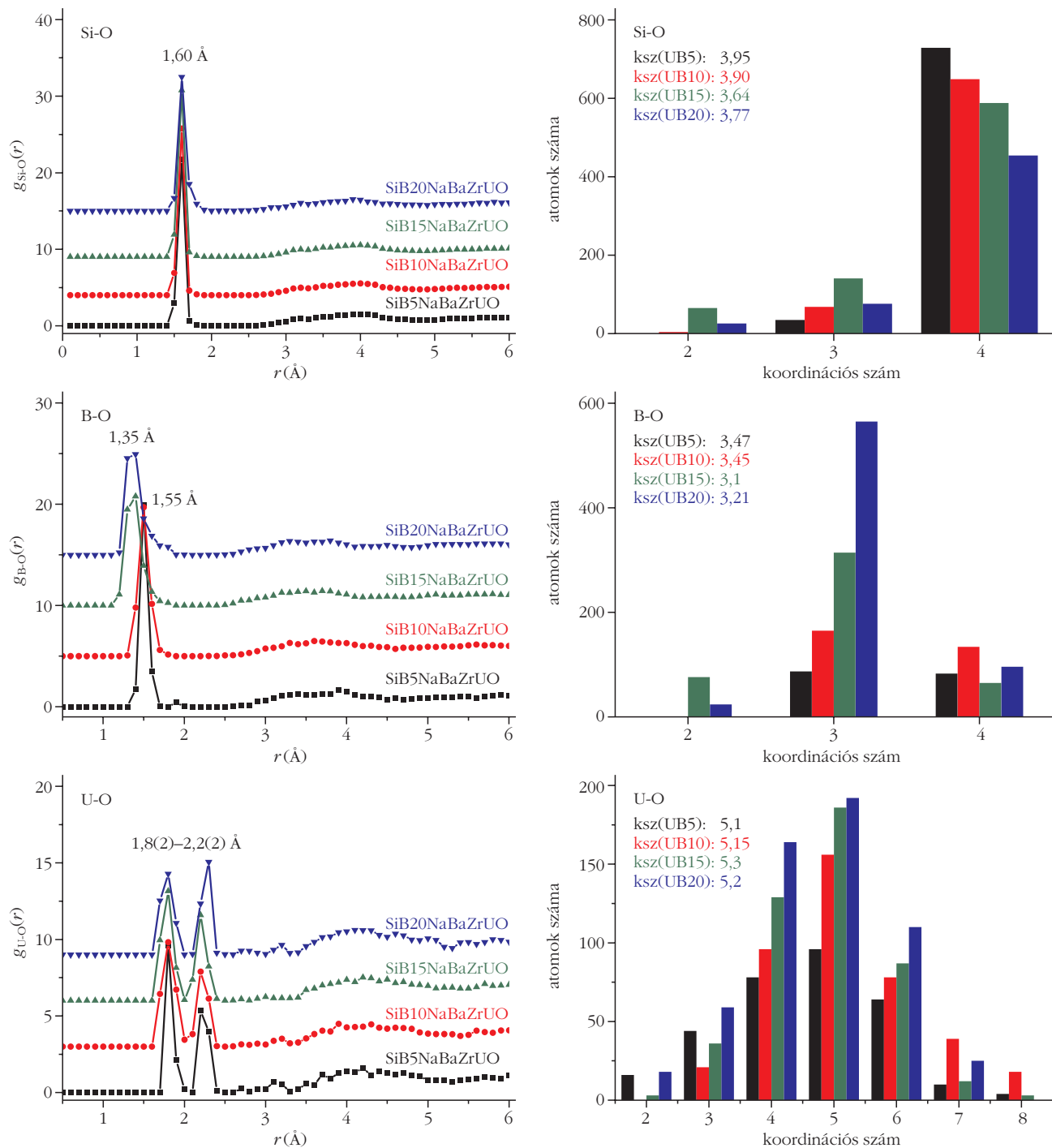
<sup>5</sup>  $^{13}\text{B}$  – a felső indexben szereplő szám az illető atom koordináltóságát jelenti.



szerkezeti függvények mindhárom minta esetén jó egyezést mutatnak a kísérleti spektrumokkal, ugyanakkor azt is megfigyelhetjük, hogy a Si-O és B-O parciális párkorrelációs függvények és a koordinációs számok hasonlítanak az egyszerűbb összetételeknél kapott eredményekhez (4. ábra).

Fontos megemlíteni, hogy adminisztratív okokból ezeken a mintákon csak a budapesti PSD diffraktométeren tudtunk neutrondiffrakciós méréseket végezni, így több párkorrelációs függvény  $r$ -térbeli felbontása gyengébb. Ennek tulajdonítható például a B-O csúcs felhasadásának elmaradása. A csúcs eltolódása az összetétel függvényében ( $1,55$  Å  $\rightarrow$   $1,35$  Å) viszont most is megfigyelhető.

Megállapítottuk, hogy az  $\text{UO}_3$  tartalmú sorozat kevésbé hajlamos a kristályosodásra, mint az urán nélküli mátrixüveg, és higroszkópos tulajdonságai is kedvezőbbek. Az U-O parciális párkorrelációs függvény éles elsőszomszéd-eloszlást mutat  $1,80 \pm 0,05$  Å (UB5, UB10) és  $1,82 \pm 0,05$  Å (UB15, UB20), illetve  $2,20 \pm 0,05$  Å (UB5, UB10, UB15) és  $2,22 \pm 0,05$  Å (UB20) értékeknél. Az U-atomot átlagosan 5,2 O-atom veszi körül. Irodalmi adatok alapján [12] ezek a távolságok jól megfeleltethetők az  $\text{UO}_2 \cdot \text{SiO}_2$  összetételben lévő uránil kristályos szerkezetben a hatos koordináltóságú U körüli axiális (1,82) és ekvatoriális (2,22) U-O távolságoknak (5. ábra).

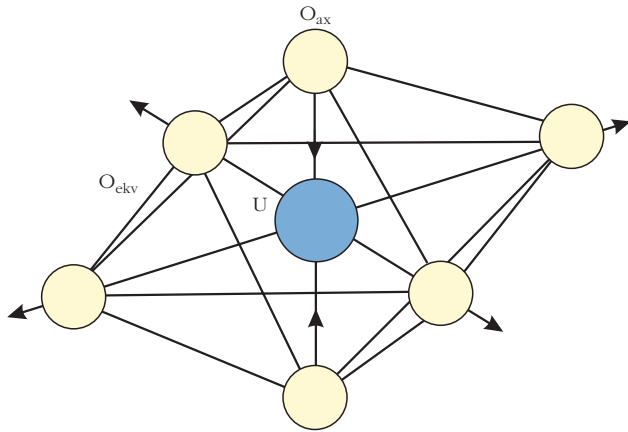


4. ábra. A Si-O és B-O parciális párkorrelációs függvények és koordinációs számeloszlások RMC modellezéssel számolva az  $\text{SiB}_x\text{NaBaZrUO}$ , azaz UB5, UB10, UB15 és UB20 mintákra.

Az U-Si, U-B, U-Na és U-Zr parciális párkorrelációs függvények esetében a megfelelő másodszomszéd-távolságokra a  $3,35 \pm 0,1 \text{ \AA}$ ,  $2,85\text{--}3,15 \pm 0,1 \text{ \AA}$ ,  $3,5\text{--}4,0 \pm 0,1 \text{ \AA}$  és  $3,7 \pm 0,1 \text{ \AA}$  értékeket kaptuk (6. ábra).

Az U-atom és az üvegeképző (Si, B, Zr) atomok közti korrelációt leíró függvények első csúcsa viszonylag éles, míg a Na-U párkorrelációs függvény esetében a csúcs kevésbé definiált. Az alaphálózat megbontásával a Na megnyitja az utat az urán előtt, amely így beépülhet a Si-B-O hálózatba [13–15]. Ahogy már említettük, a Zr szerepe a kristályosodás megakadályozása.

A munka egyik fő célja meghatározni a maximális hulladék mennyiséget, amely stabilan be tud épülni a mátrixba. Az előzőekben ismertetett mintákból a 10 mol%  $\text{B}_2\text{O}_3$  tartalmú,  $55\text{SiO}_2 \cdot 10\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 25\text{Na}_2\text{O} \cdot 5\text{BaO} \cdot 5\text{ZrO}_2$  összetétele (továbbiakban: MÁTRIX) bizonyult a legstabilabbnak, ehhez adtam 35, 40, 45 s%  $\text{UO}_3$ -at. A neutron- és röntgendiffrakciós szerkezetvizsgálati eredmények azt mutatják, hogy ez az összetétel 40 s%  $\text{UO}_3$ -at tud stabilan beépíteni úgy, hogy tökéletesen amorf mintát kapjunk. Az üveg alapszerkezete nem változik, az alapszerkezet kialakulásáért felelős Si és



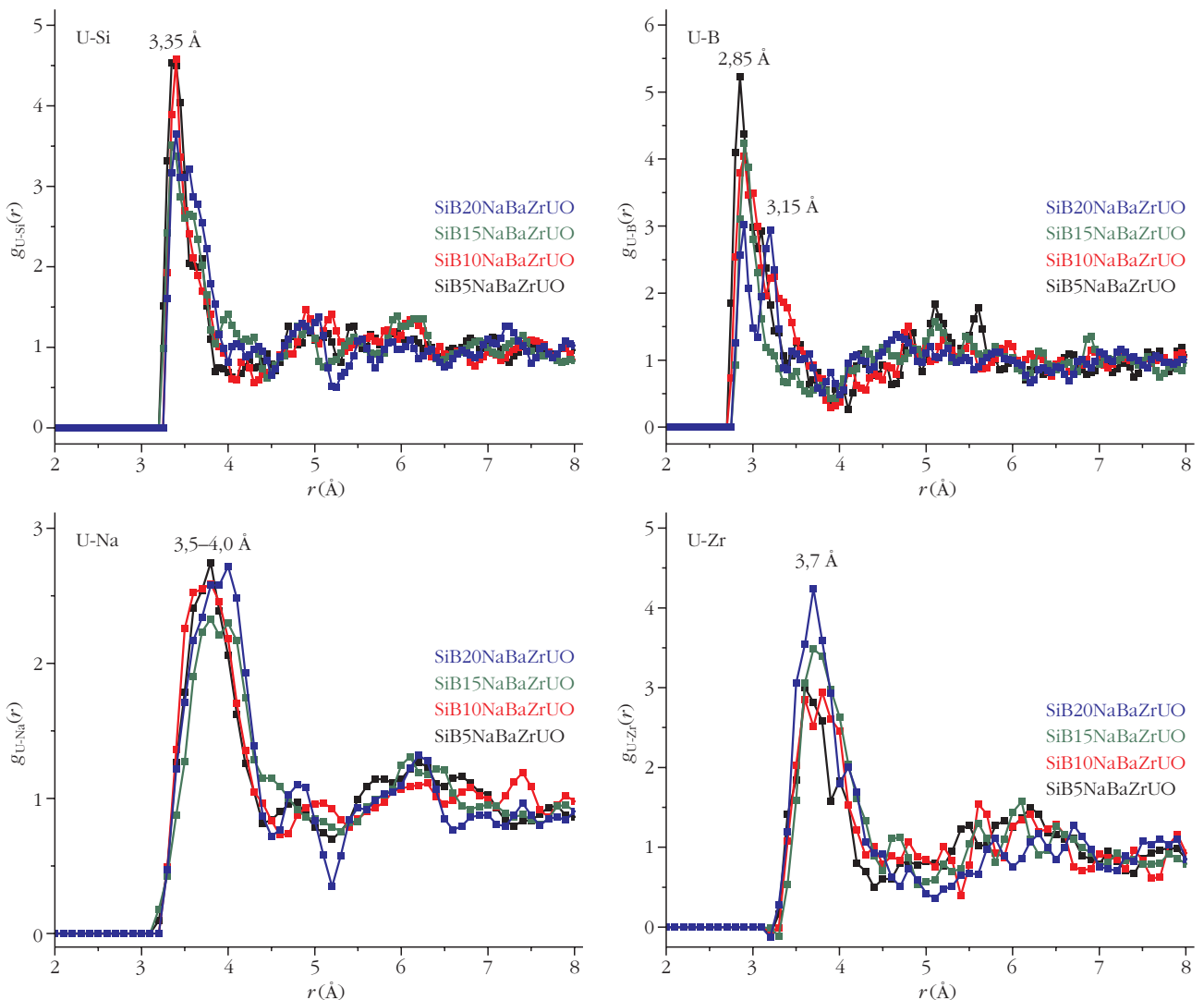
5. ábra. A kristályos szerkezetben az U-atom körül lévő, axiális és ekvatoriális pozícióban elhelyezkedő O-atomok.

B atomi környezetek az egyszerűbb mintákhoz hasonló módon, stabilan és reprodukálhatóan alakulnak ki. A 45 s%  $\text{UO}_3$ -at tartalmazó minta azonban már részben kristályos fázisokat mutat, kijelölve a befogadóképesség határát.

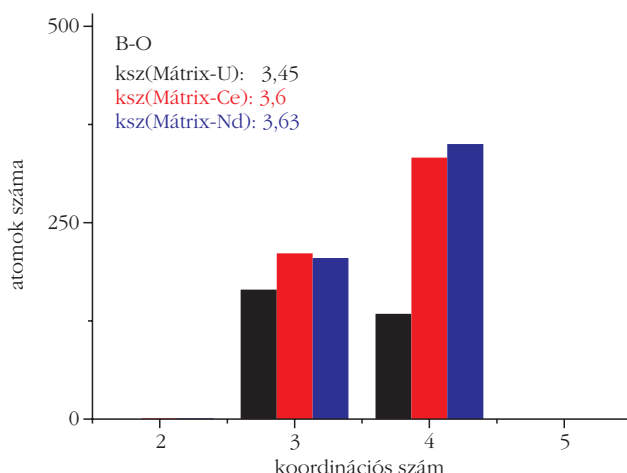
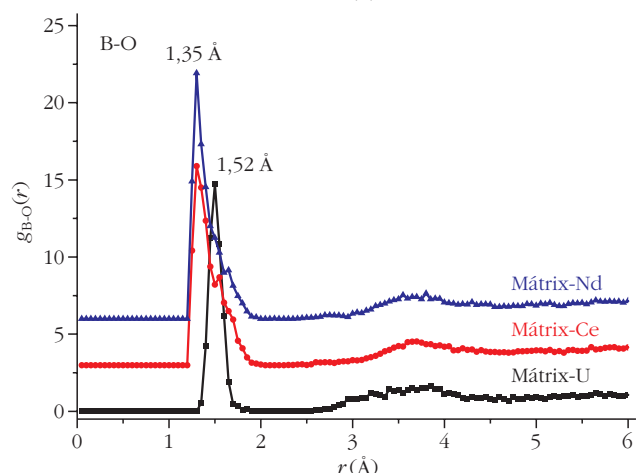
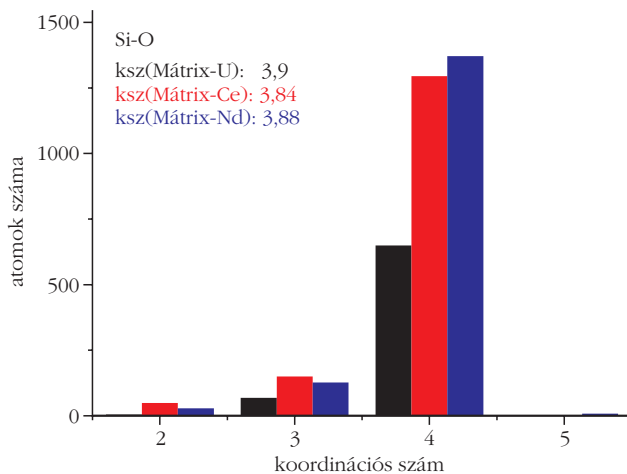
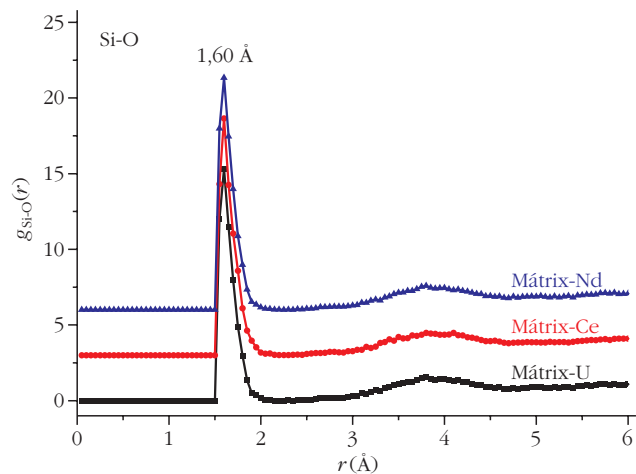
## Hétkomponensű SiBNaBaZrCe(Nd)O mintasorozat (előzetes eredmények)

A kifejlesztett összetételnek az urán mellett alkalmasnak kell lennie a hasadási termékek (jórészt aktinoidák) befogadására is [16]. Mivel utóbbiak beszerzése bonyolult, és felhasználásuk csak speciális, erre a célra engedélyezett laboratóriumban lehetséges, ezért helyettük a kémiaiilag hasonló módon viselkedő lantanoidákat használtam. A Pu beépülését Ce-mal szimuláltam, az Am és Cm helyett pedig Nd-ot alkalmaztam, amely helyettesítés a szakirodalomban elfogadott megoldás [17]. Vizsgáltuk a 90 s% [MÁTRIX] + 10 s% X és 70 s% [MÁTRIX] + 30 s% X ( $X = \text{CeO}_2, \text{Nd}_2\text{O}_3$ ) sorozatokat, amelyek az előzetes vizsgálatok alapján stabil amorf szerkezettel rendelkeznek. A 7. ábra a 70 s% [MÁTRIX] + 30 s% X, ahol  $X = \text{CeO}_2, \text{Nd}_2\text{O}_3$  összetételekre mutatja be az első szerkezeti eredményeket. Az alapszerkezet felépítésében szerepet játszó Si és B atomi környezetek hasonló stabil kialakulást mutatnak, mint az egyszerűbb rendszerek esetén.

6. ábra. Másodikszomszéd-távolságok az U-atom körül az  $\text{SiB}_x\text{NaBaZrUO}$ , azaz UB5, UB10, UB15 és UB20 mintákra.







7. ábra. A Si-O és B-O parciális párkorrelációs függvények és koordinációszám-eloszlások RMC modellezéssel számolva az UB10, CeB10 és NdB10 sorozatra.

A 7. ábrán a jobb összehasonlítás miatt feltüntettem az  $\text{UO}_3$  tartalmú mintákra kapott előzetes eredményeket is. A legfontosabb megállapítás az, hogy a Si-B-O alapszerkezet az U-, Ce- és Nd-tartalmú mintáink esetén sem változik.

Végezetül érdemes megnézni az Si-O és B-O távolságokat az összetétel függvényében (1. táblázat).

## Összefoglalás

Sikerült több lépésben előállítani és megvizsgálni egy olyan többkomponensű mátrixüveget, amely alkalmas lehet a radionuklidok stabil befogadására. A mátrix-üveg szerkezetének megértése céljából egyszerűbb, két- és háromkomponensű üvegek szerkezetét is vizs-

1. táblázat		
Si-O és B-O távolságok a tanulmányozott összetételekben		
minták	$r_{ij}$ (Å)	
	Si-O	B-O
$\text{SiO}_2$ [18]	$1,62 \pm 0,05$	–
SiNaO	$1,62 \pm 0,01$	–
$\text{B}_2\text{O}_3$ [19]	–	$1,37 \pm 0,02$
BNaO [19]	–	$1,38/1,55 \pm 0,05$
SiBNaO		
SiB5NaO	$1,60 \pm 0,01$	$1,30/1,55 \pm 0,05$
SiB10NaO	$1,60 \pm 0,01$	$1,30/1,55 \pm 0,05$
SiB15NaO	$1,60 \pm 0,01$	$1,30/1,50 \pm 0,05$
SiB20NaO	$1,60 \pm 0,01$	$1,30/1,50 \pm 0,05$

minták	$r_{ij}$ (Å)	
	Si-O	B-O
SiBNaBaZrO		
SiB5NaBaZrO	$1,60 \pm 0,01$	$1,40/1,60 \pm 0,01$
SiB10NaBaZrO	$1,60 \pm 0,01$	$1,40/1,60 \pm 0,01$
SiB15NaBaZrO	$1,60 \pm 0,01$	$1,40/1,60 \pm 0,01$
SiBNaBaZrUO		
SiB5NaBaZrUO	$1,60 \pm 0,01$	$1,35/1,55 \pm 0,1$
SiB10NaBaZrUO	$1,60 \pm 0,01$	$1,35/1,55 \pm 0,1$
SiB15NaBaZrUO	$1,60 \pm 0,01$	$1,35/1,55 \pm 0,1$
SiB20NaBaZrUO	$1,60 \pm 0,01$	$1,35/1,55 \pm 0,1$
SiB10NaBaZrCeO	$1,60 \pm 0,01$	$1,35 \pm 0,05$
SiB10NaBaZrNdO	$1,60 \pm 0,01$	$1,33 \pm 0,05$

gáltuk. Megállapítottuk, hogy a két- és háromkomponensű mintákhoz hasonlóan a mátrixüveg szerkezeti felépítésében is a tetraédes koordinátságú  $(\text{SiO}_4)^{4-}$  egységek játszanak szerepet. A mátrix alapszerkezetét  $^{13}\text{B-O-}^{14}\text{Si}$ , illetve  $^{14}\text{B-O-}^{14}\text{Si}$  vegyes láncok alkotják. Ez az alapszerkezet megmarad akkor is, ha uránt vagy más nehézfém (például Ce, Nd) adunk a mátrix-üveghez.

További vizsgálatokat végzünk a Ce- és Nd-atomok beépülésére vonatkozóan. Eddigi eredményeink alapján feltételezhető, hogy a javasolt mátrix-boroszilikát üvegek potenciális radioaktív hulladék-kondicionáló anyagként használhatók.

## Irodalom

1. Chun K S, Kim S S, Kang C H, *Journal of Nuclear Materials* 298 (2001) 150.
2. Sváb E, Mészáros Gy, Deák F, *Materials Science Forum* 228 (1996) 247; [www.bnc.hu](http://www.bnc.hu)
3. Proffen Th, Billinge S J L, Egami T, Louca D, *Zeitschrift für Kristallographie* 18 (2003) 132.
4. Ambroise J P, Bellissent R, *Rev. Phys. Appl.* 19 (1984) 731; <http://www-llb.cea.fr/en/>
5. Poulsen H, Neufeind J, Neumann H B, Schneider J R, Zeidler M D, *J. Non-Cryst. Solids* 188 (1995) 63.
6. McGreevy R L, Pusztai L, *Mol. Simul.* 1 (1988) 359.
7. Gereben O, Jóvári P, Temleitner L, Pusztai L, *J. Optoelectron. Adv. Mater* 9 (2007) 3021.
8. Fábíán M, Jóvári P, Sváb E, Mészáros Gy, Proffen T, Veress E, *J. Phys.: Condens. Matter* 19 (2007) 335209.
9. Fábíán M, Araczkai Cs, *Physica Scripta* 91 (2016) 054004.
10. Fábíán M, Sváb E, Mészáros Gy, Révay Zs, Proffen Th, Veress E, *J. Non-Cryst. Solids* 353 (2007) 2084.
11. Fábíán M, Sváb E, Proffen Th, Veress E, *J. Non-Cryst. Solids* 354 (2008) 3299.
12. Liu G K, Zhuang H Z, Beitz J V, Williams C W, Vikhnin V S, *Fizika Tverdogo Tela* 44 (2002) 8.
13. Fábíán M, Proffen Th, Ruett U, Veress E, Sváb E, *J. Phys.: Condens. Matter* 22 (2010) 404206.
14. Fábíán M, Sváb E, *Neutron News* 23 (2012) 9.
15. Fabian M, Svab E, Zimmermann M, *J. Non-Cryst. Solids* 380 (2013) 71.
16. Zagyvai P, Kókai Zs, Hózer Z, Breiter D, Fábíán M, Török Sz, Börcsök E: *A nukleáris üzemanyagciklus radioaktív hulladéka*. Budapest, MTA Energiatudományi Kutatóközpont, ISBN: 978-963-7351-20-4, 77 (2013)
17. Ramsey W G, Bibler N E, Meaker T F: *Compositions and durabilities of glasses for immobilization of Plutonium and Uranium*. Westinghouse Savannah River Company, WSRC-MS-94-0550 (1994)
18. Rino J P, Ebbsjö I, Kalia R K, Nakano A, Vashishta P, *Physical Review B* 4(6) (1993) 3053.
19. Fábíán M, Sváb E, Proffen Th, Veress E, *J. Non-Cryst. Solids* 356 (2010) 441–446.