

Соботович Е.В., Скворцов В.В., Злобенко Б.П., Спасова Л.В.

Інститут геохімії навколишнього середовища

ПРОБЛЕМИ ПОВОДЖЕННЯ ТА ЗАХОРОНЕННЯ РЕАКТОРНОГО ГРАФІТУ

Поводження та захоронення реакторного графіту є актуальною для України проблемою. Нині у зупинених енергоблоках ЧАЕС знаходиться більше як п'ять тисяч тонн опроміненого графіту. Кондиціонування реакторного графіту та його зберігання/захоронення вимагає пошуку реальних технологічних рішень. Досі невирішеним є питання про місце опроміненого графіту у класифікації РАВ за критеріями допустимості (недопустимості) його захоронення у сховищах різних типів.

Вступ

Поводження з реакторним графітом є окремою і досить складною проблемою при виведенні з експлуатації ядерних реакторів, зокрема реакторів типу РБМК. З огляду на те, що в кожному реакторному блоці міститься біля двох тисяч тонн графіту, він становить більшу частину накопичених твердих РАВ, тому пошук способів його утилізації є доволі актуальним завданням.

Графітова кладка реактора виконує роль сповільнювача й відбивача нейтронів. Під дією нейтронного, гамма-випромінювання та температури в процесі експлуатації відбувається старіння графіту, як матеріалу. Воно виражається в зміні геометричних характеристик блоків, а також механічних і теплофізичних властивостей самого графіту. Встановлено, що графіт марки ГР-280 відноситься до класу середньозернистих графітів із щільністю 1,7–1,8 г/см³. Оскільки напівфабрикати графітують при температурі вище за 2500 °С, такі графіти мають хорошу кристалічність (параметр кристалічної ґратки «с» знаходиться в інтервалі значень 0,6716 – 0,6754 нм, ступінь графітації $g = 0,8–0,9$ відн. од.).

Варіації вихідних властивостей графіту при опроміненні призводять до варіацій рівня деградації властивостей графіту і швидкостей деформації елементів графітової кладки.

Виділяють такі основні джерела і шляхи забруднення графіту реактора:

- внаслідок активації домішок нейтронами;
- шляхом адсорбції газів;
- через надходження радіонуклідів при технологічних інцидентах під час експлуатації реактора.

Забруднення відпрацьованого реакторного графіту має особливості, обумовлені рядом причин:

- графітові компоненти реакторів функціонують у захисній атмосфері азоту, що є одним з основних джерел утворення довгоіснуючого ¹⁴C ($T_{1/2}=5730$ років). Адсорбція газів реакторним графітом у процесі експлуатації може значною мірою визначати його активність, основний внесок у накопичення ¹⁴C вносить реакція на азоті $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$;
- при експлуатації реакторів іноді відбувалися інциденти, що вели до потрапляння часток палива (природного урану) у графітову кладку. Подальший вплив нейтронного опромінення на ці частки приводив до забруднення графітових блоків і втулок продуктами поділу й актиноїдами. Оскільки теплоносієм у цих реакторах служить вода, могло відбуватись zalивання графітових кладок водою; утворювана при цьому пароводяна суміш сприяла міграції радіонуклідів в об'єм кладки [1].

Необхідність кондиціонування реакторного графіту та його зберігання/захоронення після виведення з експлуатації уран-графітових реакторів вимагає пошуку реальних технологічних рішень, чому не сприяє загальна непроробленість концепції безпечного поводження з опроміненим графітом.

Світовий досвід щодо поводження і захоронення відпрацьованого реакторного графіту

У Франції та Японії наявність сховищ для захоронення реакторного графіту є вирішальним фактором у визначенні терміну демонтажу ядерних реакторів, а у Великій Британії — однією з підстав відкладення на 100 років демонтажу ядерного реактора. У Литві (Ігналінська АЕС) прийнято концепцію демонтажу реактора без очікування, після вивантаження палива в сухе сховище. Графітову кладку планують запакувати (оформити на місці) як сховище РАВ, що знов-таки пов'язано з відсутністю технології переробки опроміненого графіту. Такий же підхід прийнято для 1 та 2-го блоків Білоярської АЕС (уран-графітові реактори АМБ). У Російській Федерації, у зв'язку з поширенням уран-графітових реакторів типу РБМК, як базовий варіант прийнято концепцію довготермінового зберігання з відкладеним (на 100 років) демонтажем реакторних конструкцій [2].

У результаті багаторічних радіаційних випробувань графітів у дослідницьких і промислових реакторах і вивчення кернів із кладок діючих реакторів, встановлено закономірності поведінки графіту при опроміненні та виявлено залежність змін від технічних характеристик графіту, у тому числі від структури й властивостей вихідної сировини.

Ці чинники впливають на форму (внаслідок нерівномірної усадки), механічні характеристики та деформаційний стан складових графітової кладки, а також на зміну макровластивостей самого графіту. Це пов'язано, передусім, з унікальною кристалічною структурою і пористістю графіту, які визначають його фізичні властивості і поведінку при опроміненні. Зміна фізичних властивостей графіту відбувається внаслідок його опромінення. В атомних реакторах швидко нейтрони заміщають атоми кристалічної решітки, внаслідок чого накопичується запас енергії (енергія Вігнера). Таке накопичення змінює кристалічну гратка і загальні параметри сповільнювача.

Вибираючи способи поводження з відпрацьованим графітом, найчастіше розглядають два варіанти — спалювання та ізоляція з наступним захороненням.

На тепер пропонуються різні способи спалювання графіту: традиційне; у киплячому шарі; за допомогою газового лазера, а також газифікація графіту за допомогою перегрітої водяної пари (піроліз). За оцінкою фахівців, спалювання відпрацьованого графіту дасть в результаті РАВ, готові для захоронення, об'ємом 1...2 % від початкового об'єму графіту. Всі названі способи мають один істотний недолік: при спалюванні графіту утворюється газоподібний радіоактивний продукт — $^{14}\text{CO}_2$. Можна зв'язати цей продукт, перетворивши його на тверді хімічно інертні сполуки, для чого пропонується використати, наприклад, карбонат кальцію й магнію. Головним недоліком такого способу утилізації є збільшення об'єму відходів [5].

Французькі дослідження й розробки [6] показали, що з погляду на радіаційну безпеку рішення про спалювання відпрацьованого графіту є прийнятним. Було розроблено й випробувано пілотну установку для спалювання в киплячому шарі розмеленого порошку графіту продуктивністю 30...50 кг/год. ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{55}Fe й інші радіонукліди, що містяться в графіті, можуть надійно вловлюватися за допомогою фільтрів, а ^{14}C и ^3H надходять в атмосферу. При спалюванні в киплячому шарі 1000 т розмеленого порошку графіту на рік в атмосферу надійде в 4 рази більше ^{14}C , чим при роботі одного реактора ВВЕР-440 й в 2 рази менше, ніж виділить завод з переробки палива. Тобто величина викиду радіоуглецю буде на рівнях, допустимих для об'єктів атомної промисловості. Таку технологію спалювання в киплячому шарі розроблено фірмою «Framatome» (Франція), вона забезпечує надійну ізоляцію від навколишнього середовища практично всіх радіонуклідів, що містяться в графіті, крім ^{14}C . Завдяки атмосферним процесам ^{14}C переноситься на великі відстані й, окислюючись до $^{14}\text{CO}_2$, разом зі звичайною вуглекислою втягується в природний вуглецевий цикл.

Проблеми поводження та захоронення реакторного графіту в Україні

Проблеми поводження та захоронення реакторного графіту є особливо актуальними для України, оскільки у межах Чорнобильської зони відчуження нині знаходиться більше як п'ять тисяч тон опроміненого графіту із зупинених енергоблоків ЧАЕС (маса графітової

кладки реактора РБМК складає 1700 тон [3]), а в об'єкті „Укриття”, за оцінкою експертів, – приблизно 800 тонн аварійного графіту з 4 блоку ЧАЕС

За час експлуатації в графітовій кладці реактора РБМК-1000 накопичується довгоіснуючий ізотоп ^{14}C сумарною активністю $10^{14} - 10^{15}$ Бк, який входить в біологічні ланцюжки, внаслідок чого становить серйозну небезпеку для людини. Графітова кладка реактора РБМК-1000 являє собою вертикально розташований циліндр висотою 7 м і діаметром 11,8 м, зібраний з 2488 графітових колон. Графітові блоки виконано у вигляді прямокутних призм квадратного перерізу $250\text{мм} \times 250\text{мм}$ і висотою 200, 300, 500 й 600 мм. У середині блоків є отвори діаметром 114 мм, що утворюють в 2044 колонах тракти для розміщення технологічних і спеціальних каналів. Отвори в 444 колонах бічного відбивача заповнені суцільними графітовими стрижнями. Для кладки реактора використовуються блоки із графіту марки ГР – 280 із щільністю $1,6\text{ г/см}^3$, а для втулок – графіт марки ГРП-2-125 з ефективною щільністю $1,85\text{ г/см}^3$ [3].

Радіоактивна забрудненість деталей графітової кладки реактора визначається передусім вмістом ^{14}C , а також радіонуклідів домішкового і технологічного походження (^3H , ^{36}Cl , ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{60}Co тощо) і продуктів поділу палива (^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am , ^{239}Pu , ^{241}Pu тощо) внаслідок потрапляння фрагментів палива у графітну кладку реактора. Так, наприклад, графітну кладку реактора 1 енергоблоку ЧАЕС було забруднено продуктами поділу та трансурановими елементами внаслідок аварії 1982 року, пов'язаної з розривом технологічного каналу. Відповідно до нормативних вимог, для виведення АЕС з експлуатації має бути досліджений склад і активність радіонуклідів, накопичених протягом часу експлуатації реактора в графітовій кладці та інших графітових елементах. За розрахунковими оцінками, частка графітової кладки і графітових елементів каналів у загальному об'ємі РАВ реактора може складати 80%, але це, значною мірою, буде залежати від вмісту домішок у графіті. Українськими дослідниками проведено експериментальне визначення вмісту ряду ізотопів у кільцях графіту ГРП-2-125 з 2 реактора Чорнобильської АЕС, а також дослідження пористості графіту і десорбції із нього радіонуклідів [4].

В Україні розроблено технологію знешкодження високоактивних графітмістких матеріалів у режимі безполум'яного горіння, перевагою якої є повне відділення радіонуклідів від графіту, їхнє концентрування у вигляді золи, очистка газів за допомогою керамічного фільтру і методів сублімації і десублімації вуглекислоти, зв'язування вуглекислоти з будівельним матеріалом без викиду радіовуглецю в атмосферу [7].

У Російській Федерації для реакторів Сибірського хімічного комбінату прийнято варіант концепції виведення з експлуатації — захоронення на місці, який полягає в наступному: після повного видалення палива, охолодження реактора і проведення комплексного інженерного і радіаційного обстеження реакторна установка (графітова кладка в тому числі) приводиться в стан тривалої стабільності. Спільними роботами науковців Сибірського хімічного комбінату й Інституту геології Сибірського Відділення РАН розглянуто практичну можливість кольматажу в сховищі твердих відходів за допомогою текучих глинистих розчинів. У результаті утворення цим способом глиняної цементуючої маси виключається можливий вихід радіонуклідів за межі бетонних конструкцій, як газоподібних, так й в іонорозчинних формах. Науково-дослідним і конструкторським інститутом монтажної технології (НДКІМТ) для проведення дослідно-промислових випробувань розроблено технологію заповнення сховищ глинистим розчином. Консервація РАВ в геологічному середовищі запропонованим способом є не тільки екологічно безпечною, але й найбільш економічно прийнятною. Результати досліджень властивостей рекомендованих глинистих композицій дозволяють припустити, що отриманий глиняний моноліт буде мати високі протиміграційні й протифільтраційні характеристики [5].

В Україні, крім зазначених вище загальних для країн-виробників атомної енергії проблем поводження з відпрацьованим графітом, досі не вирішеними є питання визначення місця останнього у класифікації РАВ за критеріями допустимості (недопустимості) його захоронення у сховищах різних типів і, відповідно, вибору типу такого сховища. Відповідно до НРБУ-97/Д-2000 графіт реактора РБМК при виведенні його з експлуатації

представляє собою РАВ, що належать до третьої групи джерел потенційного опромінення, оскільки активність графіту на 95 % зумовлена довгоіснуючим ^{14}C [8].

Графіт реакторів, що виводяться з експлуатації, часто відносять до довгоіснуючих низькоактивних РАВ, проте це не відповідає прийнятому в Україні нормативному визначенню довгоіснуючих відходів. Реакторний графіт як такий априорі не може бути віднесений до того або іншого типу РАВ, оскільки визначення реакторного графіту як довгоіснуючих РАВ, які підлягають захороненню у стабільних геологічних утвореннях (або навпаки, як короткоіснуючих РАВ, які можуть бути захоронені у приповерхневих сховищах), має бути результатом конкретної класифікації.

Ідентифікація реакторного графіту в класифікації РАВ за умовами захоронення, згідно вимог НРБУ, потребує обов'язкового врахування усього комплексу характеристик графіту як для проектування технологій поводження з графітом, так і для обґрунтування вимог до сховища. Належність РАВ, у тому числі опроміненого графіту, до певного типу „... визначається шляхом порівняння доз поточного та потенційного опромінення з відповідними регламентами, встановленими ...” НРБУ-97/Д-2000. Отже, поки що, за браком необхідної інформації щодо властивостей графіту реакторів 1, 2, 3 енергоблоків ЧАЕС, за відсутності промислових технологій його обробки та кондиціонування, а тому — і за невизначеності конкретних вимог до сховища реакторного графіту, немає достатніх підстав для однозначної ідентифікації його в класифікації РАВ за умовами захоронення.

Планування і організація робіт зі зняття з експлуатації Чорнобильської АЕС здійснюються відповідно до «Загальнодержавної програми зняття з експлуатації Чорнобильської АЕС і перетворення об'єкту «Укриття» в екологічно безпечну систему» (далі — Загальнодержавна програма), затвердженої Законом України [9]. В результаті виконання Загальнодержавної програми в період до 2013 року має бути отриманий дозвіл на реалізацію етапу «остаточне закриття і консервація» (що відповідає за класифікацією МАГАТЕ етапу «зберігання під наглядом») та створено ефективну систему поводження з РАВ Чорнобильської АЕС. Варіант тривалого зберігання (включаючи графіт кладки в шахті реактора, а також РАВ на території майданчика АЕС) добре узгоджується з принципом поетапної ліквідації реактора, і при необхідності (неможливості забезпечення умов безпечного тривалого зберігання) повинна бути передбачена можливість ліквідації об'єкту і реабілітації майданчика з витяганням графіту кладки реактора, кондиціонуванням і видаленням РАВ за межі майданчика АЕС.

Висновки

Загальнодержавною програмою передбачається „... створення інтегрованої системи поводження з радіоактивними відходами, які утворюватимуться під час виконання робіт із зняття з експлуатації енергоблоків та перетворення об'єкту „Укриття” на екологічно безпечну систему ...”. Для цього, на наш погляд, необхідно визначити ключові питання, пов'язані з утилізацією відходів опроміненого графіту, вирішення яких впливає на стратегію та терміни виконання Загальнодержавної програми, та визначити і затвердити в законодавчому порядку нормативні вимоги, що встановлюють місце графіту у класифікації РАВ, критерії приймання, зберігання/захоронення відходів опроміненого графіту.

1. Носовський А.В., Алексеева З.М., Борозенець Г.П. та ін. Поводження з радіоактивними відходами / За ред. А.В.Носовського. — К.: Техніка, 2007. — 368 с.
2. Доильнищина В.В., Сорокин А.И., Калякин В.А. и др. Технические решения при выводе из эксплуатации уран-графитовых реакторов // Материалы II Межд. ядерного форума 2–5 окт. 2007 г. — СПб., ФГОУ «ГРОЦ», с. 158–161
3. Отчет о НИР „Программа (проект) снятия с эксплуатации Чернобыльской АЭС. Этап 2. Обосновывающие материалы. Техничко-экономическая оценка раннего извлечения ТК. 30-603.202.001.НР.02.03. Киевский научно-исследовательский и проектно-конструкторский институт Энергопроект. — Киев. — 2007. 59 с.
4. Бондарьков М.Д., Бондарьков Д.М., Максименко А.М. и др. Исследование содержания радиоактивного графита Чернобыльской АЭС и т.д. Изв. РАН. Сер. Физическая, 2009, том 73, №2, с. 274-278
5. Цыганов А.А., Хвостов В.И., Комаров Е.А., Котляревский С.Г., Павлюк А.О., Шаманин И.В., Нестеров В.Н. Проблемы утилизации реакторного графита остановленных промышленных уран-графитовых реакторов. Известия Томского политехнического университета. 2007. Т. 310. № 2. — С. 94–98.
6. Dubourg M. Solution to Level 3 Dismantling of Gas_Cooled Reactors: the Graphite Incineration // Nuclear Eng. and Design. — 1995. — V. 154. — № 2. — P. 47–54.

7. Гринько А.М., Токаревский В.В. Технологические основы переработки радиоактивных графитовых материалов.
8. Норми радіаційної безпеки України, доповнення: Радіаційний захист від джерел потенційного опромінення (НРБУ-97/Д-2000), затверджені Постановою Головного державного санітарного лікаря України 12 липня 2000 р. № 116.
9. Закон України Про Загальнодержавну програму зняття з експлуатації Чорнобильської АЕС та перетворення об'єкта "Укриття" на екологічно безпечну систему // Відомості Верховної Ради України, 2009. – N24.

Соботович Э.В., Скворцов В.В., Злобенко Б.П., Спасова Л.В. ПРОБЛЕМЫ ОБРАЩЕНИЯ С РЕАКТОРНЫМ ГРАФИТОМ И ЕГО ЗАХОРОНЕНИЯ

Обращение и захоронение реакторного графита является актуальной для Украины проблемой. Ныне в остановленных блоках Чернобыльской АЭС находится более пяти тысяч тонн облученного графита. Кондиционирование реакторного графита и его хранение/захоронение требует поиска реальных технологических решений. До сих пор нерешенным остается вопрос о месте облученного графита в классификации РАО по критериям допустимости (недопустимости) его захоронения в хранилищах разных типов.

Sobotovich E.V., Skvortsov V.V., Zlobenko B.P. Spasova L.V. PROBLEM MANAGEMENT AND DISPOSAL OF REACTOR GRAPHITE

In Ukraine, reactor graphite management and disposal is an urgent problem. Currently, in the out-of-run reactors of Chernobyl NPP, there are over five thousand tons of irradiated graphite. Reactor graphite conditioning and storage/disposal requires searching for real technological solutions. So far the problem of the irradiated graphite's place in the radioactive waste classification according to the admissibility (non-admissibility) criteria for its disposal in different types of repositories remains unsolved.