

УДК 621.039.532.21

ПРОБЛЕМЫ УТИЛИЗАЦИИ РЕАКТОРНОГО ГРАФИТА ОСТАНОВЛЕННЫХ ПРОМЫШЛЕННЫХ УРАН-ГРАФИТОВЫХ РЕАКТОРОВ

А.А. Цыганов, В.И. Хвостов, Е.А. Комаров, С.Г. Котляревский, А.О. Павлюк, И.В. Шаманин*, В.Н. Нестеров*

ФГУП «Сибирский химический комбинат», г. Северск

*Томский политехнический университет

E-mail: shamanin@k21.phtd.tpu.ru

Определен перечень радиоактивных нуклидов, активность которых образует основную часть суммарной активности графитовой кладки и графитовых элементов конструкции остановленных промышленных уран-графитовых реакторов. Проведен анализ доли активности, вносимой этими нуклидами, в различные моменты времени после останова реактора. Определен перечень графитовых элементов конструкции, в которых существует возможность самоподдерживающегося выделения запасенной энергии (энергии Вигнера). Установлено, что наибольшее значение энергии Вигнера достигается в графитовых конструкциях, эксплуатировавшихся в низкотемпературной области или при больших значениях плотностей потоков повреждающих нейтронов и сопутствующего гамма-излучения.

Введение

Вопрос снятия с эксплуатации ядерных установок с промышленными уран-графитовыми реакторами (ПУГР) представляет собой комплекс проблем, связанных с необходимостью выбора оптимальных способов и методов обращения с накопленными радиоактивными отходами (РАО). Среди всей массы накопленных РАО отработанный графит ПУГР занимает особое место. После длительного облучения графит не приобрел никаких свойств, которые могли бы ему создать область полезного применения. Поэтому облученный графит относится к категории неиспользуемых РАО и требует индивидуального подхода при выборе способов обращения с ним. Это связано со многими факторами:

1. Реакторный графит имеет уникальную кристаллическую структуру и характеризуется пористостью, которые определяют его физические свойства и их поведение при облучении.
2. Графитовая кладка является основным элементом активной зоны ПУГР, который не подлежит замене в течение всего срока эксплуатации и среди всех РАО имеет наибольший набранный флюенс нейтронов.
3. Графит блоков кладок и втулок ПУГР имеет ряд особенностей по величине, изотопному составу радиоактивных загрязнений и характеру распределения радионуклидов как по объему кладок в целом, так и по отдельным графитовым деталям. Радиоактивная загрязненность графитовых деталей в первую очередь определяется наведенной активностью (в основном ^{60}Co , ^3H , ^{14}C) за счет активации примесей, содержащихся в исходном материале. При этом ^{14}C , который образует 95 % активности графита, входит в биологические цепочки. Кроме продуктов активации активность графита определяется радионуклидами (^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{154}Eu и др.), образовавшимися в кладке в результате протечек теплоносителя и попадания фрагментов топлива в кладку.

4. Графит является пожароопасным материалом с высокой удельной теплотой сгорания (~8 ккал/г, температура воспламенения составляет величину ~700 °С). Этот факт усугубляется наличием в облученном графите запасенной энергии (энергии Вигнера).

Со времени остановки ПУГР ФГУП «Сибирский химический комбинат» (СХК, г. Северск) И-1, ЭИ-2, АДЭ-3 (1990–1992 гг.) в рамках выработки концепции снятия ПУГР с эксплуатации проведен ряд работ по изучению радиационных характеристик, физико-механических свойств и запасенной энергии отработанного графита [1–5].

Радиационные характеристики графита остановленных ПУГР

Для решения, задач, связанных с необходимостью выработки способов обращения с облученным графитом, было проведено зондирование с целью определения распределения радиационных полей в графитовых кладках остановленных ПУГР СХК [6]. Зондирование кладок позволило получить распределение фотонных полей по высоте и радиусам кладок, а так же наличие во всех кладках нейтронных полей. Были выявлены районы с повышенной плотностью нейтронных потоков. В этих же районах зафиксированы высокие значения величины мощности дозы. Эти измерения показали, что приблизительно в 2,5 % объема кладок величина мощности дозы превышает 1000 Р/ч, в 34 % – величина мощности дозы лежит в пределах 10...1000 Р/ч, в остальной части кладок – до 10 Р/ч. Наличие подобных районов связано с инцидентами, при которых фрагменты материала топлива попадали в графитовую кладку. Поскольку все инциденты имели место в начальный период работы реакторов, то эти фрагменты подверглись длительному облучению (более 22 лет), что привело к образованию в отдельных районах кладок продуктов деления и трансурановых элементов. На основании данных по зондированию кладок была проведена оценка количества облученного топлива в каждой из кладок остановленных ПУГР СХК.

Расчеты, проведенные до остановки реакторов, показали, что нуклидный состав радиоактивных загрязнений графита ограничен несколькими радионуклидами — ^3H , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{60}Co , которые образовались, в основном, за счет нейтронной активации примесей графита. Результаты зондирования кладок показали, что это далеко не так. Необходимо было знать полный радионуклидный состав радиоактивных загрязнений графита. Это можно было сделать только путем спектрометрического анализа образцов графита из различных деталей кладок. Были разработаны технологии и приспособления, с помощью которых были отобраны пробы графита практически из всех видов деталей кладок [6].

Пробы из графитовых втулок отбирались как из втулок, извлеченных из кладок, так и из втулок, извлеченных из хранилищ. Из этих проб были изготовлены образцы для радиоспектрометрического анализа.

Результаты анализа показали, что на долю ^{14}C приходится 95 % всей активности облученного графита кладок. Хотя средняя удельная активность графита кладок составляет около $6,9 \cdot 10^8$ Бк/кг, тем не менее, в отдельных районах она может быть значительно выше. Только по ^{137}Cs активность около 3,5 % объема кладок составляет $10^8 \dots 10^{10}$ Бк/кг.

Изучение распределения активности по толщине графитовых деталей кладок показало, что на их поверхностях активность в 3...5 раз выше, чем в объеме. Как правило, подобное различие обусловлено наличием на поверхности радионуклидов продуктов деления и актиноидов (вплоть до ^{244}Cm).

Распространение продуктов деления, активации и трансурановых элементов в графитовой кладке происходило в зависимости от индивидуальной способности к сорбции, диффузии и миграции этих радионуклидов под влиянием эксплуатационных факторов, таких как температура, давление и др. В некоторых ячейках основное радиоактивное загрязнение сосредоточено в стыках между графитовыми блоками по высоте колонны и в различных дефектах поверхности.

Путем оценки изменений радиационных характеристик во времени основных конструкций, а также при анализе вырезанных образцов металла различных типов сплавов было определено, что в начальный период выдержки активность гамма-излучающих нуклидов в металлоконструкциях ПУГР в основном определялась ^{51}Cr , ^{59}Mn и ^{60}Co . Через 8–12 мес. основным дозобразующим нуклидом является ^{60}Co . Расчеты, проведенные для ПУГР, показали что интенсивность гамма-излучения в металлоконструкциях при 100-летней выдержке существенно снизится, а максимальное значение мощности дозы в металлоконструкциях через 100 лет не превысит 0,01 Р/ч.

В графитовых кладках в районах локализации частиц облученного топлива в период выдержки (до 3 лет) спектр гамма-излучения определялся излучением короткоживущих продуктов деления:

^{144}Ce , ^{106}Ru , ^{134}Cs , ^{155}Eu и др. В последующий промежуток времени (от 3 до 50 лет) — в основном гамма-излучением нуклидов ^{60}Co и ^{137}Cs , в меньшей степени ^{154}Eu . После 50 лет выдержки радиационная обстановка будет формироваться только гамма-излучением долгоживущего продукта деления ^{137}Cs . Мощность дозы в этих локальных районах после 100 лет выдержки может достигать 100 Р/ч.

Таким образом, после длительного периода выдержки радиационная обстановка в реакторных пространствах ПУГР И-1, ЭИ-2 и АДЭ-3 значительно изменится за счет естественного распада относительно короткоживущих продуктов активации и деления. Остаточная активность, в основном, будет приходиться на графитовую кладку. Определяющую роль при этом будет играть активность долгоживущих продуктов деления и трансурановые элементы.

Таким образом, радиационное состояние только графитовой кладки будет влиять на выработку концепции и технического проекта снятия с эксплуатации.

Полученные данные по активности графитовых деталей, суммарной активности кладок, изотопному составу активности, распределению активности по объему кладок и отдельным деталям были использованы при составлении радиационных паспортов и других документов, а также позволили дать заключение по ядерной безопасности всех остановленных ПУГР СХК.

Работы по данным направлениям продолжают с целью получения более полной информации и совершенствования расчетных и экспериментальных методов проведения радиационного обследования.

Анализ общей радиационной обстановки показывает, что проведение работ по полному демонтажу основных высокоактивных конструкций реакторов на данный момент не целесообразно по техническим и экономическим причинам. Наиболее оптимальным является вариант вывода из эксплуатации, предусматривающий отложенный демонтаж реакторных конструкций. Для повышения безопасности остановленных ПУГР необходимо укрепить существующие и создать дополнительные защитные барьеры, которые должны предотвращать миграцию радионуклидов с различными химическими свойствами и сохранять стабильность свойств в течение времени существования потенциальной экологической опасности долгоживущих радионуклидов.

В настоящее время графитовые кладки остановленных ПУГР СХК не демонтированы и находятся в реакторных пространствах. От окружающей среды графитовые кладки отделяют барьеры безопасности, препятствующие выходу радионуклидов. В радиальном направлении это:

- силиuminовые вставки;
- металлический кожух;
- внутренние и внешние стены боковой защиты (20 мм);

- бетонная заливка монтажного пространства (1500 мм);
- бетонная стена шахты реактора (2000 мм);
- бетонная стена здания (1000 мм).

В осевом направлении барьерами защиты являются опорно-защитные конструкции, засыпки защитных конструкций (3000 мм), бетонная заливка нижних конструкций и т. д.

Запасенная энергия графита остановленных ПУГР СХК

С точки зрения обеспечения безопасного хранения облученного реакторного графита потенциальную опасность представляет возможность подъема его температуры за счет самоподдерживающегося выделения запасенной энергии. Как показывают отечественные и зарубежные исследования, величина запасенной энергии и возможность ее самоподдерживающегося выделения жестко зависит от температуры облучения графита. Это же было подтверждено при исследованиях, проведенных на СХК.

Было показано, что величина запасенной энергии достигает наибольшего значения в верхних и нижних частях комплектов графитовых втулок ячеек реактора И-1, работавшего в проточном режиме. Втулки его кладки являются самыми «низкотемпературными» деталями среди деталей графитовых кладок всех остановленных ПУГР СХК. Результаты показали, что для графитовых деталей этого реактора самоподдерживающееся выделение запасенной энергии возможно для графита верхней и нижней части комплектов втулок. При этом величина запасенной энергии составляет около 220...280 кал/г для верхних втулок рабочих ячеек, а для верхних втулок ячеек системы управления и защиты (СУЗ) и ячеек с обогащенным металлом (ОМ) — около 400 кал/г. По результатам исследований и оценок возможности выделения запасенной энергии в первую очередь необходимо извлечь из кладки ПУГР И-1:

- 2–3 верхние втулки из рабочих ячеек;
- полностью комплекты втулок из ячеек СУЗ и ОМ.

Высокое значение энергии Вигнера для верхних втулок и втулок СУЗ обусловлено тем, что в диапазоне температур облучения 100...300 °С в объеме графита присутствует наибольшее количество неравновесных междоузлий и вакансий, которые и определяют изменения параметров кристаллической решетки и соответствующих свойств графита. В этом диапазоне уменьшение температуры облучения и плотности потока сопутствующего гамма-излучения, вызывающие снижение термического и радиационного γ -отжига, приводят к увеличению концентрации накопленных дефектов [7]. Графитовые втулки ячеек ОМ эксплуатируются при более высоких значениях плотностей потоков повреждающих нейтронов (свыше 180 кэВ) и сопутствующего γ -излучения, что также приводит к высокому значению энергии Вигнера.

При проведении работы по определению запасенной энергии деталей кладки ПУГР АДЭ-3 подобные рекомендации были даны только в отношении верхних втулок ячеек СУЗ и ОМ, поскольку за счет более высокой температуры втулок кладки ПУГР АДЭ-3 самоподдерживающееся выделение запасенной энергии возможно только для графита этих втулок. Эта проблема более актуальна для графита втулок ПУГР И-1, чем для графита втулок ПУГР АДЭ-3 и ЭИ-2, как по причине большего количества втулок, для которых возможно самоподдерживающееся выделение запасенной энергии, так и за счет большей массы самих втулок.

Среди всех графитовых деталей остановленных ПУГР СХК самоподдерживающееся выделение запасенной энергии возможно для:

- 12...15 % массы всех втулок ПУГР И-1;
- 1...2 % массы всех втулок ПУГР ЭИ-2 и АДЭ-3.

Исследования показали, что для остальной массы графита кладок остановленных ПУГР СХК самоподдерживающееся выделение запасенной энергии невозможно. В противном случае обеспечить безопасность при выводе из эксплуатации ПУГР было бы довольно сложно, поскольку втулки из кладки можно легко извлечь, а блоки не являются сменными деталями.

Варианты утилизации графита остановленных ПУГР

Разработанная в Министерстве по атомной энергии в 1990 году «Концепция прекращения эксплуатации промышленных реакторных установок» рассматривает три варианта: «Консервация», «Захоронение» и «Ликвидация», которые соответствуют трем стадиям по классификации МАГАТЭ («Сохранение под наблюдением», «Ограниченное использование площадки», «Неограниченное использование площадки») и трем способам, применяемым в США («Безопасное хранение», «Захоронение на месте» и «Удаление»). Все варианты отличаются друг от друга лишь количеством капитальных затрат на их осуществление и величинами дозовых нагрузок на персонал и сводятся к одному: в конечном итоге реакторная установка должна быть захоронена в соответствии с требованиями на захоронение радиоактивных отходов, причем любой вариант вывода из эксплуатации должен предусматривать возможность полного демонтажа реакторной установки.

Во исполнение «Решения С1-483 секции № 1 НТС» Минатома от 1990 г. решением, утвержденным начальником 4 ГНТУ, для реакторов СХК принят вариант концепции вывода из эксплуатации — «Захоронение на месте». Данный вариант заключается в следующем: после полного удаления топлива, расхолаживания реактора и проведения комплексного инженерного и радиационного обследования реакторная установка (графитовая кладка в том числе) приводится в состояние длительной стабильности, т. е.:

1. Демонтируется все неактивированное оборудование.
2. Создаются дополнительные барьеры безопасности для предотвращения выхода радионуклидов за пределы реактора:
 - 2.1. Низ реактора бетонируется гидроизоляционным бетоном, обеспечивая подкрепление основных несущих металлоконструкций.
 - 2.2. Боковые металлоконструкции заполняются бетоном.
 - 2.3. Производится герметизация всех проемов в бетонной шахте реактора.
 - 2.4. Все полости реакторного пространства заполняются смесями природных материалов на основе бентонитовых глин.
3. Верх реактора герметизируется с помощью разборного железобетонного перекрытия, обеспечивающего защиту от пожара, воздействия взрывной волны, удара и др., и в таком виде реактор захоранивается на 100 лет. Радиоактивное оборудование и системы, находящиеся вне бетонной шахты реактора, демонтируются после выдержки 30...50 лет.

Данное решение эквивалентно Стадии 2 по классификации МАГАТЭ. Аналогичные решения, отличающиеся лишь продолжительностью выдержки, приняты практически во всех странах мира. Так, например, для реакторов Хэнфордской площадки США принят срок выдержки 75 лет, для промышленных реакторов Великобритании – 100 лет. Длительный период выдержки позволит выработать наиболее оптимальные способы и методы обращения с радиоактивными конструкциями.

В соответствии с разработанным «Перспективным планом ...» работы по приведению в состояние длительной стабильности ПУГР И-1, ЭИ-2 и АДЭ-3 в пределах шахты реакторов предположительно будут полностью закончены в 2010 г.

Как было сказано выше, более серьезную опасность представляют графитовые втулки, хранящиеся, в том числе и в хранилищах твердых отходов. В настоящее время наиболее перспективными способами обращения с отработавшими графитовыми втулками являются сжигание и кальматаж с помощью текучих глинистых растворов.

В настоящее время предлагаются разные способы сжигания графита: традиционное; в кипящем слое; с помощью газового лазера, а также газификация графита с помощью перегретого водяного пара (пиролиз). По оценке специалистов, сжигание отработанного графита даст в итоге радиоактивные отходы, готовые для длительного захоронения, объемом 1...2 % от первоначального объема графита. Все перечисленные способы имеют один существенный недостаток: при сжигании графита образуется газообразный радиоактивный продукт – $^{14}\text{CO}_2$. Чтобы связать этот продукт, можно превратить его в твердые химически инертные соедине-

ния. Для этой цели предлагается использовать, например, карбонаты кальция и магния. Главный недостаток такого способа утилизации состоит в увеличении объема отходов.

Французские исследования и разработки [8] показали, что с точки зрения радиационной безопасности решение о сжигании отработавшего графита приемлемо. Была разработана и испытана пилотная установка для сжигания в кипящем слое размолотого порошка графита производительностью 30...50 кг/ч. Содержащиеся в графите ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{55}Fe , α -эмиттеры и другие радионуклиды могут надежно улавливаться с помощью фильтров, а ^{14}C и ^3H выйдут в атмосферу. При сжигании в кипящем слое размолотого порошка 1000 т графита в год в атмосферу поступит в 4 раза больше ^{14}C , чем при работе одного реактора ВВЭР-440 и в 2 раза меньше, чем выделит завод по переработке топлива. То есть величина выброса радиоуглерода будет на уровне, характерном для объектов атомной промышленности.

Предполагаемая технология сжигания в кипящем слое, разработанная фирмой «Framatome» (Франция), обеспечивает надежную изоляцию от окружающей среды практически всех радионуклидов, содержащихся в графите, кроме ^{14}C . Благодаря высокой подвижности ^{14}C в результате атмосферных процессов переносится на большие расстояния и, окисляясь до $^{14}\text{CO}_2$, через фотосинтез вместе с обычной углекислотой вовлекается в естественный углеродный цикл.

СХК и Институтом геологии СО РАН рассмотрена практическая возможность кальматажа в хранилище твердых отходов с помощью текучих глинистых растворов. В результате образования этим способом глиняной цементирующей массы можно исключить возможный выход радионуклидов за пределы бетонных конструкций, как газообразных, так и в ионорастворенных формах.

Научно-исследовательский и конструкторский институт монтажной технологии (НИКИМТ) разработал технологию заполнения хранилищ глинистым раствором для опытно-промышленных испытаний. Консервация РАО в геологической среде предложенным способом является не только экологически безопасной, но и наиболее экономически приемлемой.

Результаты математического моделирования процесса переноса радионуклидов в композициях на основе глин из месторождений Томской области и экспериментальные исследования их свойств позволяют сделать вывод о том, что данные композиции имеют высокую адсорбционную способность по отношению к радионуклидам, сохраняют физические свойства на протяжении нескольких сотен лет, стабильность поведения конструкционных материалов в среде наполнителя, достаточную несущую способность. Определены состав и способ приготовления этих композиций для создания дополнительных барьеров безопасности в существующих хранилищах РАО реакторного производства СХК.

На площадке № 2 СХК создан макет хранилища, на котором будет опробована предложенная НИКИМТ технология создания дополнительных барьеров безопасности путем закачки в хранилище текучих глинистых растворов. Результаты исследований свойств рекомендованных глинистых композиций позволяют предположить, что полученный в результате закачки раствора в макет глиняный монолит будет обладать высокими противомиграционными и протифильтрационными характеристиками. В случае успешного проведения испытаний станет возможным применение этой технологии для создания дополнительных барьеров безопасности в существующих хранилищах РАО реакторного производства СХК.

В настоящее время рассматриваются и другие способы обращения с облученным графитом, которые нуждаются в тщательном обосновании с учетом экологических, технологических и экономических факторов.

Заключение

Обоснованы основные направления модификации технологии создания дополнительных барьеров безопасности путем закачки в хранилище текучих глинистых растворов применительно к существую-

щим хранилищам РАО реакторного производства СХК. Основной причиной выбора данной технологии явилось то, что консервация РАО в геологической среде экологически безопасна и экономически приемлема. Установлено, что для предотвращения самоподдерживающегося выделения запасенной энергии в первую очередь из активной зоны ПУГР должны извлекаться 2–3 верхние графитовые втулки рабочих ячеек, а также полный комплект втулок из ячеек СУЗ и ОМ. Определены состав и способ приготовления композиций на основе глин Томской области, обеспечивающих следующие свойства:

- высокую адсорбционную способность по отношению к различным радионуклидам;
- сохранение свойств на протяжении нескольких сотен лет;
- стабильное поведение конструкционных материалов в среде наполнителя;
- достаточную несущую способность.

Открытым остается вопрос поглощающей способности этих глин. Его решением занимаются в Институте физической химии РАН. В результате будет осуществлен окончательный подбор консерванта для РАО хранилищ и остановленных реакторов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Багаев В.Д., Баранов И.И., Кабанов Ю.И. и др. Снятие с эксплуатации промышленных реакторов Сибирского энергохимического комбината // Атомная энергия. – 1996. – Т. 80. – № 2. – С. 71–73.
2. Куликов И.Д., Сафутин В.Д., Симановский В.М. и др. Вывод из эксплуатации промышленных уран-графитовых реакторов // Атомная энергия. – 1999. – Т. 87. – № 2. – С. 118–126.
3. Хервуд Дж. Влияние ядерных излучений на материалы. – Л.: Судпромиздат, 1961. – 184 с.
4. Буланенко В.И., Фролов В.В., Николаев А.Г. Радиационные характеристики графита снятых с эксплуатации уран-графитовых реакторов // Атомная энергия. – 1996. – Т. 81. – № 4. – С. 304–306.
5. Бушуев А.В., Верзилов Ю.М., Зубарев В.И. и др. Содержание ⁶⁰Со в отработавшем графите кладок промышленных реакторов СХК // Атомная энергия. – 1999. – Т. 86. – № 3. – С. 183–188.
6. Павлюк А.О., Цыганов А.А., Кохомский А.Г. и др. Мероприятия по радиометрии полей излучения в графитовых кладках остановленных промышленных уран-графитовых реакторов // Известия Томского политехнического университета. – 2006. – Т. 309. – № 3. – С. 68–72.
7. Бойко В.И., Шидловский В.В., Гаврилов П.М., Нестеров В.Н., Шаманин И.В., Ратман А.В. Оценка ресурса реакторного графита в ячейках системы управления и защиты с учетом деградации теплофизических свойств // Известия вузов. Серия: Ядерная энергетика. – 2005. – № 3. – С. 94–103.
8. 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.

Поступила 25.09.2006 г.