

ПЕРСПЕКТИВЫ ПРИМЕНЕНИЯ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО РЕАКТОРА ТИПА ИРТ-Т ДЛЯ РЕШЕНИЯ ЗАДАЧ В РАМКАХ ПРОБЛЕМЫ ГРАФИТОВЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

А.О. Павлюк*, С.Г. Котляревский*, Е.В. Беспала*, Ю.Р. Беспала**

**АО «Опытно-демонстрационный центр вывода из эксплуатации уран-графитовых ядерных реакторов» 636000, Россия, г. Северск, ул. Автодорога 13, зд. 179а*

***Национальный исследовательский Томский политехнический университет 634050, Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30*

Р

Обсуждаются вопросы обращения с облученным графитом при выводе из эксплуатации уран-графитовых ядерных реакторов (УГР) различных типов. Показано, что обращение с реакторным графитом осложняется наличием в составе графитовых изделий долгоживущих радионуклидов, в особенности ^{14}C , который может быть вовлечен в биологические циклы, так как углерод является одной из основных составляющих биологических цепочек. Практическая реализация процесса селективного выделения ^{14}C может существенно понизить потенциальную опасность графитовых РАО за счет снижения активности графита по данному изотопу, а также за счет снижения скорости выщелачивания путем удаления ^{14}C , наиболее слабосвязанного в структуре графита. Сделан вывод о том, что аналитические методики измерений и расчетные методы позволяют достоверно оценить только общее количество ^{14}C , накопленного в графите, вклад канала накопления ^{14}C по реакции $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$, а также суммарный вклад реакции $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ на примесном азоте и на азоте продувочного газа. Предложен метод оценки величины вкладов каналов накопления на примесном азоте и на азоте продувочного газа с помощью исследовательского реактора типа ИРТ-Т (г. Томск, Томская обл.). В основе исследований лежит параллельное облучение потоком тепловых нейтронов партий образцов необлученного реакторного графита, находящихся в различных газовых средах. Приведен алгоритм расчета вкладов всех каналов накопления ^{14}C по экспериментальным результатам предлагаемых исследований. Для определения селективно удаляемой доли ^{14}C для всех типов графитовых РАО организаций РФ, эксплуатирующих (эксплуатировавших) УГР, сформулированы рекомендации по использованию в качестве материала для исследований всех марок графита, применяемых для изготовления деталей графитовых кладок отечественных УГР. Рассчитано время облучения образцов облученного графита в горизонтальном экспериментальном канале ИРТ-Т ГЭК-4, которое составило ~ 10 суток. Предложена методика проведения экспериментов по оценке величины вкладов каналов накопления ^{14}C в облученном ядерном графите. Предложенная методика может быть использована для определения селективно удаляемой доли ^{14}C в облученных графитовых элементах практически всех уран-графитовых ядерных реакторов, в том числе, зарубежных, при условии поддержания в одном из облучаемых контейнеров атмосферы углекислого газа.

Ключевые слова: облученный ядерный графит, уран-графитовый реактор, исследовательский реактор, ИРТ-Т.

ВВЕДЕНИЕ

В период становления и развития атомной энергетики и промышленности на территории Российской Федерации было введено в эксплуатацию значительное количество ядерных установок с уран-графитовыми реакторами (УГР) различных типов и назначения:

- 13 промышленных уран-графитовых реакторов (ПУГР);
- уран-графитовый реактор АМ-1 Обнинской АЭС;
- два УГР АМБ-100 и АМБ-200 Белоярской АЭС;
- четыре УГР типа ЭГП Билибинской АЭС;
- одиннадцать реакторов РБМК Ленинградской, Курской и Смоленской АЭС.

В настоящее время ведутся работы по выводу из эксплуатации остановленных реакторов: ПУГР, реакторов Белоярской и Обнинской АЭС. В 2015 г. по проекту завершены работы по выводу из эксплуатации ПУГР ЭИ-2 [1]. На ближайший период около 10 – 15 лет ресурс большинства блоков АЭС с учетом продления срока службы будет исчерпан. Останов блоков Ленинградской АЭС запланирован ориентировочно на ближайшие годы: первого энергоблока – 2018 г., второго – 2020 г., третьего – 2024 г., четвертого – 2026 г.

Применительно к выводу из эксплуатации УГР, в особенности блоков атомных станций, обращение с облученным реакторным графитом является одной из основных задач. Динамика накопления облученного графита по мере окончательного останова УГР в РФ приведена на рис. 1 [2].

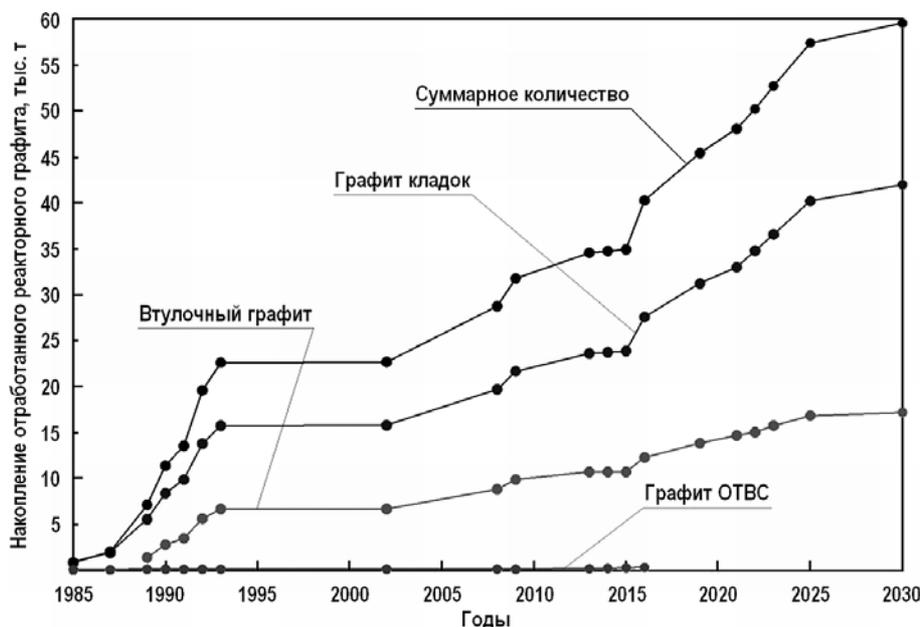


Рис. 1. Динамика накопления облученного графита в России

Решение проблемы обращения с реакторным графитом осложняется наличием в составе графитовых изделий долгоживущих радионуклидов (^{14}C , ^{36}Cl , актиниды). При этом суммарное количество облученного реакторного графита в России достигает ~60 тыс. тонн.

Следует учитывать, что проблема отработавшего реакторного графита актуальна и для ряда других стран. В мире построено около 250-ти УГР и накоплено значительное количество облученного графита – около 230 – 250 тыс. т. В первую очередь, помимо

России проблема обращения с облученным реакторным графитом актуальна для Великобритании – более 77 тыс. т, для США – более 50 тыс. т и Франции – более 23 тыс. т [3 – 5]. В настоящее время в мире не существует общих подходов к решению проблемы утилизации облученного графита [4].

Ключевой проблемой, определяющей сложность обращения с облученным графитом, является наличие в графитовых РАО долгоживущего изотопа ^{14}C ($T_{1/2} = 5730$ лет), который может быть вовлечен в биологические циклы, так как углерод является одной из основных составляющих биологических цепочек. Активность ^{14}C составляет ~95 % активности облученного графита и может достигать величины более 10^6 Бк/г для наиболее энергонапряженных областей графитовых кладок.

ОСОБЕННОСТИ ОБРАЗОВАНИЯ ^{14}C В РЕАКТОРНОМ ГРАФИТЕ

На первый взгляд, наиболее «привлекательным» способом решения проблем любых РАО является селективное выделение содержащихся радионуклидов с минимальным вмешательством в структуру и химический состав материала отходов. В силу того, что изотопы ^{14}C и ^{12}C являются изотопами одного химического элемента, из которого состоит графит, выделение «проблемного» изотопа углерода является технически и экономически трудно реализуемой задачей, как и все процессы, связанные с разделением изотопов. Способы глубокой переработки, основанные на переводе графита (включая ^{14}C) в газообразную форму и последующей щелочной промывке, приводят к значительному увеличению объемов РАО – до 10 раз. Изучались и такие способы, как метод ОРС (окисление в расплавах солей), плазмохимическая переработка и другие, но все они не решают основной проблемы – проблемы ^{14}C .

Тем не менее, существуют физико-химические основы селективного выделения значительной доли ^{14}C из облученного графита без существенной потери массы основного материала. Практическая реализация данного процесса может существенно понизить потенциальную опасность графитовых РАО за счет снижения активности графита по данному изотопу и скорости выщелачивания путем удаления наиболее слабосвязанного ^{14}C .

Для оценки возможности реализации данного подхода необходимо рассмотреть процесс образования ^{14}C в графите и распределение его в структуре материала при эксплуатации УГР.

Образование нуклида ^{14}C в реакторном графите при эксплуатации обусловлено нейтронной активацией изотопов ^{14}N , ^{13}C (табл. 1) [6].

Таблица 1
Основные реакции образования ^{14}C в реакторном графите при нейтронном облучении в УГР

Реакция	Сечение σ , барн	Присутствие изотопа в природном элементе, %
$^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$	$1,81 \pm 0,05$	99,63 в естественном N
$^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$	$(0,9 \pm 0,2) \cdot 10^{-3}$	1,07 в естественном C

Механизмы образования ^{14}C в графите при эксплуатации УГР следующие.

1. $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$. ^{13}C – изотоп углерода, содержащийся в естественной смеси изотопов, распределен равномерно в кристаллической структуре графита.

2. $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$. Примесь ^{14}N (содержание в необлученном графите оценивается в диапазоне от 30 до 100 ppm) содержится в исходном графите частично

– в виде твердого раствора замещения (равномерно распределенного по кристаллической структуре);

– в заполненных воздухом закрытых порах, а также в виде азота, адсорбированного

из воздуха в приповерхностном слое пор и по границам кристаллитов.

Характерная форма распределения примесного азота в графите в приповерхностном слое показана на рис. 2 [7].

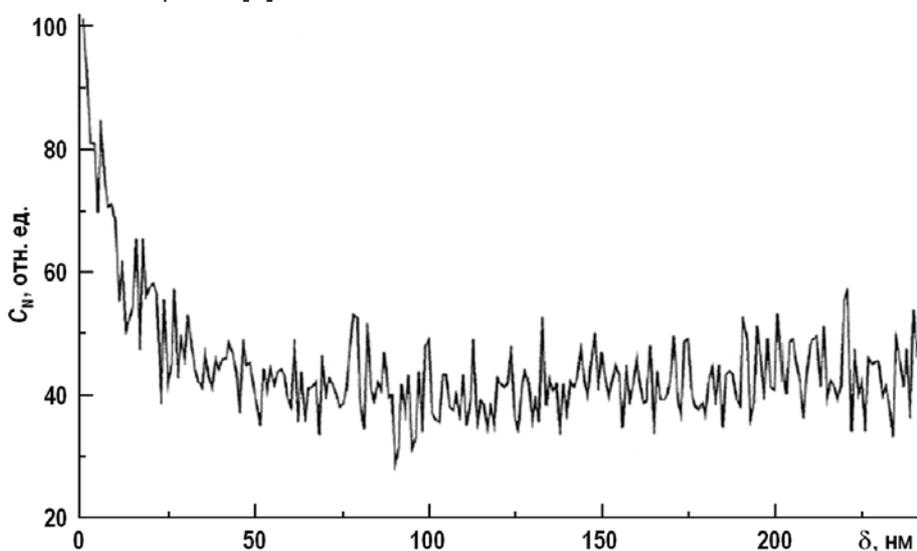


Рис. 2. Относительное распределение примеси азота в графитовом образце в приповерхностном слое

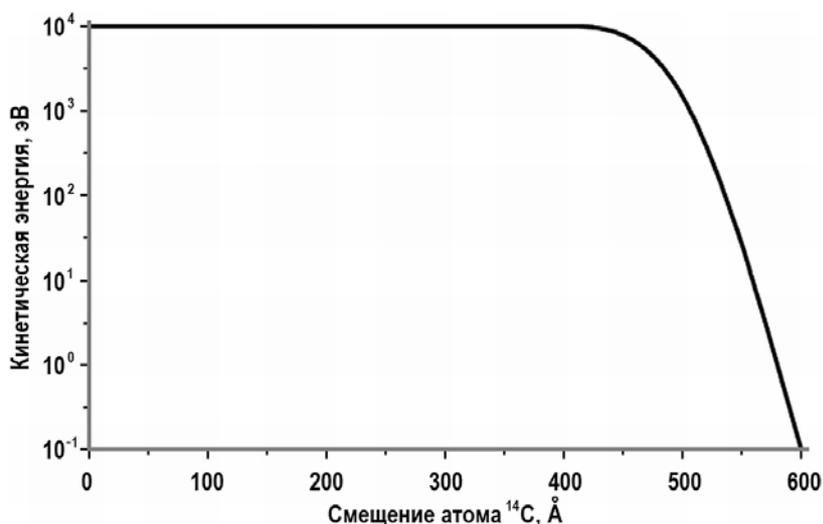


Рис. 3. Смещение и потери энергии атома ^{14}C в совершенной кристаллической структуре (решетке) графита

3. $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$. В составе газовой смеси, продуваемой через графитовую кладку в процессе эксплуатации УГР, содержится ^{14}N и заполняет весь объем пористости графита, доступной для газа. С одной стороны это приводит к адсорбции молекулярного азота на всей поверхности графита (в том числе и на внешней поверхности пор, кристаллитов, микрокристаллитов), что в дальнейшем может вызвать его активацию с образованием ^{14}C . С другой стороны, в результате ядерной реакции при испускании протона и ^{14}C с энергией отдачи 40 кэВ происходит имплантация продуктов реакции в кристаллическую решетку. Глубина имплантации может достигать ~ 60 нм (рис. 3 [8]). Области локализации ^{14}C будут сосредоточены в тонком (до ~ 60 нм) приповерхностном слое поверхностей графитовых изделий, поверхностей пор, доступных для газа, а также графитовых кристаллитов и микрокристаллитов.

Данный механизм обуславливает гетерогенное распределение в структуре графита изотопа ^{14}C , образовавшегося из продувочного азота и из части примесного азота, сконцентрированного в тех же приповерхностных слоях структуры графита (см. рис. 2, 3). Такое распределение ^{14}C наблюдается в приповерхностном слое деталей графитовых кладок уран-графитовых реакторов, эксплуатировавшихся в азотной или азотно-гелиевой атмосфере. Пример подобного распределения, полученного авторами методом послойного удаления поверхностного слоя, приведен для блочного графита кладки реактора РБМК-1000 блока № 2 Ленинградской АЭС на рис. 4.

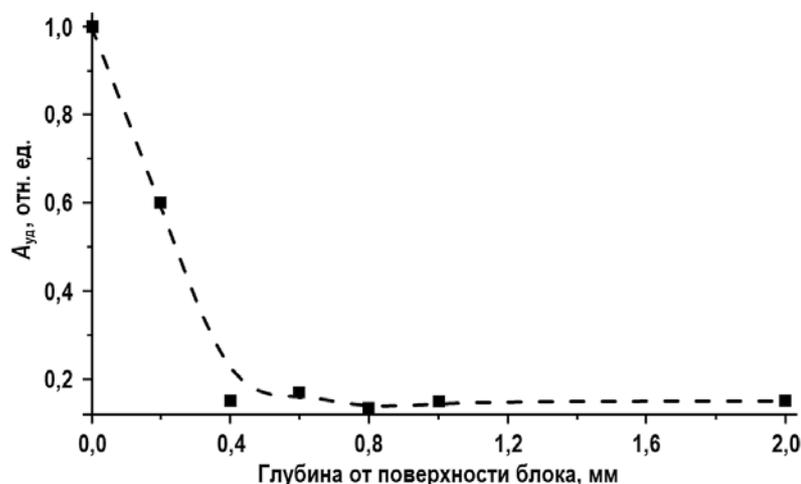


Рис. 4. Характерное распределение активности ^{14}C в приповерхностном слое графитовых блоков реактора РБМК-1000 блока №2 Ленинградской АЭС

Таким образом, наличие гетерогенно распределенного ^{14}C дает принципиальную возможность селективного его выделения при незначительном выходе ^{12}C , составляющего основную массу облученного графита.

Для оценки целесообразности практической реализации данного процесса при решении проблемы графитовых РАО, а также для оптимизации параметров предполагаемой технологии необходимо предварительно определить долю гетерогенно распределенного ^{14}C , для которого возможна организация процесса селективного удаления. Эта доля в большей степени определяется долей ^{14}C , образовавшегося из азота, содержащегося в продувочной газовой смеси (азотной или азотно-гелиевой).

При расчетных оценках вкладов различных каналов накопления ^{14}C в общее его количество существует ряд неопределенностей. Расчетная оценка может быть применена с приемлемой точностью только для оценки вклада реакции $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$, где ^{13}C – изотоп углерода, содержащийся в естественной смеси изотопов углерода (доля 1,07%) и распределенный равномерно в кристаллической структуре графита. Измерения удельной активности ^{14}C показывают, что вклад данной реакции в накопление ^{14}C в графите УГР составляет не более 5%. Неопределенности расчетных оценок возникают при оценке вклада реакции $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ в общую активность ^{14}C , а именно:

- существенная вариация примеси азота в исходном графите от изделия к изделию (от 30 до 100 ppm), а также параметров распределения атомов примесного азота в структуре материала;

- неопределенности, связанные с корректностью определения всех факторов, определяющих долю ^{14}C , образующегося по реакции $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ из продувочной газовой смеси остающегося в структуре облученного графита в условиях эксплуатационных режимов реактора. Именно эта часть ^{14}C определяет долю от общего количества изотопа, для которой потенциально возможна организация процесса селективного удаления.

Таким образом, аналитические методики измерений и расчетные методы позволяют достоверно оценить только общее количество ^{14}C , накопленного в графите, вклад канала накопления ^{14}C по реакции $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$, а также суммарный вклад реакции $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ на примесном азоте и на азоте продувочного газа (как разница между общим количеством ^{14}C и долей ^{14}C , образовавшегося по реакции $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$). При этом задача оценки величин вкладов каналов накопления на примесном азоте и на азоте продувочного газа остается нерешенной.

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ РЕАКТОРА ИРТ-Т ДЛЯ РЕШЕНИЯ ПРОБЛЕМ ГРАФИТОВЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Возможности подобного ИРТ-Т реактора (ИРТ МИФИ) ранее были успешно использованы в рамках исследований проблемы облученного графита остановленных ПУГР (исследование содержания примесных элементов в графите; определение изотопного состава некоторых актинидов, содержащихся в графите, методами нейтронно-активационного анализа).

В основе предлагаемых исследований лежит параллельное облучение потоком тепловых нейтронов партий образцов необлученного реакторного графита, находящегося в различных газовых средах. Качественно порядок предлагаемых экспериментов можно спланировать следующим образом.

1. Разработка и изготовление контейнеров для облучения образцов в одном из экспериментальных каналов ИРТ-Т. Конструкция контейнеров и схема организации облучения в реакторе служат для создания в объеме контейнера газовой атмосферы (азот, аргон, гелий, азотно-гелиевая смесь, углекислый газ) и поддержания ее параметров в течение времени облучения.

2. Подготовка двух партий образцов из одного графитового изделия (для снижения вариации примеси азота) по пять – десять образцов каждая. Массогабаритные характеристики образцов определяются размерами и конструкцией контейнеров для облучения.

3. Размещение партий образцов в двух разных контейнерах. Создание в одном из контейнеров азотной (азотно-гелиевой) атмосферы, в другом – атмосферы из инертного газа (аргон, гелий).

4. Облучение контейнеров в экспериментальном канале ИРТ-Т. Основные условия облучения:

- партии образцов должны облучаться потоком тепловых нейтронов одинаковой величины;
- газовая атмосфера и ее параметры в объеме контейнеров должны поддерживаться в течение всего времени облучения.

5. Извлечение контейнеров по истечении времени облучения. Осуществление временной выдержки (при необходимости).

6. Определение активности изотопа ^{14}C в облученных графитовых образцах путем отбора проб из облученных образцов в количестве, достаточном для анализа.

7. Повторение операций на этих же образцах по пп. 3 – 6 с целью определения динамики накопления ^{14}C .

Для предварительной оценки длительности облучения образцов можно воспользоваться данными по потоку тепловых нейтронов в горизонтальном экспериментальном канале ИРТ-Т ГЭК-4, используемом для ядерного легирования слитков кремния. Характерные значения потока тепловых нейтронов на рабочем участке ГЭК-4 $\sim (3 - 5) \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$. Методика определения содержания ^{14}C в облученном графите, основанная на переводе графитового образца в CO_2 с последующим улавливанием и измерением полученного раствора с использованием жидко-сцинтилляционных спектрометров, позволяет определять активность ^{14}C с минимально детектируемой активностью 0,01 Бк на пробу. Для

достижения оптимальной точности измерений целесообразно набрать при облучении активность графита по ^{14}C не менее $\sim 10^2$ Бк/г. Характерное время облучения реакторного графита до набора таких величин активности по ^{14}C составит около десяти суток.

Динамика накопления ^{14}C при облучении в ГЭК-4 ИРТ-Т будет иметь линейный характер, поскольку на кривую накопления не оказывают влияния следующие процессы:

- выгорание материнских изотопов (^{13}C и ^{14}N) и расстрел образующегося ^{14}C в силу низких сечений поглощения нейтронов (см. табл. 1);
- распад ^{14}C , поскольку период облучения пренебрежимо мал по сравнению с периодом полураспада радионуклида.

Качественно динамика накопления ^{14}C , образующегося в графитовых образцах, находящихся при облучении в инертной и азотной атмосферах, приведена на рис. 5.

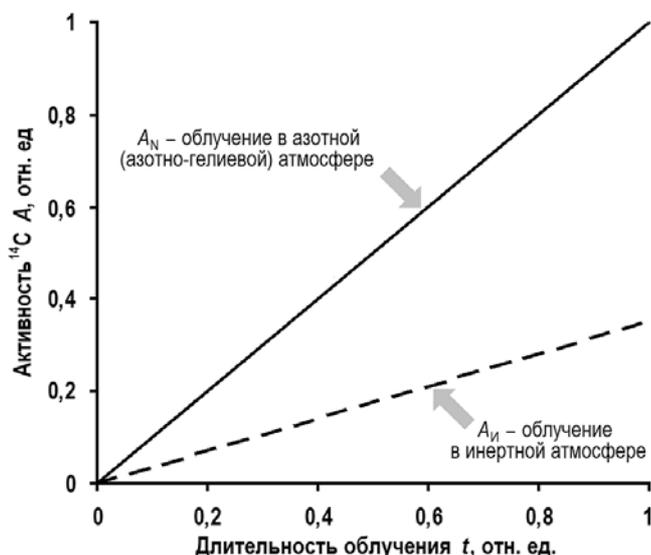


Рис. 5. Качественная динамика накопления ^{14}C , образующегося в графитовых образцах, находящихся при облучении в инертной и азотной (азотно-гелиевой) атмосферах

Различный наклон прямых накопления ^{14}C в образцах графита обусловлен наличием дополнительного канала образования данного изотопа по реакции $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ на газообразном азоте в контейнере с азотной (азотно-гелиевой) атмосферой. В контейнере с инертной атмосферой накопление ^{14}C обусловлено только реакциями $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$ на изотопе ^{13}C природной смеси изотопов углерода и $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ на азоте, содержащемся в виде примеси в исходном графите. Таким образом, в любой момент времени t доля ^{14}C , накопленного в графите по реакции $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ из азотосодержащей газовой среды и формирующего составляющую гетерогенно распределенного ^{14}C , будет определяться выражением

$$v_{\text{газ}} = (A_N(t) - A_{и}(t)) / A_N(t), \quad (1)$$

где $v_{\text{газ}}$ — доля ^{14}C , накопленного в графите по реакции $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ из азотосодержащей газовой среды; $A_N(t)$ — удельная активность ^{14}C в образцах графита, облученных в азотосодержащей газовой среде в момент времени t ; $A_{и}(t)$ — удельная активность ^{14}C в образцах графита, облученных в инертной газовой среде в момент времени t .

Доля ^{14}C , накопление которого обусловлено реакцией $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ на азоте, содержащемся в виде примеси в исходном графите, будет определяться выражением

$$v_{\text{прим}} = 1 - v_{\text{газ}} - v_{\text{C}}, \quad (2)$$

где $v_{\text{прим}}$ — доля ^{14}C , накопление которого обусловлено реакцией $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ на азоте,

содержащемся в виде примеси в исходном графите; ν_c – доля ^{14}C , накопление которого обусловлено реакцией $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$ на изотопе ^{13}C природной смеси изотопов углерода.

Доля ν_c определяется расчетным путем с использованием значений флюенса тепловых нейтронов за период облучения, данных по содержанию ^{13}C в природной смеси изотопов углерода и сечению радиационного захвата ^{13}C .

В последнее время в России и за рубежом проводятся исследования по селективному выделению ^{14}C из образцов облученного графита [10 – 16]. Анализ опыта исследований показывает, что наиболее эффективными являются методы, основанные на термообработке облученного графита в газовой или парогазовой среде (в инертной и (или) слабоокислительной среде) [17 – 19]. В ряде случаев величина селективного выхода ^{14}C достигает 70% при относительно невысокой потере массы графита (в пределах 5%). Практическая реализация данного процесса может существенно понизить потенциальную опасность графитовых РАО за счет снижения как активности графита по данному изотопу, так и скорости его выщелачивания [4, 20] путем удаления при обработке наиболее слабосвязанного гетерогенно распределенного ^{14}C (рис. 6).

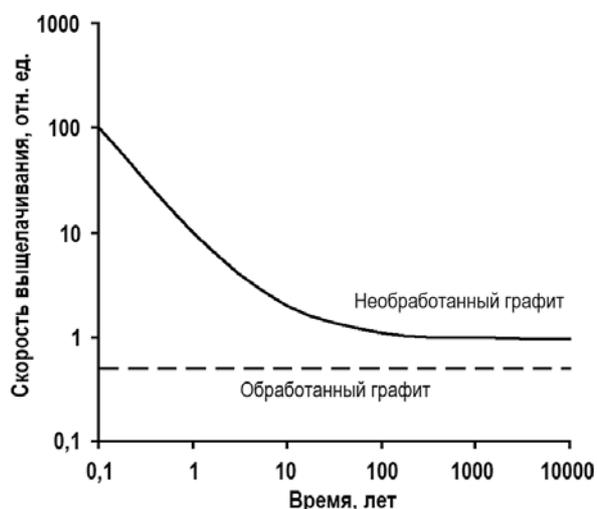


Рис. 6. Качественная динамика выщелачивания ^{14}C для необработанного облученного графита и для облученного графита после удаления гетерогенно распределенного ^{14}C путем термообработки в газовых средах

Одним из критериев целесообразности проведения подобной обработки является доля гетерогенно распределенного ^{14}C , которая определяется в ходе предлагаемых экспериментальных работ с использованием реактора типа ИРТ-Т. Для российских энергетических УГР эта доля оценивается на уровне 30 – 90% от общего содержания данного изотопа в графите [9]. Такой разброс определяется разбросом параметров продувочной газовой смеси, характеристиками кристаллической и пористой структур различных марок графита, а также разбросом содержания и параметров объемного распределения примеси азота в исходном графите.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, при проведении работ на исследовательском реакторе ИРТ-Т с целью определения селективно удаляемой доли ^{14}C для всех типов графитовых РАО организаций РФ, эксплуатирующих (эксплуатировавших) УГР, целесообразно применять все марки графита, используемые для изготовления деталей графитовых кладок отечественных УГР. При этом следует учесть, что при облучении образцов графита кладок реакторов РБМК-1000 необходимо использовать не чистый азот, а азотно-гелиевую смесь, параметры которой характерны для газовой атмосферы, создаваемой в объеме графитовой клад-

ки реакторов данного типа. Проведение аналогичных исследований особенностей накопления ^{14}C в графите зарубежных реакторов также принципиально возможно с использованием предложенного алгоритма при условии поддержания в одном из облучаемых контейнеров атмосферы углекислого газа.

Литература

1. Павлюк А.О., Котляревский С.Г., Беспала Е.В. Опыт вывода из эксплуатации промышленного уран-графитового реактора ЭИ-2 АО «ОДЦ УГР» / Сб. докл. «Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека». – Томск: Изд-во Томского политехнического университета, 2016. – С. 508-512.
2. Роменков А.А. Достигнутые результаты: Обращение с радиоактивным графитом при выводе из эксплуатации уран-графитовых реакторов с использованием технологии окисления графита в расплаве солей // Росэннергоатом. – 2011. – № 3. – С.32-35.
3. *Dunzik-Gougar M.L., Smith T.E.* Removal of carbon-14 from irradiated graphite // *Journal of Nuclear Materials.* – 2014. – Vol. 451. – PP. 328-335.
4. *LaBrier D., Dunzik-Gougar M.L.* Identification and location of ^{14}C -bearing species in thermally treated neutron irradiated graphites NBG-18 and NBG-25: Pre- and Post-thermal treatment // *Journal of Nuclear Materials.* – 2015. – Vol. 460. – PP. 174-183.
5. *Liu J., Wang C., Dong L., Liang T.* Study on the Recycling of Nuclear Graphite after Micro-Oxidation // *Nuclear Engineering and Technology.* – 2016. – Vol. 48. – PP. 182-188.
6. EPRI. Graphite Decommissioning: Options for Graphite Treatment, Recycling, or Disposal, including a discussion of Safety-Related Issues / Technical Report 1013091. – 2006. – 156 p. Available at: <https://pdfs.semanticscholar.org/1367/38dccadbc420b7a112af9dd4c3b6885c6e5d.pdf> (accessed 4 Sept. 2017)
7. IAEA. Disposal aspects of low and intermediate level decommissioning waste / Technical Report IAEA-TECDOC-1572. – Vienna: IAEA. – 2007. – 159 p. Available at: http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/TE_1572_companion_CD_web.pdf (accessed 4 sept. 2017)
8. *Vulpius D., Baginski K., Fischer C., Thomauske B.* Location and chemical bond of radionuclides in neutron-irradiated nuclear graphite // *Journal of Nuclear Materials.* – 2013. – Vol. 438. – PP. 163-177.
9. Рублевский В.П., Яценко В.Н., Чанышев Е.Г. Роль углерода-14 в техногенном облучении человека. / Монография. – М.: ИздАТ. – 2004. – 197 с.
10. *Pageot J., Rouzaud J.-N., Gosmain L., Deldicque D., Comte J., Ammar M.R.* Nanostructural characterizations of graphite waste from French gas-cooled nuclear reactors and links with ^{14}C inventory // *Carbon.* – 2016. – Vol. 105. – PP. 77-89.
11. *Smith T.E., McCrory S., Dunzik-Gougar M.L.* Limited oxidation of irradiated graphite waste to remove surface carbon-14 / Idaho State University. – 2012. – 1776 p. Available at: <http://dx.doi.org/10.5516/NET.06.2012.025> (accessed 4 sept. 2017)
12. *Dunzik-Gougar M.L., Smith T.E.* Removal of carbon-14 from irradiated graphite // *Journal of Nuclear Materials.* – 2014. – Vol. 451. – PP. 328-335.
13. *Fachinger J., von Lensa W., Podruhzina T.* Decontamination of nuclear graphite // *Nuclear Engineering and Design.* – 2008. – Vol. 238. – PP. 3086-3091.
14. *Dirk V., Kathrin B., Benjamin K., Bruno T.* Thermal treatment of neutron-irradiated nuclear graphite // *Nuclear Engineering and Design.* – 2013. – Vol. 265. – PP. 294-309.
15. *Von Lensa W., Vulpius D., Steinmetz H.J., Girke N., Bosbach D., Thomauske B., Banford A.W., Bradbury D., Grambow B., Grave M.J., Jones A.N., Petit L., Pina G.* Treatment and disposal of irradiated graphite and other carbonaceous waste // *Atw-International Journal for Nuclear Power.* – 2011. – Vol. 57. – PP. 263-269.
16. *Sibermann G., Moncoffre N., Toulhoat N., Bererd N., Perrat-Mabilon A., Laurent G., Raimbault L., Sainsot P., Rouzaud J.-N., Deldicque D.* Temperature effects on the behavior of carbon-14 in nuclear graphite // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms.* – 2014. – Vol. 332. – PP. 106-110.

17. *Sach R.S., Williams W.J.* The diffusion of ^{14}C in nuclear graphite // *Carbon*. – 1974. – Vol.12. – PP. 425-432.
18. *Kane J.J., Karthik C., Ubig R., Windes W.E., Butt D.P.* An oxygen transfer model for high purity graphite oxidation // *Carbon*. – 2013. – Vol. 2013. – PP. 49-64.
19. *Poluektov P.P., Kashcheev V.A., Ustinov O.A., Musatov N.D., Yakunin S.A., Karlina O.K., Diordii M.N.* Physicochemical aspects of reactor graphite incineration // *Atomic Energy*. – 2014. – Vol. 116. – No. 2. – PP. 105-109.
20. *Wickham A., Steinmetz H.-J., O'Sullivan P., Ojovan M.I.* Updating irradiated graphite disposal: Project 'GRAPA' and the international decommissioning network // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2017. – Vol. 171. – PP. 34-40.

Поступила в редакцию 14.09.2017 г.

Авторы

Павлюк Александр Олегович, руководитель группы, канд. физ.-мат. наук
E-mail: seversknet@rambler.ru

Котляревский Сергей Геннадьевич, ведущий инженер
E-mail: ksg75@rambler.ru

Беспала Евгений Владимирович, инженер-физик, канд. физ.-мат. наук
E-mail: bspala_evgeny@mail.ru

Беспала Юлия Рашидовна, помощник главного инженера
E-mail: bspalayr@tpu.ru

UDC 621.039.7

APPLICATION OF IRT-T RESEARCH REACTOR AS THE POTENTIAL SOLUTION OF GRAPHITE RADWASTE DISPOSAL PROBLEM

Pavliuk A.O.*, Kotlyarevsky S.G.*, Bespala E.V.*, Bespala Yu.R.**

* JSC «Pilot and Demonstration Center for Uranium-Graphite Nuclear Reactor Decommissioning». 13 Avtodoroga st. bld. 172a, Seversk, 636000 Russia

** National Research Tomsk Polytechnic University
30 Lenin ave., Tomsk, 634050 Russia

ABSTRACT

Aspects of handling irradiated graphite during decommissioning uranium-graphite reactors (UGR) of different types were investigated. It was demonstrated that handling reactor graphite is complicated by the presence in the composition of graphite elements of long-lived radionuclides, especially ^{14}C , which may get involved in biological cycles because carbon constitutes one of the main components of biological chains. Practical implementation of the process of selective separation of ^{14}C can significantly reduce potential danger of graphite radioactive wastes due to the reduction of graphite activity as related to the isotope in question, as well as due to the reduction of the leaching rate by separating ^{14}C isotope which is the most weakly bound within the graphite structure. Conclusion was formulated that analytical measurement methodologies and calculation methods allow reliably estimating only the total quantity of ^{14}C accumulated in graphite, the contribution of ^{14}C accumulation channel following $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$ reaction, as well as the total contribution of $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ reaction on nitrogen impurities and on nitrogen contained in purge gas. Method was suggested for estimating the values of contributions of different channels of accumulation on nitrogen impurities and on nitrogen contained in purge gas using IRT-T research reactor (Tomsk, Tomsk Region). Parallel irradiation of batches of samples of non-irradiated (fresh) reactor-grade

graphite placed in different gaseous media constitutes the basis of the study. Algorithm was suggested for calculating contributions of all channels of ^{14}C accumulation according to results of measurements to be obtained in the proposed studies. Recommendations were formulated on the use of all brands of graphite applied for manufacturing elements of graphite stacks of UGR designed in Russia for determining selectively separated fraction of ^{14}C for all types of graphite radioactive wastes by the companies in the RF which operated (are operating) the UGR. Time of exposure of samples of irradiated graphite in the GEK-4 horizontal experimental channel of the IRT-T reactor which was found to be equal to ~ 10 days was calculated. Methodology was suggested for conducting a series of experiments for determining the values of contributions of ^{14}C accumulation channels in the irradiated reactor graphite. The methodology suggested can be applied for determining fraction of selectively separated ^{14}C in irradiated graphite elements of practically all uranium-graphite nuclear reactors, including foreign-made reactors, under the condition of maintaining carbon dioxide gas atmosphere in one of the irradiated containers.

Keywords: irradiated reactor-grade graphite, uranium-graphite reactor, research reactor, IRT-T.

REFERENCES

1. Pavliuk A.O., Kotlyarevskij S.G., Bepala E.V. Experience of decommissioning of uranium-graphite reactor EI-2 in JSC «PDC UGR» Proc. «Radioactivity and radioactive elements in environment». Tomsk, 2016, pp. 508-512 (in Russian).
2. Romenkov A.A. Results obtained: Handling with radioactive graphite during decommissioning of uranium-graphite reactors using technology of graphite oxidation in molten salt. *Rosenergoatom*. 2011, no. 3, pp. 32-35 (in Russian).
3. Dunzik-Gougar M.L., Smith T.E. Removal of carbon-14 from irradiated graphite. *Journal of Nuclear Materials*. 2014, v. 451, pp. 328-335.
4. LaBrier D., Dunzik-Gougar M.L. Identification and location of ^{14}C -bearing species in thermally treated neutron irradiated graphites NBG-18 and NBG-25: Pre- and Post-thermal treatment. *Journal of Nuclear Materials*. 2015, v. 460, pp. 174-183.
5. Liu J., Wang C., Dong L., Liang T. Study on the Recycling of Nuclear Graphite after Micro-Oxidation. *Nuclear Engineering and Technology*. 2016, v. 48, pp. 182-188.
6. EPRI. Graphite Decommissioning: Options for Graphite Treatment, Recycling, or Disposal, including a discussion of Safety-Related Issues. Technical Report 1013091. 2006. 156 p. Available at: <https://pdfs.semanticscholar.org/1367/38dccadbc420b7a112af9dd4c3b6885c6e5d.pdf> (accessed Sept. 4 2017).
7. IAEA. Disposal aspects of low and intermediate level decommissioning waste. Technical Report IAEA-TECDOC-1572. Vienna, IAEA Publ. 2007. 159 p. Available at: http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/TE_1572_companion_CD_web.pdf (accessed Sept. 4 2017).
8. Vulpius D., Baginski K., Fischer C., Thomauske B. Location and chemical bond of radionuclides in neutron-irradiated nuclear graphite. *Journal of Nuclear Materials*. 2013, v. 438, pp. 163-177.
9. Rublevskij V.P., Yatsemko V.N., Chanyshv E.G. *The role of carbon-14 in technogeneous irradiation of people*. Moscow. IzdAT Publ., 2004. 197 p. (in Russian).
10. Pageot J., Rouzaud J.-N., Gosmain L., Deldicque D., Comte J., Ammar M.R. Nanostructural characterizations of graphite waste from French gas-cooled nuclear reactors and links with ^{14}C inventory. *Carbon*. 2016, v. 105, pp. 77-89.
11. Smith T.E., McCrory S., Dunzik-Gougar M.L. *Limited oxidation of irradiated graphite waste to remove surface carbon-14*. Idaho, Idaho State University Publ. 2012. 1776 p. Available at: <http://dx.doi.org/10.5516/NET.06.2012.025> (accessed Sept. 4 2017).
12. Dunzik-Gougar M.L., Smith T.E. Removal of carbon-14 from irradiated graphite. *Journal of*

Nuclear Materials. 2014, v. 451, pp. 328-335.

13. Fachinger J., von Lensa W., Podruzhina T. Decontamination of nuclear graphite. *Nuclear Engineering and Design*. 2008, v. 238, pp. 3086-3091.

14. Dirk V., Kathrin B., Benjamin K., Bruno T. Thermal treatment of neutron-irradiated nuclear graphite. *Nuclear Engineering and Design*. 2013, v. 265, pp. 294-309.

15. Von Lensa W., Vulpius D., Steinmetz H.J., Girke N., Bosbach D., Thomauske B., Banford A.W., Bradbury D., Grambow B., Grave M.J., Jones A.N., Petit L., Pina G. Treatment and disposal of irradiated graphite and other carbonaceous waste. *Atw-International Journal for Nuclear Power*. 2011, v. 57, pp. 263-269.

16. Sibermann G., Moncoffre N., Toulhoat N., Bererd N., Perrat-Mabilon A., Laurent G., Raimbault L., Sainsot P., Rouzaud J.-N., Deldicque D. Temperature effects on the behavior of carbon-14 in nuclear graphite. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 2014, v. 332, pp. 106-110.

17. Sach R.S., Williams W.J. The diffusion of ^{14}C in nuclear graphite. *Carbon*. 1974, v. 12, pp. 425-432.

18. Kane J.J., Karthik C., Ubc R., Windes W.E., Butt D.P. An oxygen transfer model for high purity graphite oxidation. *Carbon*. 2013, v. 2013, pp. 49-64.

19. Poluektov P.P., Kashcheev V.A., Ustinov O.A., Musatov N.D., Yakunin S.A., Karlina O.K., Diordii M.N. Physicochemical aspects of reactor graphite incineration. *Atomic Energy*. 2014, v. 116, no. 2, pp. 105-109.

20. Wickham A., Steinmetz H.-J., O'Sullivan P., Ojovan M.I. Updating irradiated graphite disposal: Project 'GRAPA' and the international decommissioning network. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2017, v. 171, pp. 34-40.

Authors

Pavliuk Alexander Olegovich, Group Head, Cand. Sci. (Phys.-Math.)

E-mail: seversknet@rambler.ru

Kotlyarevskiy Sergey Gennad'evich, Engineer

E-mail: ksg75@rambler.ru

Bespala Evgeny Vladimirovich, Engineer, Cand. Sci. (Phys.-Math.)

E-mail: bespala_evgeny@mail.ru

Bespala Yuliya Rashidovna, Chief Engineer Assistant

E-mail: bespalayr@tpu.ru