

СОДЕРЖАНИЕ ДОЛГОЖИВУЩИХ РАДИОНУКЛИДОВ УГЛЕРОДА-14 И ХЛОРА-36 В РЕАКТОРНОМ ГРАФИТЕ И В БИОСФЕРЕ (ЕСТЬ ЛИ ПРОБЛЕМА С УГЛЕРОДОМ-14 И ХЛОРОМ-36, КОГДА МЫ ГОВОРИМ О ПЕРЕРАБОТКЕ РЕАКТОРНОГО ГРАФИТА?)

© 2020 г. Б. Ф. Петров^a, Ю. А. Похитонов^{a,*}

Радиевый институт им. В. Г. Хлопина, 194021, Санкт-Петербург, 2-й Мурунский пр., д. 28

**e-mail: ypokh@khlopin.ru*

Получена 22.01.2019, после доработки 18.04.2019, принята к публикации 25.04.2019

Приведено сравнение количеств техногенного углерода и хлора, содержащегося в реакторном графите и в биосфере. Общее количество ^{14}C на Земле и в атмосфере, по приблизительной оценке, составляет 2.0×10^8 Ки, в то время как во всем реакторном графите в России эта величина не более 3×10^7 Ки. Количество ^{36}Cl в реакторном графите составляет примерно $(0.2-5) \times 10^3$ Ки, что во много раз меньше его содержания в океане – 7.16×10^8 Ки. Поэтому при размещении отходов реакторного графита в приповерхностном хранилище выход ^{14}C и ^{36}Cl не приведет к существенным диспропорциям их накопления в биосфере.

Ключевые слова: реакторный графит, углерод-14, хлор-36

DOI: 10.31857/S0033831120010128

ВВЕДЕНИЕ

При выводе из эксплуатации уран-графитовых реакторов графит становится отдельным видом специфичных отходов атомной энергетики, и однозначного решения проблемы обращения с ними нет ни в одной стране в мире [1, 2]. Согласно существующим в России нормативным документам, реакторный графит в зависимости от содержания радиоактивных примесей может быть отнесен ко 2-му или 1-му классу опасности отходов, которые необходимо захоранивать исключительно в ПГЗРО. Пришло время сформировать адекватное отношение к проблеме опасности, обусловленной содержанием ^{14}C и ^{36}Cl в реакторном графите. Решение данного вопроса напрямую связано с выбором технологии обращения с этими отходами. По нашему мнению, для выбора наименее затратных вариантов обращения с графитом необходим обоснованный пересмотр норм по содержанию в нем примесей ^{14}C и ^{36}Cl .

В настоящем сообщении приведено сравнение количеств техногенного углерода и хлора, содержащегося в реакторном графите, по отношению к их количеству в биосфере и в других техногенных источниках.

Содержание ^{14}C в биосфере и ^{36}Cl без учета техногенных процессов. Долгоживущий изотоп углерода ^{14}C образуется как в естественных, так и в искусственных условиях и, попадая в окружающую среду, способен оказывать негативное воздействие на жизнедеятельность живых организмов [3]. Вопросы накопления и поведения ^{14}C в природе стали предметом детального изучения только в конце XX столетия, когда стало понятно, что проведение испытаний ядерного оружия может привести к резкому росту содержания ^{14}C в живых организмах. Рост концентрации радиоактивного углерода в живых организмах поставил перед учеными правомерный вопрос о возможных последствиях, в том числе и последствиях отдаленных, влияющих на будущие поколения.

Таблица 1. Усредненные значения удельной активности ^{14}C и ^{36}Cl в облученном реакторном графите, Бк/г [7–10]

Нуклид	Кладка И-1 СХК	Кладка ЭИ-2 СХК	Кладка РБМК Чернобыльской АЭС	Графит УГР Magnox	Графит УГР Cadarache, Франция
^{14}C	2.3×10^6	1.4×10^6	1.1×10^5	2.2×10^4	$(5.6 \pm 1.1) \times 10^4$
^{36}Cl	$(0.5-1.1) \times 10^2$	$(0.5-1.1) \times 10^2$	1.0×10^3		$(7.5 \pm 1.5) \times 10^3$

В природе появление ^{14}C обусловлено протеканием ряда реакций, из которых определяющей является реакция $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$. Остальные пути образования ^{14}C играют менее значимую роль ввиду малых сечений взаимодействия или низкого содержания углеродобразующих изотопов (^{15}N , ^{17}O , ^{13}C) [4, 5].

Средняя интенсивность образования естественного ^{14}C в атмосфере составляет $2.5 \text{ атом} \cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ земной поверхности, или 1.54 ПБк/год . Равновесное количество ^{14}C в биосфере остается на уровне $8.5 \times 10^{18} \text{ Бк}$. При этом основное количество ^{14}C накапливается в глубинных слоях океана (92%) [4].

Концентрация естественного ^{14}C в земной биосфере одинакова и равна 238 Бк/кг стабильного углерода. Такая же концентрация ^{14}C приходится на единицу массы углерода, входящего в органы и ткани человека. И эта величина является природным фактором, на который мы не можем повлиять.

Радионуклид ^{36}Cl , как и ^{14}C , образуется в стратосфере и тропосфере в результате ядерных реакций, преимущественно на аргоне, и попадает в тропосферу во время сезонного переноса массы воздуха через тропопаузу. Оценка средней глобальной скорости образования ^{36}C в атмосфере дает величину 20 атомов в секунду на квадратный метр. Равновесная активность ^{36}Cl примерно равна $\sim 1 \text{ Бк/кг}$, и содержание только в океане составляет $2.65 \times 10^{19} \text{ Бк}$ [5].

Нет необходимости приводить ссылки в качестве доказательства того, что повышение концентрации антропогенного ^{14}C и ^{36}Cl во внешней среде представляет большую экологическую проблему. И вполне очевидно, что источником техногенных нуклидов ^{14}C и ^{36}Cl являются ядерная энергетика во всех ее проявлениях. Попробуем рассмотреть составляющие компоненты ядерной энергетике, так или иначе определяющие рост концентрации ^{14}C и ^{36}Cl в биосфере.

При взрыве ядерных устройств нейтроны поглощаются ядрами азота-14 с образованием техногенного ^{14}C . Очевидно, что количество зависит от типа бомбы, конструкции, мощности, а также и от места проведения испытаний. За период испытаний с 1945 по 1968 гг. количество ^{14}C , которое появилось в атмосфере, по разным оценкам находится в пределах от 92×10^{27} до 443×10^{27} атомов ^{14}C [4]. Но не будем также забывать, что еще до начала испытаний работали промышленные уран-графитовые реакторы (ПУГР), которые наработали плутоний и которые также были источником ^{14}C .

После подписания Договора о запрещении проведения испытаний поступление техногенных ^{14}C и ^{36}Cl в биосферу резко сократилось, и их содержание должно постепенно снижаться до равновесного уровня, который существовал до появления ядерного оружия.

Попробуем сопоставить приведенные данные с содержанием ^{14}C и ^{36}Cl в реакторном графите. Расчетные оценки накопления ^{14}C в графите промышленных реакторов (ПУГР) приведены в работах [2, 6]. Для флюенса $10^{23} \text{ нейтр/см}^2$ и при исходном содержании примеси азота в графите $34 \times 10^{-6} \text{ мас\%}$ удельная активность ^{14}C , накопленного в результате активации, составляет 0.34 МБк/г . Удельная активность ^{14}C , накопленного за счет активации азота в порах, равна 1.2 МБк/г . Таким образом, суммарное накопление ^{14}C из азота по двум каналам составляет 1.5 МБк/г .

Не будем забывать и о другом источнике образования ^{14}C в графите – реакции $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$. Но поскольку концентрация ^{13}C в природном углероде равна 1.03% , вклад в общую активность образовавшегося ^{14}C составляет около 5% [6]. Отметим, что полученные экспериментальные данные по содержанию ^{14}C в графите ПУГР хорошо согласуются с результатами расчетной оценки.

Данные по содержанию ^{14}C и ^{36}Cl в реакторном графите приведены в табл. 1.

Таблица 2. Данные по содержанию ^{14}C и ^{36}Cl в разных источниках

Объект	Содержание ^{14}C и ^{36}Cl
Биосфера	Общая активность ^{14}C в атмосфере 2.3×10^8 Ки. Общее количество ^{14}C на Земле около 50 т (20.0×10^7 Ки) Общая активность ^{36}Cl в океане 7.16×10^8 Ки
Ядерные испытания	Общая активность ^{14}C $(2-10) \times 10^7$ Ки
Реакторный графит	^{14}C в мире $0.89 \times 10^6 - 1.45 \times 10^7$ Ки, в России $0.17 \times 10^6 - 0.29 \times 10^7$ Ки ^{36}Cl в мире $(0.8-8) \times 10^3$ Ки, в России $(0.2-5) \times 10^3$ Ки

Согласно оценкам, в мире накоплено около 300 тыс. т отработавшего графита. Если перемножить приведенные выше значения содержания ^{14}C в графите, получаем значение $0.89 \times 10^6 - 1.45 \times 10^7$ Ки во всем объеме реакторного графита в мире и, соответственно, в России $1.7 \times 10^5 - 2.9 \times 10^6$ Ки (условно в пересчете на 60 тыс. т). Много это или мало? Попробуем сравнить с другими источниками поступления техногенного ^{14}C .

После прекращения испытаний ядерного оружия (и наработки плутония в ПУГР), единственными значимыми источниками техногенного ^{14}C и ^{36}Cl становятся АЭС и предприятия по переработке ОЯТ. В активной зоне атомных реакторов ^{14}C и ^{36}Cl образуются при взаимодействии нейтронов с примесями азота, углерода, хлора и кислорода в материалах конструкций, теплоносителя и замедлителя.

Накопление ^{14}C и ^{36}Cl в самом облученном топливе не может конкурировать с их количествами, выделяемыми при работе АЭС (табл. 2).

Из приведенной таблицы видно, что даже в случае непредвидимых ситуаций и неконтролируемых процессов при приповерхностном хранении реакторного графита выход ^{14}C и ^{36}Cl не может внести существенных диспропорций в их накоплении в биосфере. Вместе с тем, любые операции по переработке графита только увеличат объем отходов и потребуют дополнительных расходов. В то же время не будем забывать, что сам графит является вполне приемлемым материалом для фиксации ^{14}C .

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wickham A.J., Drace Z., Treatment of Irradiated Graphite to Meet Acceptance Criteria for Waste Disposal: A New IAEA Collaborative Research Program // Waste Management Conf. Phoenix, Arizona (USA), February 26–March 1, 2012.
2. Бушуев А.В., Кожин А.Ф., Петрова Е.В., Зубарев В.Н., Алеева Т.Б., Гирке Н.А. Радиоактивный реакторный графит: Монография. М.: НИЯУ МИФИ, 2015. 148 с.
3. Распределение естественного и искусственного углерода-14 и создаваемые им тканевые дозы : Докл. НКДАР ООН. А/АС, 82/ R137, 1961. 29 с.
4. Калистратова В.С., Беляев И.К., Жорова Е.С. и др. Радиобиология инкорпорированных радионуклидов / Под ред. В.С. Калистратовой. М.: Изд-во ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России, 2012. 464 с.
5. Добровольский В.В. Основы биогеохимии: Учебник для студ. вузов. М.: Академия, 2003. 400 с.
6. Гирке Н.А., Бушуев А.В., Кожин А.Ф. и др. // Атом. энергия. 2012. Т. 112, № 1. С. 51.
7. Бушуев А.В., Верзилов Ю.М., Зубарев В.Н. и др. // Атом. энергия. 2002. Т. 92, № 6. С. 477.
8. Домашев Е.Д., Симановский В.М. // Пром. теплотехника. 1999. Т. 21, № 4–5. С. 111.
9. McDermott L. Characterisation and Chemical Treatment of Irradiated UK Graphite Waste: PhD Thesis. Manchester: Univ. of Manchester, 2011.
10. Бушуев А.В., Алеева Т.Б., Кожин А.Ф. и др. Анализ содержания радионуклидов в образце облученного реакторного графита из Франции. М.: МИФИ, ИФХ РАН, 2002.