

Ю. О. Ольховик

ДУ «Інститут геохімії навколишнього середовища НАН України», просп. Академіка Палладіна, 34а, Київ, 03142, Україна

Щодо поводження з реакторним графітом Чорнобильської АЕС

Ключові слова:

опромінений реакторний графіт,
захоронення,
вилугування,
міграція,
радіовуглець.

Розглянуто проблеми кондиціонування опроміненого реакторного графіту, який є основним елементом активної зони реакторів РБМК енергоблоків 1–3 Чорнобильської атомної електростанції, що знімаються з експлуатації. Загальний об'єм графітових блоків становить 3700 м³. Радіологічна небезпека опроміненого графіту пов'язана з наявністю довгоживучих радіонуклідів ¹⁴C і ³⁶Cl, які у природних умовах мають високу міграційну здатність. Проаналізовано можливі наслідки захоронення реакторного графіту в гіпотетичному приповерхневому сховищі, організованому на нижньому поверсі будівлі енергоблока після закінчення етапу демонтажу обладнання у разі ухвалення рішення про захоронення на місці. Розрахунки, виконані із залученням літературних даних щодо вилугування радіонукліду ¹⁴C, свідчать про ймовірність неприпустимого впливу радіовуглецю на навколишнє середовище у випадку реалізації сценарію захоронення опроміненого реакторного графіту у приповерхневому сховищі. Розглянуто можливі технології створення додаткових інженерних захисних бар'єрів під час захоронення опроміненого реакторного графіту.

Вступ

Проблема поводження з графітом активних зон уран-графітових реакторів актуальна, оскільки країни світової спільноти нині накопичили значну кількість (щонайменше 250 000 т) опроміненого графіту, який потребує відповідного і безпечного поводження. Цей графіт в основному є конструкційним матеріалом і основним елементом активної зони деяких експериментальних реакторів, промислових уран-графітових реакторів і каналних енергогенеруючих реакторів. Держави, що мають найбільші запаси опроміненого реакторного графіту (ОРГ) — це Великобританія, Російська Федерація (РФ), США та Франція (рис. 1) [1].

В Україні наявність ОРГ обумовлена експлуатацією чотирьох уран-графітових каналних реакторів РБМК-1000 у складі Чорнобильської атомної електростанції (ЧАЕС). Унаслідок аварії в 1986 р. графіт

зі зруйнованого енергоблока № 4 є високоактивними відходами, що містять дисперговане ядерне паливо, і далі не розглядається. Не розглядаються також окремі випадки наявності у графітових блоках вклю-

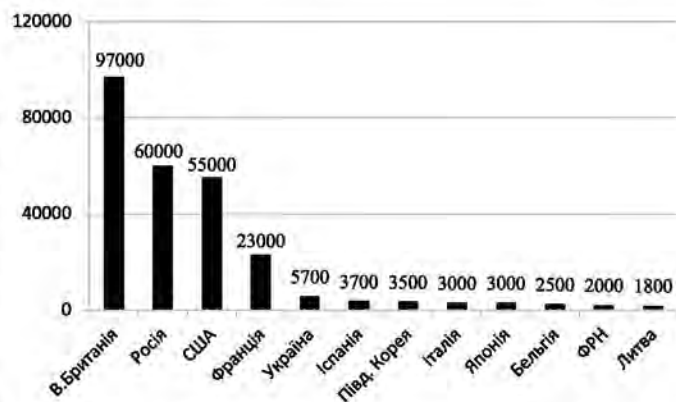


Рис. 1. Об'єми накопиченого опроміненого реакторного графіту, т

© Ю. О. Ольховик, 2019

чень (так званих просипів) опроміненого ядерного палива, тобто забруднення подільними матеріалами і продуктами поділу.

До цього часу не визначено стратегію поводження з опроміненим реакторним графітом, для якої існують дві альтернативи — або попередня обробка графіту з метою видалення рухомих радіонуклідів шляхом застосування деяких фізичних чи хімічних процесів, або іммобілізація для обмеження та запобігання виходу радіонуклідів. Метод спалювання опроміненого графіту має суттєвий недолік, пов'язаний з утворенням великого об'єму вторинних відходів (маса карбонатів, що утворюються під час поглинання CO_2 , майже на порядок перевищує масу вихідного графіту). Ця обставина унеможливує використання спалювання для переробки графіту в масштабі, що відповідає накопиченому обсягу ОРГ. Міжнародним агентством з атомної енергії (МАГАТЕ) відзначено, що більшість країн схильються до захоронення графіту в геологічному сховищі, а не до дезактивації ОРГ [1]. Це обумовлено насамперед відсутністю технологій, спроможних очистити ОРГ на 99,9 % від ізотопу ^{14}C з формуванням мінімального об'єму вторинних відходів у вигляді матриці, стійкої протягом десятків тисяч років.

Метою цієї публікації є оцінка впливу опроміненого реакторного графіту ЧАЕС на навколишнє середовище за можливих сценаріїв його захоронення у разі мінімальної обробки опроміненого матеріалу.

Стан проблеми та аналіз літературних даних

Слід зазначити, що графіт активних зон належить до класу штучних графітів, які виготовляють за допомогою електродної технології з шихти, яка містить близько 75 % коксу, 25 % кам'яновугільної смоли та сажі. Графітизацію заготовок проводять в електропечах за температури 2400–2800 °C протягом тижня з одночасною продувкою хлором для видалення домішок. Однак навіть після високотемпературної обробки домішки частково залишаються всередині пор графіту, у мікротріщинах і в хімічних сполуках. Теоретична щільність графіту становить 2,27 г/см³, щільність реакторного графіту — 1,65–1,75 г/см³. Це означає, що реакторний графіт має значну пористість. Пори сполучаються між собою, що обумовлює газопроникність матеріалу. Діаметр пор дорівнює 1–30 мкм, однак є значна кількість мікропор діаметром 200–2000 нм.

Радіонукліди, що містяться в опроміненому графіті — ^{14}C та ^{36}Cl — мають великі періоди напіврозпаду — 5 730 та 301 000 років відповідно. Специфікою зазначених радіонуклідів є їхня висока мобільність. Відсутність в умовах Українського Полісся будь-яких геохімічних бар'єрів, здатних дієво впливати на міграційну здатність ^{14}C та ^{36}Cl , визначає довгострокову радіологічну небезпеку радіоактивних відходів у вигляді реакторного графіту. Усереднена оцінка вмісту радіовуглецю в реакторному графіті наведена у табл. 1.

Інший довгоживучий ізотоп ^{36}Cl не є визначальним, адже його питома активність становить лише 10^2 – 10^3 Бк/г.

Таблиця 1. Вміст ^{14}C в опроміненому реакторному графіті

Реактор	^{14}C , Бк/г
UK Magnox (Oldbury)	9,8E04
UK Magnox(Wylfa)	8,6E04
Japan Magnox (Tokai) [2]	~8,4E04
Lithuania RBMK (Ignalina) [3]	5,2E04–3,6E05
France UNGG (Bugey 1) [4]	~12,6E04
France UNGG (Chinon A3) [4]	~4,0E04
Spain Magnox (Vandellos) [5]	~5,6E04
РБМК-1000 (ЧАЕС, Україна)	~E04–E05

Постановка завдань дослідження

Оскільки ОРГ утворився під час виробництва ядерної енергії, що включає будь-яку діяльність у межах будь-якої частини ядерного паливного циклу, експлуатації та зняття з експлуатації установок ядерного паливного циклу, то на цей матеріал поширюються встановлені в Україні рівні звільнення [4], які становлять 1 Бк/г як для радіовуглецю, так і для ^{36}Cl .

З огляду на чинну в Україні класифікацію радіоактивних відходів (РАВ) опромінений графіт належить до категорії довгоживучих твердих середньоактивних відходів, що підлягають захороненню в стабільних геологічних формаціях [7–8].

Однак у 2015 р. у РФ промисловий уран-графітовий реактор ЭИ-2 був знятий з експлуатації за спрощеним варіантом захоронення на місці шляхом створення пункту консервації особливих РАВ (рис. 2). Виконано демонтаж усіх допоміжних систем і устаткування, крім самого реактора. Підреакторні приміщення заповнені бетоном, а решта приміщень нижче рівня землі — сумішшю на основі глини. Будівельні конструкції вище рівня землі демонтовані, після чого

організовано бар'єр від проникнення метеопадів. Слід відзначити, що бокові глиняні екрани відсутні. Аналогічні роботи заплановані після 2020 р. для решти реакторів підприємства: АДЕ-4, АДЕ-5, АДЕ-3, І-1 [9].

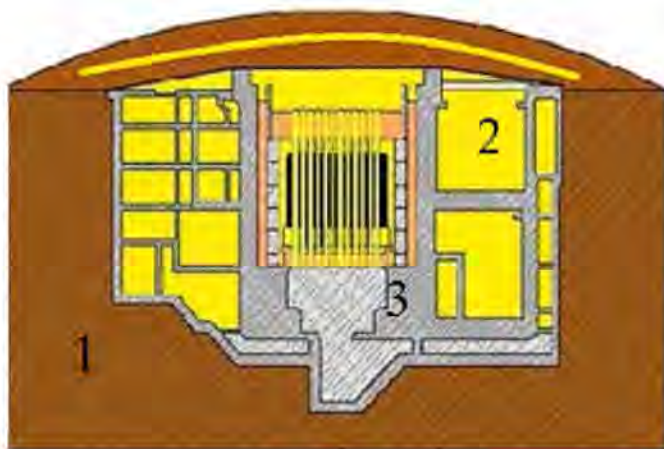


Рис. 2. Схема захоронення реактора ЕИ-2: 1 — ґрунт, 2 — глиняна суміш, 3 — бетон

Ті ж самі дії заплановані в РФ щодо захоронення уран-графітових реакторів АД, АДЕ-1 та АДЕ-2, що експлуатувалися на Гірничо-хімічному комбінаті. Підреакторний простір і металокопункції реактора заплановано заповнити бетоном, реакторний простір з графітовою кладкою — бентонітовими глинами [10].

Довгострокова безпека захоронення зазначених реакторів шляхом створення пункту захоронення на місці має бути забезпечена системою бар'єрів для мінімізації міграції радіонуклідів. До наявних бар'єрів належать металокопункції, що утворюють реакторний простір, залізобетонна стінка шахти реактора та інші будівельні конструкції. Заповнення приміщень реактора включно з реакторним простором сумішшю на основі глини розглядається як додатковий захисний бар'єр, що запобігає міграції радіонуклідів із захороненого реактора в навколишнє середовище. При цьому без будь-якого обґрунтування у прогнозі міграції радіовуглецю застосовано значення коефіцієнта розподілу у системі «глина — вода», що дорівнює 120 г/см^3 [11].

Ця практика послугувала обґрунтуванням для розгляду можливості використання захоронення на місці під час зняття з експлуатації енергоблоків ЧАЕС [12], хоча такого терміну «захоронення на місці» немає в нормативно-правовій базі України [8, 13].

Матеріали дослідження й інтерпретація результатів

Розглянемо можливу картину поведінки довгоживучого ізотопу ^{14}C в умовах приповерхневого захоронення графітової кладки реакторів РБМК-1000 ЧАЕС у гіпотетичному сховищі, яким може стати будівля одного з енергоблоків 1 або 2. Необхідно враховувати, що поводження з опроміненим реакторним графітом є відкладеним рішенням, а створення національного сховища для захоронення довгоживучих РАВ у стабільних геологічних формаціях досі залишається невирішеною проблемою. З огляду на це питання щодо практичних дій із захоронення на місці ОРГ може виникнути лише через 50–100 років, хоча цей термін практично не вплине на сумарну активність радіовуглецю.

Графітова кладка реактора РБМК-1000 складається з 2 488 вертикальних графітових колон, зібраних із прямокутних блоків заввишки 200, 300, 500 і 600 мм, з основою 250×250 мм і з внутрішнім отвором діаметром 114 мм. Далі під час розрахунків приймаємо, що всі блоки мають висоту 600 мм, їхній сумарний об'єм для енергоблоків 1–3 становить $3\,732 \text{ м}^3$, маса 5 280 т. Гіпотетичне приповерхнє сховище може бути організоване на нижньому поверсі будівлі енергоблока після закінчення етапу демонтажу обладнання й очищення будівельних конструкцій до рівнів обмеженого звільнення від регулюючого контролю, установлених для кінцевого стану майданчика ЧАЕС.

Вищезазначений об'єм ОРГ може бути розміщений у вигляді паралелепіпеда розміром $5 \times 12 \times 62$ м (висота, ширина і довжина відповідно). Наявні пустоти після розміщення ОРГ мають бути заповнені глиняною сумішшю, хоча слід визнати, що досягти 100% заповнення пустот неможливо. Сховище має бути перекрите ізолюючим шаром для запобігання надходження опадів у тіло сховища. Таким чином, аналогічно до пункту захоронення промислового реактора ЕИ-2 буде сформована мультибар'єрна система захисту.

Однак із плином часу верхній ізоляційний шар втратить свої захисні функції, і осади заповнять все приміщення із графітом. Залізобетонні конструкції теж почнуть деградувати, тому вода в сховище може потрапляти не тільки через верхній екран, але й через різного роду отвори, нещільності тощо. Унаслідок деградації залізобетону вода у приповерхневому сховищі не накопичується, а через тріщини в бетоні фільтрується вниз через зону аерації у водоносний горизонт. Час, коли приповерхнє

сховище досягне вищезазначеного стану, може становити 600–1000 років, але це не вплине суттєво на активність унаслідок великого періоду напіврозпаду ізотопу ^{14}C .

Кожен графітовий блок має поверхню, що складається з бічної поверхні й поверхні каналу та дорівнює $0,92 \text{ м}^2$. Загальна кількість графітових блоків сягає 100 000 одиниць. Один кубічний метр графітових блоків має $21,7 \text{ м}^2$ вертикальних площин, що включає як бічну поверхню, так і поверхню каналів.

З урахуванням зазначених величин і зважаючи на літературні дані щодо інфільтраційного потоку та швидкості вилуговування ізотопу ^{14}C із ОРГ розраховуємо можливу міграцію радіовуглецю зі сховища.

Авторами [14] на основі ізотопних датувань встановлено, що величина середньобагаторічного (за останні 60 років) інфільтраційного живлення підземних вод становить $\epsilon = 200 \text{ мм/рік} = 200 \text{ л}/(\text{м}^2 \cdot \text{рік})$ на ділянці першої надзаплавної тераси р. Прип'ять у ближній зоні ЧАЕС.

Швидкість вилуговування радіовуглецю з ОРГ визначалась експериментально в різних лабораторіях для зразків із реакторів Magnox (Велика Британія), Hanford (США) та G-2 (Франція) [15–18].

Незважаючи на деяку різницю в отриманих результатах, що може бути пов'язана з експериментальними методологіями, різницею у тривалості випробувань, температурі тощо, узагальнене значення швидкості вилуговування радіовуглецю становить $(0,5 \div 1) \text{ E-6 см/доба}$. Беручи до уваги щільність реакторного графіту $1,65 \text{ г/см}^3$, значення швидкості вилуговування становить $1,65 \text{ E-6 г/см}^2 \cdot \text{доба}$, що близьке до швидкості вилуговування радіонуклідів зі скляної матриці.

Наведена оцінка швидкості вилуговування дає змогу розрахувати вихід радіовуглецю з графіту реактора. Річний вихід дорівнює добутку питомої активності графіту, швидкості вилуговування, площі поверхні графітових блоків і кількості діб у році. Виконання розрахунку із застосуванням наведених раніше даних приводить до висновку, що щорічно зі сховища в навколишнє середовище може надходити $4,9 \text{ E}10 \text{ Бк}$ радіоізотопу ^{14}C . Слід підкреслити, що зазначена величина насправді може бути значно більшою, адже під час розрахунків не взята до уваги притаманна реакторному графіту пористість, що суттєво — у десятки разів — може збільшити площу взаємодії графіту з водою. Крім того, проникнення в захоронений графіт води, що контактувала з ґрунтами, може призвести до надходження в пори

опроміненого графіту міксоміцетів (*Acremonium*, *Arthrimum*, *Paecilomyces* та ін.), які можуть активно руйнувати його структуру [19]. Ці фактори призведуть до інтенсифікації процесу вилуговування і відповідно до підвищення питомої активності води, що інфільтрується через графітові блоки.

Потік води через захоронення графіту з вищенаведеною геометрією дорівнює добутку горизонтальної площі на значення середньорічного інфільтраційного живлення підземних вод і становить $12 \times 62 \times 200 = 1,45 \text{ E} 5 \text{ л/рік}$.

Таким чином, питома активність води по радіовуглецю, що просочилася через ОРГ і далі надходить через зону аерації у верхній водоносний горизонт, становитиме

$$A_{\text{вп}} = 4,9 \text{ E} 10 \text{ Бк/рік} / 1,45 \text{ E} 5 \text{ л/рік} = 3,3 \text{ E} 5 \text{ Бк/л}.$$

Це значення в 160 разів перевищує $\text{ДК}_g^{\text{ingest}} = 2000 \text{ Бк/л}$ для ізотопу ^{14}C [20], і за критерієм значень питомої активності в одиницях кратності $\text{ДК}_g^{\text{ingest}}$ можна стверджувати, що з приповерхневого сховища ОРГ у верхній водоносний горизонт будуть надходити рідкі середньоактивні РАВ [7], що категорично заборонено природоохоронним законодавством України.

Беручи до уваги відсутність геохімічних бар'єрів на шляху міграції сполук радіовуглецю з підземними водами і близьку відстань від приміщень енергоблоків до річки Прип'ять, можна зробити висновки про вірогідність довгострокового постійного надходження ізотопу ^{14}C із організованого на місці приповерхневого захоронення ОРГ у поверхневі води з формуванням значної колективної дози внаслідок вживання питної води, риби і сільськогосподарської продукції. Так, приймаючи значення дозового коефіцієнта при надходженні ^{14}C в організм дорослої людини з питною водою, що дорівнює $e = 6,4 \text{ E-7 мЗв/Бк}$ [21], розрахунок призводить до висновку щодо можливості формування колективної дози $31,4 \text{ Зв/рік}$ лише внаслідок виходу радіовуглецю з ОРГ, розміщеного у приповерхневому сховищі в будівлі корпусу енергоблока ЧАЕС.

Таким чином, виконані розрахунки свідчать на користь висновку, що захоронення ОРГ на місці в приповерхневому сховищі може мати довгостроковий негативний вплив на навколишнє середовище. З огляду на вищезазначене, захоронення реакторного графіту має відбуватись лише у геологічному сховищі в глибинних горизонтах повільного водообміну.

Через брак ефективних геохімічних бар'єрів для сполук вуглецю міграція радіоізоотопу ^{14}C із геологічного сховища буде визначатися регіональним режимом підземних вод.

Посилення безпеки захоронення ОРГ можливе шляхом формування додаткових інженерних бар'єрів, що запобігають контакту розвинутої поверхні графітових блоків з підземними водами. Створення додаткового інженерного бар'єра, який обмежує надходження ґрунтової води до об'єкта, знизить вилюговування радіонуклідів з графіту і відповідно потенційний вплив довгоживучих ^{14}C і ^{36}Cl на довкілля. Як приклад можна навести пропозицію щодо кондиціонування РАВ включно з ОРГ із застосуванням так званого консерванта «Г», що є сумішшю з епоксидної діанової смоли, фурфуролу, поліетиленполіаміну і сланцевого модифікатора [22]. Однак можливість збереження ефективності зазначеного бар'єра, що складається з органічної речовини, протягом тисяч років в умовах впливу факторів навколишнього середовища, викликає сумнів. На думку автора, додатковим інженерним бар'єром міг би слугувати нанесений на графітовий блок мікронний шар із матеріалу, а ргіої стійкого у природних умовах протягом тисячоліть, наприклад із золота чи карборунда. Останній є карбідом кремнію SiC , який завдяки сильним хімічним зв'язкам вирізняється серед інших матеріалів високою хімічною і радіаційною стійкістю, температурною стабільністю фізичних властивостей, великою механічною міцністю і високою твердістю. Наразі широко відомі технології, завдяки яким можна нанести на поверхню графітового блоку стійке покриття з карбіда кремнію. Так, сублимація порошкоподібного SiC в атмосфері аргону при $2500\text{ }^\circ\text{C}$ з подальшим осадом на холодній підкладці графіту дає можливість отримати якісне і довгостійке захисне покриття. Відомий інший процес — термічне розкладання полімеру поліметилсилану $(\text{SiCH}_3)_n$ в атмосфері інертного газу за низьких температур. У будь-якому разі вельми інертну хімічну речовину карбід кремнію SiC можна розглядати як перспективний матеріал для створення додаткового інженерного бар'єра при захороненні ОРГ.

У разі розміщення РАВ у камері геологічного сховища традиційно розглядається необхідність засипання порождин бентонітовою глиною, що уповільнює водообмін і виконує функції сорбційного бар'єра. У випадку захоронення ОРГ сорбційні процеси щодо радіовуглецю і ^{36}Cl відсутні. З огляду на цю особливість для попередження надходження підземної води до сховища може бути застосований ще один

додатковий захисний бар'єр, здатний забезпечити ізоляцію графітових блоків від контакту з підземними водами і обмежити надходження підземної вологи шляхом переведення її в менш рухливу гелеподібну форму впродовж тривалого часу.

Як такі бар'єрні матеріали можна застосувати деякі глинополімерні матеріали, синтезовані на основі бентонітових і палигорскітових глин Черкаського родовища. Коефіцієнт фільтрації через композит має значення близько 10^{-10} м/с, що в поєднанні з високою здатністю поглинання вологи, яка проникає крізь стінки сховища, свідчить на користь застосування глинокомпозитів як бар'єрного матеріалу [23]. Крім того, композити під час контакту з вологою набувають, що сприятиме заповненню всіх порожнин і тріщин, одночасно підвищується тиск і відбувається гідроізоляція об'єму камери, перешкоджаючи надходженню нових порцій вологи.

Висновки

1. Виконані розрахунки свідчать про вірогідність недопустимого впливу радіонукліда ^{14}C на навколишнє середовище у випадку реалізації сценарію захоронення опроміненого реакторного графіту у приповерхневому сховищі.

2. З огляду на відкладене рішення щодо методів кондиціонування і захоронення ОРГ, слід запланувати і виконати цільові науково-дослідні роботи щодо характеристики ОРГ з енергоблоків № 1–3 ЧАЕС з метою визначення розподілу активності ^{14}C і ^{36}Cl у графітовій кладці і поведінки ОРГ під впливом факторів навколишнього середовища і, перш за все, параметрів вилюговування радіонуклідів ^{14}C і ^{36}Cl протягом довгострокового періоду потенційної небезпеки.

3. Розробка і впровадження технологій створення додаткових інженерних захисних бар'єрів на поверхні графітових блоків має визначальне значення для забезпечення довгострокової безпеки захоронення ОРГ.

Список використаної літератури

1. IAEA-TECDOC-1790. Processing of Irradiated Graphite to Meet Acceptance Criteria for Waste Disposal / International Atomic Energy Agency. — Vienna: IAEA, 2016. — 148 p.
2. Takahashi R. Investigation of morphology and impurity of nuclear grade graphite, and leaching mechanism of Carbon-14 / R. Takahashi, M. Toyahara, S. Maruki, H. Ueda // Proceedings of a Technical Committee Meeting

- “Nuclear Graphite Waste Management” (Manchester, October 18–20, 1999). — Vienna: IAEA, 2001.
3. Narkunas E. Assessment of Different Mechanisms of C-14 Production in Irradiated Graphite of RBMK-1500 Reactors / E. Narkunas, A. Smaizys, P. Poskas, R. Kilda // *Kerntechnik*. — 2010. — Vol. 75. — P. 185–194. — <https://doi.org/10.3139/124.110083>.
 4. Poncet B. Method to Assess the Radionuclide Inventory of Irradiated Graphite from Gas-Cooled Reactors / B. Poncet // *Annual Waste Management Symposium (WM2013)*. International Collaboration and Continuous Improvement. — Phoenix, 2013. — P. 6939–6953.
 5. Marquez E. GRAFEC: A New Spanish Program to Investigate Waste Management Options for Radioactive Graphite / E. Marquez, G. Pina, M. Rodriguez, et al. // *Annual Waste Management Symposium (WM2012)* (February 26 — March 1, 2011, Phoenix, Arizona, USA); *Improving the Future in Waste Management*. — Phoenix, 2012. — P. 3210–3224.
 6. Рівні звільнення радіоактивних матеріалів від регулюючого контролю: гігієнічні нормативи: затверджені постановою Головного санітарного лікаря України від 30.06.2010 № 22. — Київ, 2010.
 7. ДСП 6.177–2005–09–02. Основні санітарні правила забезпечення радіаційної безпеки України ОСПУ. [Затверджені наказом МОЗ України від 02.02.2005 р. № 54]. — 120 с.
 8. Закон України «Про поводження з радіоактивними відходами» № 255/95-ВР від 30.06.1995 р. // *Відомості Верховної Ради України*. — 1995. — № 27. — Ст. 198.
 9. Изместьев А. М. Бесполостное заполнение пустот в реакторном пространстве при выводе из эксплуатации ПУГР / А. М. Изместьев, С. Г. Котляревский, И. Н. Селеев, К. В. Юшин // *Безопасность ядерных технологий и окружающей среды*. — 2012. — № 2.
 10. Гаврилов П. М. Вывод из эксплуатации промышленных уранграфитовых реакторов ФГУП «ГХК» / П. М. Гаврилов, А. А. Устинов, М. В. Антоненко, А. Д. Горобченко, К. Ю. Соколов, Д. В. Жирников // *Безопасность ядерных технологий и окружающей среды*. — 2011. — № 3.
 11. Павлюк А. О. Моделирование процесса миграции долгоживущих радионуклидов из графитовых радиоактивных отходов / А. О. Павлюк, С. Г. Котляревский, Е. В. Беспала и др. // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. — 2017. — Т. 328. — № 4. — С. 75–84.
 12. Стельмах Д. А. Захоронення на місці як варіант зняття з експлуатації об'єктів Чорнобильської АЕС / Д. А. Стельмах, В. К. Кучинський, А. М. Платоненко // *Ядерна та радіаційна безпека*. — 2016. — № 1 (69). — С. 57–63.
 13. Закон України «Про використання ядерної енергії і радіаційну безпеку» № 39/95-ВР від 08.02.1995 р. // *Відомості Верховної Ради України*. — 1995. — № 12. — Ст. 81.
 14. Бугай Д. А. Оценка водообмена подземных вод в ближней зоне ЧАЭС на основе данных изотопного датирования и гидрогеологического моделирования / Д. А. Бугай, Э. Фурре, П. Жан-Баттист и др. // *Геологический журнал*. — 2010. — Вып. 4. — С. 119–124.
 15. White, I. F. Assessment of Management Modes for Graphite from Reactor Decommissioning. EUR-9232 / I. F. White, G. M. Smith, L. J. Saunders, et al. — Luxembourg: Commission of the European Communities, 1984. — 126 p.
 16. Gray W. J. Leaching of ^{14}C and ^{36}Cl from irradiated French graphite / W. J. Gray, W. C. Morgan. — Pacific Northwest Lab., Richland, WA (USA), 1989.
 17. Gray W. J. Leaching of ^{14}C and ^{36}Cl from Hanford Reactor Graphite / W. J. Gray, W. C. Morgan. — Pacific Northwest Lab., Editor, 1988. — doi:10.2172/6655750.
 18. Hagos B. Microstructural and Chemical Behavior of Irradiated Graphite Waste under Repository Conditions (PhD thesis) / B. Hagos. — The University of Manchester, 2013. — 172 p.
 19. Соботович Э. В. Трансформация реакторного графита чернобыльского аварийного выброса в биогеохимических системах / Э. В. Соботович, В. В. Скрипкин, Н. Н. Жданова // *Доповіді НАН України*. — 1996. — № 11. — С. 173–176.
 20. НРБУ-97, ДГН 6.6.1. — 6.5.001–98. Норми радіаційної безпеки України. Державні гігієнічні нормативи [Затверджені постановою Головного державного санітарного лікаря України від 01.12.1997 р. № 62]. — 127 с.
 21. СанПин 2.6.1.2523–09 «Нормы радиационной безопасности НРБ-99/2009»: Утверждено постановлением Главного государственного санитарного врача РФ от 07.07.2009 г. № 47. — М. : Федеральный центр гигиены и эпидемиологии Роспотребнадзора, 2009. — 100 с.
 22. Туктаров М. А. Кондиционирование реакторного графита выводимых из эксплуатации уран-графитовых реакторов для целей захоронения [Электронный ресурс] / М. А. Туктаров, Л. А. Андреева, А. А. Роменков // *Атомная энергия 2.0*. — Режим доступа: <http://www.atomic-energy.ru/articles/2016/06/08/66585>
 23. Ольховик Ю. О. Щодо захоронення сольових радіоактивних відходів АЕС в Чорнобильській зоні відчуження / Ю. О. Ольховик, Ю. Г. Федоренко, А. М. Розко // *Ядерна енергетика та довкілля*. — 2016. — № 2 (8). — С. 64–67.

Ю. А. Ольховик

ГУ «Институт геохимии окружающей среды НАН Украины»,
просп. Академика Палладина, 34а, Киев, 03142, Украина

**Об обращении с реакторным графитом
Чернобыльской АЭС**

Рассмотрены проблемы кондиционирования облученного реакторного графита из активной зоны реакторов РБМК энергоблоков 1–3 Чернобыльской атомной электростанции, которые снимаются с эксплуатации. Общий объем графитовых блоков составляет 3700 м³. Радиологическая опасность облученного графита связана с наличием долгоживущих радионуклидов ¹⁴C и ³⁶Cl, которые в естественных условиях имеют высокую миграционную способность. Проанализированы возможные последствия захоронения реакторного графита в гипотетическом приповерхностном хранилище, организованном на нижнем этаже здания энергоблока после окончания этапа демонтажа оборудования в случае принятия решения о захоронении на месте. Расчеты, выполненные с привлечением литературных данных по выщелачиванию радионуклида ¹⁴C, свидетельствуют о вероятности недопустимого влияния радиоуглерода на окружающую среду в случае реализации сценария захоронения облученного реакторного графита в приповерхностном хранилище. Рассмотрены возможные технологии создания дополнительных инженерных защитных барьеров на поверхности графитовых блоков.

Ключевые слова: облученный реакторный графит, захоронение, выщелачивание, миграция, радиоуглерод.

Yu. A. Olkhovik

SI "The Institute of Environmental Geochemistry of the National Academy of Sciences of Ukraine", 34a, Palladin ave., Kyiv, 03142, Ukraine

Concerning the Chernobyl NPP Reactor Graphite Management

The problems of irradiated reactor graphite conditioning, which make up the active zone of RBMK reactors of Chernobyl NPP Units 1–3, which are decommissioned,

are considered. The total volume of graphite blocks is 3700 m³. The radiological danger of irradiated graphite is due to the presence of long-lived ¹⁴C and ³⁶Cl radionuclides, defines the long-term radiological hazard of radioactive waste in the form of reactor graphite. So far, Ukraine has not defined a strategy for the treatment of irradiated reactor graphite. The purpose of this publication is to evaluate the impact of irradiated Chernobyl reactor graphite on the environment under possible scenarios for its disposal. The possible consequences of reactor graphite disposal in a hypothetical surface storage facility organized on the lower floor of a power unit building after the end of the equipment dismantling phase were considered in the event of a decision on site disposal. The carbon leaching rate of irradiated graphite from Magnox (UK), Hanford (USA) and G-2 (France) reactors has been generalized. The estimated leaching rate of ¹⁴C from irradiated graphite is 1.65E-6 g/cm² · day, which is close to the rate of leakage of radionuclides from the glass matrix. The calculations performed with the involvement of literature data on leaching of radionuclide ¹⁴C indicate the likelihood of unacceptable impact of radiocarbon on the environment in the event of the scenario of disposal of irradiated reactor graphite in the surface storage. It is concluded that reactor graphite disposal at the Chernobyl NPP should occur only in geological storage in deep horizons of slow water exchange. Possible technologies of creation of additional engineering protective barriers at disposal of irradiated reactor graphite are considered. A thin layer of the naturally stable material, for example Gold or Carborundum (SiC), applied to a graphite block could serve as an additional engineered barrier for thousands of years.

Keywords: irradiated reactor graphite, disposal, leaching, migration, radiocarbon.

References

1. International Atomic Energy Agency (2016). *IAEA-TEC-DOC-1790. Processing of Irradiated Graphite to Meet Acceptance Criteria for Waste Disposal*. Vienna: IAEA, 148 p.
2. Takahashi R., Toyahara M., Maruki S., Ueda H. (2001). Investigation of morphology and impurity of nuclear grade graphite, and leaching mechanism of Carbon-14. *Proceedings of the Technical Committee Meeting "Nuclear Graphite Waste Management" (Manchester, October 18–20, 1999)*. Vienna: IAEA.
3. Narkunas E., Smaizys A., Poskas P., Kilda R. (2010). Assessment of Different Mechanisms of C-14 Production in Irradiated Graphite of RBMK-1500 Reactors. *Kerntechnik*, vol. 75, pp. 185–194. Doi: 10.3139/124.110083.

4. Poncet B. (2013). Method to Assess the Radionuclide Inventory of Irradiated Graphite from Gas-Cooled Reactors. Proceedings of the *Annual Waste Management Symposium (WM2013); International Collaboration and Continuous Improvement (Phoenix, 2013)*, pp. 6939–6953.
5. Marquez E., Pina G., Rodriguez M., Fachinger J., Grosse K.—H., Nieto J. L. L., Gracian M. Q., Seemann R. (2011). GRAFEC: A New Spanish Program to Investigate Waste Management Options for Radioactive Graphite. Proceedings of the *Annual Waste Management Symposium (WM2012); Improving the Future in Waste Management (Phoenix 2012)*, pp. 3210–3224.
6. *Hygienic standards “Levels of release of radioactive materials from regulatory control”*, approved by the Resolution of the Chief Sanitary Doctor of Ukraine dated June 30, 2010, no. 22. (in Ukr.)
7. DSP 6.177–2005–09–02. *Basic sanitary rules of radiation safety of Ukraine OSSP*. Approved by the order of the Ministry of Health of Ukraine of 02.02.2005, no. 54, 120 p. (in Ukr.)
8. *Law of Ukraine “On Radioactive Waste Management”* dated 30.06.1995 no. 255/95-VR. Bulletin of the Verkhovna Rada of Ukraine, no. 27, art. 198. (in Ukr.)
9. Izmistiev A. M., Kotlyarevsky S. G., Selev I. N., Yushitsin K. V. (2012). [Non-barreled filling of voids in the reactor space during the decommissioning of the PUGR]. *Bezopasnost' yadernykh tekhnologiy i okruzhayushchey sredy*. [Safety of Nuclear Technologies and the Environment], no. 2. Available at: <http://www.atomic-energy.ru/technology/47198> (in Russ.)
10. Gavrilov P. M., Ustinov A. A., Antonenko M. V., Gorobchenko A. D., Sokolov K. Yu., Zhirnikov D. V. (2011). [Decommissioning of industrial uranographite reactors FGUP GKKhK] *Bezopasnost' yadernykh tekhnologiy i okruzhayushchey sredy* [Safety of nuclear technology and the environment], no. 3. [Electronic resource]. Available at: <http://www.atomicenergy.ru/articles/2011/11/03/28244> (in Russ.)
11. Pavlyuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Bepala E. V., Zaharova E. V., Andryushenko N. D. (2017). [Modeling the process of migration of long-lived radionuclides from graphite radioactive waste] *Izvestiya Tomskogo politekhnicheskogo universiteta. Inzhiniring georesursov* [Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo-Resource Engineering], vol. 328, no. 4, pp. 75–84. (in Russ.)
12. Stelmach D. A., Kuchinsky V. K., Platonenko A. M. (2016). [On-site disposal as a variant of decommissioning of Chernobyl NPP facilities]. *Yaderna ta radiatsiyina bezpeka*. [Nuclear and radiation safety], vol. 69, no. 1, pp. 57–63. (in Ukr.)
13. *Law of Ukraine “On Nuclear Energy Use and Radiation Safety”* dated 08.02.1995 no. 39/95-BP. Bulletin of the Verkhovna Rada of Ukraine, no. 12, art. 81. (in Ukr.)
14. Bugai D. A., Fourre E., Jean-Baptiste P., Dapoigny A., Baumier D., Le Gal La Salle C., Lancelot J., Skalsky A. S., Van Meir N. (2010). [Assessment of groundwater exchange in the near Chernobyl zone based on isotope dating and hydrogeological modeling]. *Geologicheskij zhurnal* [Geological Journal], no. 4, pp. 119–124. (in Russ.)
15. White I. F., Smith G. M., Saunders L. J., Kaye C. J., Martin T. J., Clarke G. H., Wakerley M. W. (1984). *Assessment of Management Modes for Graphite from Reactor Decommissioning*. EUR-9232. Luxembourg: Commission of the European Communities, 126 p.
16. Gray W. J., Morgan W. C. (1989). *Leaching of ¹⁴C and ³⁶Cl from irradiated French graphite*. Pacific Northwest Lab., Richland, WA (USA).
17. Gray W. J., Morgan W. C. (1988). *Leaching of ¹⁴C and ³⁶Cl from Hanford Reactor Graphite*. Pacific Northwest Lab., Editor. Doi:10.2172/6655750.
18. Hagos B. (2013). *Microstructural and Chemical Behavior of Irradiated Graphite Waste under Repository Conditions* (PhD thesis). The University of Manchester, 172 p.
19. Sobotovich E. V., Skripkin V. V., Zhdanova N. N. (1996). [Transformation of reactor graphite of the Chernobyl accident discharge in biogeochemical systems]. *Dopovidi NAN Ukrayiny* [Reports of NAS of Ukraine], no. 11, pp. 173–176. (in Russ.)
20. NRBU-97, DGN6.6.1. —6.5.001–98. *Norms of radiation safety of Ukraine. State Hygiene Standards*. Approved by the decision of the Chief State Sanitary Doctor of Ukraine of 01.12.1997, no. 62, 127 p. (in Ukr.)
21. *Radiation safety standards NRB-99/2009. Sanitary rules and regulations SanPin 2.6.1.2523–09*. Approved by the resolution of the Chief State Sanitary Doctor of the Russian Federation dated July 7, 2009, no. 47. Moscow: FCHE of Rospotrebnadzor, 2009, 100 p. (in Russ.)
22. Tuktarov M. A., Andreeva L. A., Romenkov A. A. (2016). [Conditioning of reactor graphite of decommissioned uranium-graphite reactors for burial purposes]. *Atomic Energy 2.0: web-site*. Available at: <http://www.atomic-energy.ru/articles/2016/06/08/66585> (in Russ.)
23. Olkhovik Yu. O., Fedorenko Yu. G., Rosko A. M. (2016). [Concerning the disposal of nuclear radioactive waste in the Chernobyl Exclusion Zone]. *Yaderna enerhetyka ta dovkillya* [Nuclear power and the environment], vol. 8, no. 2, pp. 64–67. (in Russ.)

Надійшла 04.09.2019

Received 04.09.2019