

## АНАЛИЗ ДИНАМИКИ ВЫХОДА РАДИОНУКЛИДОВ $^{14}\text{C}$ И $^{36}\text{Cl}$ ИЗ ОБЛУЧЕННОГО ГРАФИТА РБМК-1000 В ВОДНЫХ СРЕДАХ

А. О. Павлюк<sup>1</sup>, С. Г. Котляревский<sup>1</sup>, Р. И. Кан<sup>1</sup>, Е. В. Захарова<sup>2</sup>,  
А. Г. Волкова<sup>2</sup>, А. Н. Дорофеев<sup>3</sup>, Б. С. Зиннуров<sup>3</sup>, Е. А. Комаров<sup>3</sup>

<sup>1</sup>АО «Опытно-демонстрационный центр вывода из эксплуатации уран-графитовых ядерных реакторов»,  
Северск, Томская область

<sup>2</sup>Институт физической химии и электрохимии им. А. Н. Фрумкина РАН, Москва

<sup>3</sup>Госкорпорация «Росатом», Москва

Статья поступила в редакцию 26 января 2022 г.

*В работе представлены результаты экспериментального определения параметров выщелачивания  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  из облученного графита РБМК-1000 в водных средах различного состава, включая дистиллированную воду и имитаторы подземных вод. Сформирован массив исходных данных по характеристикам блочного графита РБМК-1000 для проведения прогнозных исследований миграции радионуклидов и обоснования безопасности захоронения. Предложен оптимальный подход численного описания функции динамики процесса выщелачивания. Представлены результаты сравнения этого показателя для  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  из графита ГР-220 (ПУГР) и ГР-280 (РБМК-1000).*

**Ключевые слова:** вывод из эксплуатации, графитовые РАО, выщелачивание радионуклидов, облученный графит, захоронение, радиоактивные отходы.

### Введение

На текущий момент в РФ окончательно остановлены три из одиннадцати реакторов типа РБМК-1000: энергоблоки № 1 (2018 г.) и № 2 (2020 г.) Ленинградской АЭС и № 1 Курской АЭС (2021 г.). Календарный период эксплуатации каждого из них составил ~45 лет. В ближайшие 10 лет в соответствии с дорожной картой, реализуемой АО «Концерн Росэнергоатом», количество остановленных для вывода из эксплуатации энергетических каналных уран-графитовых реакторов существенно возрастет [1, 2]. Объем графита РБМК-1000 в РФ составляет ~25 тыс. тонн (43% от всего накопленного облученного графита) [1]. При этом вариант и стратегия его захоронения к настоящему времени

четко не определены, что отчасти обусловлено отсутствием достаточного массива экспериментальных данных по характеристикам потенциальной опасности.

В связи с этим начиная с 2020 г. проводятся научно-исследовательские работы, направленные на получение экспериментальных данных по характеристикам облученного графита уже остановленных РБМК-1000 и оценке безопасности вариантов его захоронения [3–8].

Ключевыми радионуклидами, определяющими потенциальную опасность основной массы графитовых РАО при захоронении, являются долгоживущие радионуклиды  $^{14}\text{C}$  ( $T_{1/2} = 5730$  лет) и  $^{36}\text{Cl}$  ( $T_{1/2} = 301000$  лет) [4]. Графит является

практически «неокисляемым» материалом на воздухе и в водных средах при некритических температурных условиях хранения (до 350 °С). При этом в водной среде интенсивность выхода долгоживущих радионуклидов (в том числе  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$ ) из графитовых РАО будет определяться параметрами их селективного выщелачивания, которые, в свою очередь, зависят от формы нахождения и энергии связи долгоживущих радионуклидов со структурой графита. Следовательно, характеристиками потенциальной опасности графитовых РАО будут являться величины их удельной активности в совокупности с параметрами, определяющими стойкость графитовых РАО к выщелачиванию радионуклидов. Эти свойства будут являться ключевыми для прогнозных оценок опасности графитовых РАО при захоронении по предполагаемому варианту.

В 2020 г. с целью получения экспериментальных данных был выполнен отбор статистически представительного массива проб графита кладок энергоблоков № 2 и № 3 РБМК-1000 Ленинградской АЭС. На первых этапах исследований, включавших применение специально разработанных аттестованных методик [9, 10], получены следующие результаты [5]:

- определены значения удельной активности  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  и других радионуклидов по всему массиву отобранных проб;
- проведен статистический анализ массива экспериментальных данных по содержанию радионуклидов;
- определены и проанализированы особенности накопления и пространственного распределения радионуклидов в графитовых кладках;
- получены эмпирические регрессионные зависимости содержания  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  в графитовых кладках от пространственного расположения графитовых блоков;
- определены средние удельные значения и суммарное содержание  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  по отдельным зонам графитовой кладки и в кладке в целом.

В задачи настоящих этапов экспериментальных исследований (2021 г.) входило:

- экспериментальное определение характеристик процесса выщелачивания радионуклидов  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  из графита кладок реакторов РБМК-1000 энергоблоков № 2 и № 3 Ленинградской АЭС в водных средах различного состава: дистиллированная вода, имитаторы подземных вод участка «Енисейский» (ЗАТО Железногорск, Красноярский край) и площадки, находящейся вблизи г. Сосновый Бор, недалеко от территории Ленинградского отделения ФГУП «ФЭО» (бывшее ФГУП «РосРАО») [11];

- анализ различных подходов численного описания процесса выщелачивания;
- формирование массива исходных данных по характеристикам блочного графита РБМК-1000.

Решение поставленных задач необходимо при подготовке данных для прогнозных расчетов миграции радионуклидов из графита в районе размещения ПЗРО.

### Методы и результаты определения параметров выщелачивания $^{14}\text{C}$ и $^{36}\text{Cl}$ в водных средах

В последние годы АО «ОДЦ УТР» и ИФХЭ РАН им. А. Н. Фрумкина проводились исследования, направленные на повышение корректности и достоверности определения характеристик облученного графита УТР [6, 7, 8]. Следует отметить, что результаты свидетельствуют в пользу того, что ранее при проведении прогнозных оценок влияния графитовых РАО на окружающую среду и население [12] их потенциальная опасность существенно завышалась. Основной причиной этого являлось использование данных, полученных либо по грубым консервативным оценкам, либо методами [13, 14], которые не учитывают особенности облученного графита. В частности, это касается характеристик процесса выщелачивания долгоживущих радионуклидов (ДЖРН) из графитовых РАО, которые являются ключевыми показателями их потенциальной опасности.

В ходе экспериментальных исследований пористой структуры облученного графита и процесса выщелачивания ДЖРН, проведенных в 2017–2018 гг. [6, 7], предложена и экспериментально обоснована модель описания этого процесса, учитывающая свойства структуры графита (а именно — развитой системы открытых пор), а также особенности образования, фиксации и распределения  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  в графите. В ходе исследований пористой структуры графита отечественных марок (ГР-76, ГР-220, ГР-280) [6] определено, что практически весь объем открытой пористости в нем (как в исходном, так и в облученном) доступен для насыщения при выдержке в водной среде. При плотности графита  $\sim 1,7 \text{ г/см}^3$  значение удельной (на единицу массы) площади поверхности открытых пор ( $F_s$ ) составляет приблизительно  $225 \text{ см}^2/\text{г}$ . Полученные данные позволяют утверждать, что  $F_s$  для графита исследованных марок существенно (более чем на 2 порядка) превышает площадь поверхности графитовых фрагментов. Данный факт определяет характер процесса выщелачивания основных объемно-распределенных долгоживущих радионуклидов как приближенный

к «объемному». При этом вклад открытых пор в интенсивность процесса выщелачивания будет преобладать над вкладом открытой поверхности фрагментов (в отличие от сплошных монолитных материалов).

Таким образом, по истечении срока пропитки водой графитовых РАО и установления равновесия по времени миграции радионуклидов из объема графита к поверхности (~50–150 суток для крупных фрагментов типа «графитовая втулка, блок») процесс выщелачивания будет носить квазиобъемный характер и основной вклад в интенсивность выщелачивания  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  будет давать выщелачивание с поверхностей стенок пор. Учитывая период прогнозирования при расчетах миграции радионуклидов из ПЗРО (сотни и тысячи лет), можно утверждать, что именно этот процесс будет определять основное потенциально опасное влияние графитовых РАО.

Характер выщелачивания, приближенный к объемному, приводит к тому, что для облученного графита «классический» параметр скорости выщелачивания  $R$  будет зависеть от геометрии детали, образца, фрагмента, а именно — от отношения площади поверхности к объему. По этой причине по результатам исследований [6, 7] введен параметр  $\gamma$ , который характеризует стойкость к выщелачиванию и не зависит от геометрии (показано экспериментально). Следует отметить, что он и производные от него величины широко используются в исследованиях процесса выщелачивания радионуклидов из облученного графита зарубежными исследователями [15, 16]. Параметр  $\gamma$  (доля радионуклида, выходящего из образцов облученного блочного графита в единицу времени) имеет физический смысл отношения активности радионуклида, выходящего в контактный раствор в единицу времени, к полной активности радионуклида, содержащегося в графите (образце, фрагменте, цельной детали), и определяется выражением:

$$\gamma_n^i = \frac{a_n^i}{A^i m t_n} = \frac{a_n^i}{A^i \rho V t_n}, \quad (1)$$

где:

$a_n^i$  — активность или количество  $i$ -го радионуклида, вышедшего в раствор в течение  $n$ -го периода выщелачивания, Бк;

$A^i$  — удельная активность  $i$ -го радионуклида в графите, Бк/г;

$m$  — масса цельного образца, фрагмента, навески (в случае измельченного материала), см<sup>3</sup>;

$\rho$  — плотность графита цельного образца фрагмента, г/см<sup>3</sup>;

$V$  — объем цельного образца, фрагмента, см<sup>3</sup>;

$t_n$  — продолжительность  $n$ -го периода выщелачивания, сутки.

Связь величины доли  $i$ -го радионуклида, выходящего из материала РАО в единицу времени в течение периода выщелачивания  $\gamma$  для образцов фиксированной геометрии, цельных деталей и фрагментов графитовых РАО, с «классической» величиной скорости выщелачивания, отнесенной к геометрической площади поверхности образца, детали или фрагмента ( $R$ ), определяется выражением:

$$R_n^i = \gamma_n^i \frac{m}{F_0} = \gamma_n^i \rho \frac{V}{F_0}, \quad (2)$$

где:

$R_n^i$  — скорость выщелачивания  $i$ -го радионуклида в течение  $n$ -го периода выщелачивания, отнесенная к геометрической площади поверхности образца или фрагмента, г/см<sup>2</sup>·сут;

$F_0$  — геометрическая площадь поверхности цельного образца, детали или фрагмента, см<sup>2</sup>.

Для геометрии «графитовый блок» реактора РБМК-1000 (250 × 250 × 600 мм, диаметр внутреннего отверстия — 114 мм) данный параметр,  $R_{\text{бл}}$  (г/см<sup>2</sup>·сут), определяется выражением:

$$R_{\text{бл}} = \gamma \rho V_{\text{бл}} / F_{\text{бл}} = 5,62 \gamma \quad (3)$$

где:

$\gamma$  — доля радионуклида, выходящего из материала РАО в единицу времени, сут<sup>-1</sup>;

$\rho$  — плотность графита ГР-280,  $\rho = 1,65$ – $1,70$  г/см<sup>3</sup>;

$V_{\text{бл}}$  — объем графитового блока реактора РБМК-1000,  $V_{\text{бл}} = 31\,380$  см<sup>3</sup>;

$F_{\text{бл}}$  — геометрическая площадь поверхности графитового блока реактора РБМК-1000,  $F_{\text{бл}} = 9\,200$  см<sup>2</sup>.

В ходе настоящих исследований при испытаниях на выщелачивание применен способ длительной выдержки образцов в среде с периодической сменой выщелачивающего раствора. В экспериментах использованы образцы блочного графита энергоблоков № 2 и № 3 ЛАЭС.

Испытания проводились:

- для образцов цилиндрической формы, изготовленных из отобранных кернов;
- фрагментов графитовых блоков неправильной формы и графитовой крошки, образовавшихся при резке графитовых блоков при выполнении работ по восстановлению ресурсных характеристик графитовых кладок.

Образец графита помещали в герметичную полипропиленовую емкость, заполненную контактным раствором. Отношение объема контактного раствора к площади поверхности цилиндрических образцов составляло 10:1. Эксперименты проводились при комнатной температуре ( $25 \pm 3$  °C).

Образец располагался в емкости таким образом, чтобы вся его поверхность контактировала с раствором. Периодически проводился отбор проб выщелата с полной заменой контактного раствора. Периодичность отбора проб составляла: 1, 4, 7, 14, 21, 28, 68, 208, 278 суток от начала выдержки.

В качестве контактных растворов использовались:

- дистиллированная вода;
- модельные растворы (табл. 1), имитирующие грунтовые воды предполагаемого ПГЗРО в районе участка «Енисейский» вблизи ЗАТО Железнодорожск, Красноярский край (далее — раствор А) и грунтовые воды площадки в районе Ленинградского отделения ФГУП «ФЭО» вблизи г. Сосновый Бор (далее — раствор Б).

Таблица 1. Состав имитаторов подземной воды, мг/л

Тип водной среды	рН и содержание химических элементов, мг/л						
	рН	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	C <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>
Раствор А	8,5	197,5	47,9	11,0	74,5	6,8	26,9
Раствор Б	7,4	95,8	5,2	12,8	17,6	7,4	12,2

На рис. 1 представлены кривые динамики выщелачивания <sup>14</sup>C в дистилляте и модельных растворах для образцов блочного графита, усредненные по четырем образцам графита энергоблоков № 2 и № 3 ЛАЭС для каждого модельного раствора.

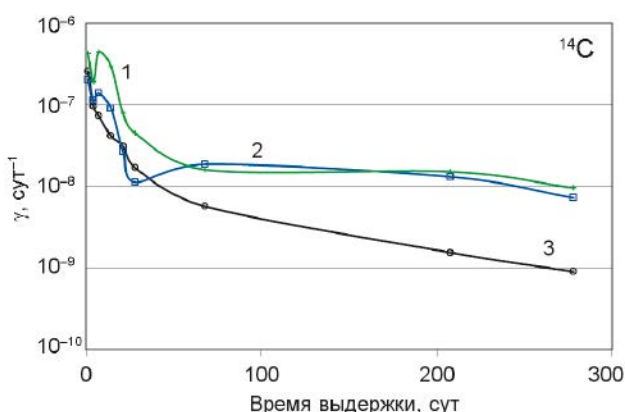


Рис. 1. Кривые динамики выщелачивания <sup>14</sup>C в дистилляте и модельных растворах для образцов графита из блоков: 1 – модельная вода участка «Енисейский»; 2 – модельная вода Ленинградского отделения ФГУП «ФЭО»; 3 – дистиллированная вода

Как видно, наблюдается резкий спад интенсивности выщелачивания в начальный период выдержки (~ 30–50 сут) в контактном растворе. Интенсивность выщелачивания <sup>14</sup>C в течение

данного периода снижается на 2–3 порядка. В дальнейшем этот характер кривых динамики сохраняется, но становится менее активным. При этом на кривых могут наблюдаться существенные отклонения интенсивности от общей динамической тенденции (спады, всплески), что является характерной чертой для графита, обусловленной особенностями его развитой пористой структуры. Форма кривой динамики выщелачивания определяется совокупностью следующих процессов [6, 7]:

- в начальный период выщелачивается часть радионуклидов, которая находится в наиболее приближенных к поверхности образца областях графитовой структуры в водорастворимой форме и имеет наименьшую прочность фиксации в структуре материала;
- происходит постепенное заполнение наиболее удаленных от поверхности и доступных для контактного раствора полостей в структуре графита (поры, межкристаллитные пространства и т. п.), а также увеличение эффективной поверхности выщелачивания, но «усложняется» процесс обмена контактного раствора, находящегося в структурных полостях, с контактным раствором емкости (вне поверхности образца).

По мере прекращения процесса заполнения всех доступных полостей в структуре графита, величина площади эффективной поверхности выщелачивания и интенсивность процесса транспорта радионуклидов из глубинных областей к поверхности графитового фрагмента стабилизируются. Интенсивность процесса выщелачивания в последующий период уже определяется в большей степени:

- прочностью фиксации радионуклидов (их физико-химических форм) в приповерхностных слоях по эффективной поверхности контакта с раствором;
- интенсивностью массообмена контактного раствора, находящегося в структурных полостях в объеме графита, с раствором емкости для выдержки.

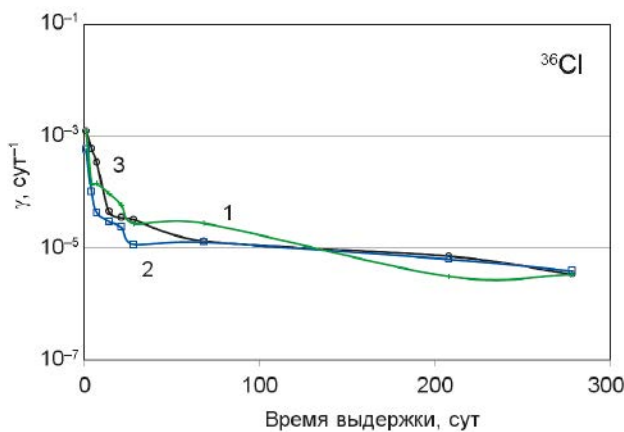
Результаты испытаний показали (рис. 1), что облученный графит РБМК-1000 менее стоек к выщелачиванию радионуклида <sup>14</sup>C при выдержке в модельных растворах, чем в дистиллированной воде. При этом разница по динамике выщелачивания в модельных водах площадок участка «Енисейский» и вблизи Ленинградского отделения ФГУП «ФЭО» незначительна. По истечении периода в 280 суток разница между интенсивностью выщелачивания в модельных растворах и в дистилляте составляет приблизительно один порядок. Значения величин  $\gamma$  и  $R$

(скорость выщелачивания, отнесенная к площади поверхности, геометрия «графитовый блок РБМК-1000») на момент окончания испытаний (280 суток выдержки) приведены в табл. 2.

**Таблица 2. Значения по радионуклиду  $^{14}\text{C}$  величин  $\gamma$  и  $R$  (геометрия «графитовый блок РБМК-1000»), установившиеся на момент окончания испытаний (280 суток выдержки)**

Тип водной среды	$\gamma$ , сут $^{-1}$	$R$ , г/см $^2$ -сут
Дистиллированная вода	$9,1 \cdot 10^{-10}$	$5,1 \cdot 10^{-9}$
Раствор А	$9,7 \cdot 10^{-9}$	$5,4 \cdot 10^{-8}$
Раствор Б	$7,1 \cdot 10^{-9}$	$4,0 \cdot 10^{-8}$

На рис. 2 показаны кривые динамики выщелачивания  $^{36}\text{Cl}$  в дистилляте и модельных растворах, усредненные по четырем образцам блочного графита энергоблоков № 2 и № 3 ЛАЭС для каждого модельного раствора соответственно.



**Рис. 2. Кривые динамики выщелачивания  $^{36}\text{Cl}$  в дистилляте и модельных растворах для образцов графита из блоков: 1 — модельная вода участка «Енисейский»; 2 — модельная вода Ленинградского отделения ФГУП «ФЭО»; 3 — дистиллированная вода**

Можно отметить, что для кривых динамики выщелачивания  $^{36}\text{Cl}$  свойственны те же особенности, что и для  $^{14}\text{C}$ , но характерные абсолютные величины значений параметра  $\gamma$  свидетельствуют о том, что стойкость к выщелачиванию  $^{36}\text{Cl}$  в графите энергоблоков № 2 и № 3 ЛАЭС на 3—4 порядка ниже, чем  $^{14}\text{C}$ .

Результаты испытаний показали (рис. 2), что облученный графит РБМК-1000 не демонстрирует статистически значимых различий по выщелачиванию радионуклида  $^{36}\text{Cl}$  при выдержке в модельных растворах и в дистиллированной воде. Значения величин  $\gamma$  и  $R$  на момент окончания испытаний (280 суток выдержки) приведены в табл. 3.

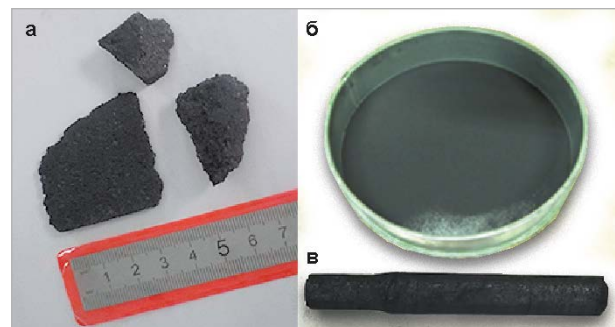
**Таблица 3. Значения по радионуклиду  $^{36}\text{Cl}$  величин  $\gamma$  и  $R$  (геометрия «графитовый блок РБМК-1000»), установившиеся на момент окончания испытаний (280 суток выдержки)**

Тип водной среды	$\gamma$ , сут $^{-1}$	$R$ , г/см $^2$ -сут
Дистиллированная вода	$3,4 \cdot 10^{-6}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$
Раствор А	$3,9 \cdot 10^{-6}$	$2,2 \cdot 10^{-5}$
Раствор Б	$3,3 \cdot 10^{-6}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$

Для определения влияния геометрии и массы испытуемого образца на динамику выщелачивания радионуклидов  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  были проведены испытания в дистилляте для образцов следующих типов:

- цилиндр: диаметр  $d \sim 9,5$  мм, высота  $h \sim 12$  мм, масса  $m \sim 1,5$  г, изготовленный из графитового керна;
- крупный объемный фрагмент:  $l \times b \times h \sim 20 \times 30 \times 15$  мм,  $m \sim 6,5$  г;
- плоский фрагмент:  $\sim 40 \times 40 \times 2$  мм,  $m \sim 4,5$  г;
- навеска графитовой крошки:  $m \sim 1$  г.

Испытания образцов в виде графитовой крошки являлись продолжением более ранних исследований [6]. В данной работе длительность испытаний составила 1,5 года. Испытуемые образцы, отобранные из блоков графитовых кладок энергоблоков № 2 и № 3 ЛАЭС, показаны на рис. 3.



**Рис. 3. Испытуемые образцы, отобранные из блоков графитовых кладок ЛАЭС: а — крупные объемные и плоский фрагменты; б — навеска графитовой крошки; в — графитовый керн**

Как было сказано выше, для исследованных марок графита ГР-280 значение удельной (на единицу массы) площади поверхности открытых пор ( $F_p$ ) составляет  $\sim 225$  см $^2$ /г. При этом площадь геометрической поверхности образцов в виде цельных фрагментов с массой в несколько грамм в зависимости от конфигурации составит несколько десятков см $^2$  (в настоящих испытаниях — не более 34 см $^2$  для плоского образца), что несравнимо меньше, чем площадь

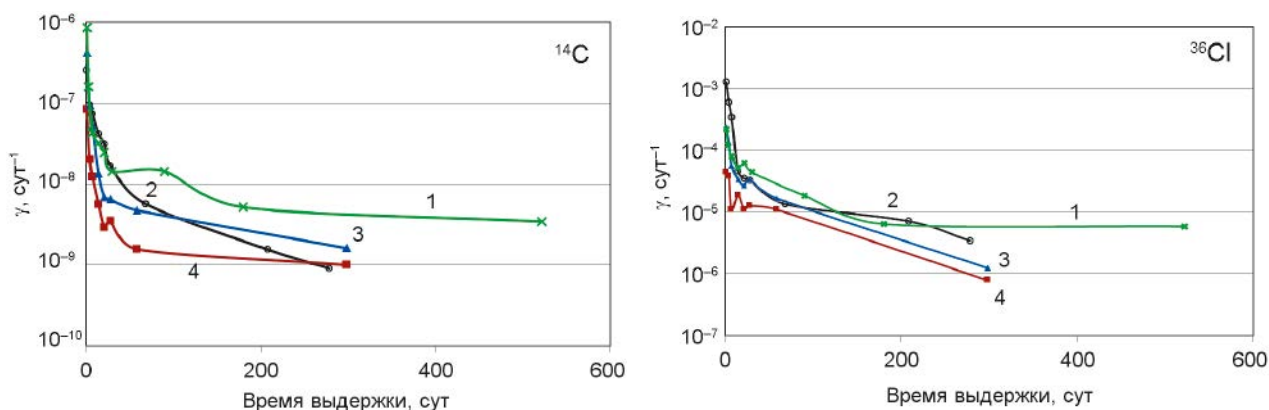


Рис. 4. Кривые динамики выщелачивания  $^{14}\text{C}$  (слева) и  $^{36}\text{Cl}$  (справа) в дистиллированной и модельных водах из образцов различной геометрии: 1 – порошкообразный; 2 – цилиндрический; 3 – плоский; 4 – объемный

поверхности открытых пор (для плоского образца  $225 \times 4,5 = 1012 \text{ см}^2$ ). Соответственно, при полностью пропитанном образце и установившемся режиме выщелачивания, его интенсивность будет определяться площадью поверхности открытых пор, а не площадью внешней поверхности. Результаты испытаний образцов различной геометрии в дистиллированной и модельных водах представлены на рис. 4.

Результаты испытаний показали (рис. 4), что для цельных фрагментов различия геометрии проявляются в начальный период выдержки. Это связано с тем, что в данный период идет процесс пропитки образца и выщелачивание проходит не из всего объема. Таким образом, доля  $\gamma$  будет ниже для более «объемного» образца (в данном случае – объемный фрагмент массой 6,5 г). Особенно отчетливо данный эффект виден на рис. 4 (слева). По мере пропитки трех образцов в виде цельных фрагментов и установления режима выщелачивания кривые все более сближаются и в дальнейшем практически сходятся.

Для образца графитовой крошки такого не наблюдается, и кривые динамики выщелачивания

$^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  характеризуются более высокой интенсивностью (в  $\sim 3\text{--}5$  раз), чем для образцов в виде цельных фрагментов. Данный факт объясняется тем, что при измельчении графита увеличивается эффективная площадь контакта с раствором и величина прироста площади контакта на единицу массы крошки сопоставима с удельной площадью поверхности открытых пор. Так, например, при среднем диаметре частиц  $\sim 0,25 \text{ мм}$  прирост площади контакта составит  $240 \text{ см}^2/\text{г}$ , что сопоставимо с  $F_s \sim 225 \text{ см}^2/\text{г}$ . Данная оценка сделана для сферической формы частиц. Реальная форма частиц – неправильная, что приведет к еще большему увеличению площади контакта.

На рис. 5 показаны кривые динамики выщелачивания  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  из графита ГР-220 (ПУГР АДЭ-5) и ГР-280 (РБМК-1000) в дистиллированную воду и раствор, моделирующий подземные воды участка «Енисейский». Очевидно, что при определении стойкости к выщелачиванию как по отношению к  $^{14}\text{C}$ , так и  $^{36}\text{Cl}$  для графита разных марок (ГР-220 и ГР-280) статистически значимых отличий не наблюдается.

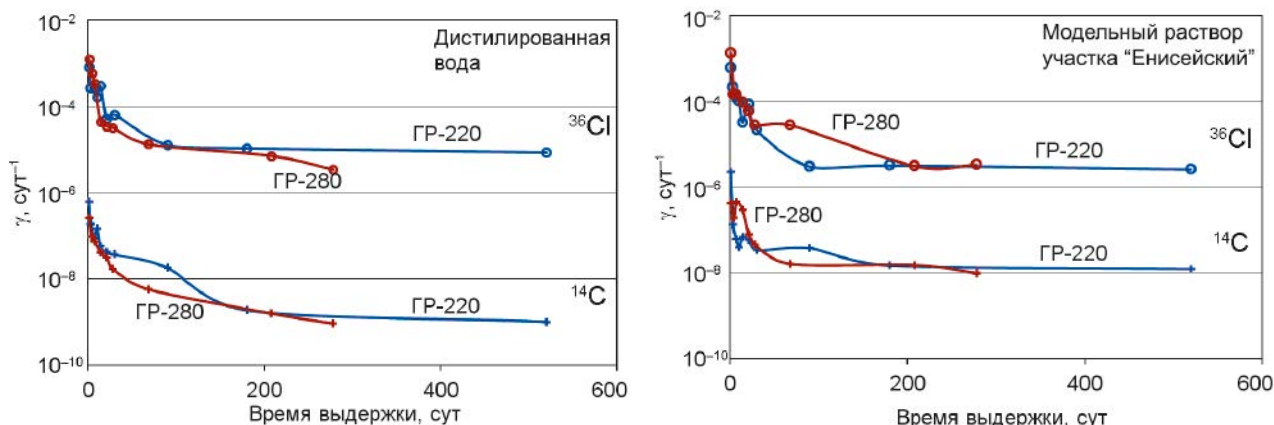


Рис. 5. Кривые динамики выщелачивания  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  из графита ГР-220 (ПУГР АДЭ-5) и ГР-280 (РБМК-1000) в дистиллированной воде (слева) и модельной воде участка «Енисейский» (справа)

## Обсуждение результатов

Анализируя результаты настоящей работы, можно отметить, что при сравнении экспериментальных данных по характеристикам накопления основных радионуклидов  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  и параметрам их выщелачивания для блочного графита кладок двух реакторов энергоблоков № 2 и № 3 ЛАЭС статистически значимых различий не наблюдается. Таким образом, в силу идентичности конструкций и одинаковых марок блочного графита (ГР-280) на указанные характеристики влияют только параметры эксплуатации в номинальном режиме и длительность эксплуатации реактора. Соответственно, полученные данные можно с высокой степенью достоверности распространять на остальные энергоблоки АЭС с РУ РБМК-1000 с учетом периода эксплуатации на момент окончательного их останова ~45 лет. Необходимо отметить, что инциденты, имевшие место на некоторых энергоблоках [1], не могли существенно повлиять на накопление

радионуклидов  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  и параметры их выщелачивания. Однако при обосновании условий безопасного захоронения графита этих энергоблоков требуется дополнительное рассмотрение накопления и выщелачивания трансурановых элементов.

Таким образом, по результатам настоящей работы для внесения в блок исходных данных по характеристикам графитовых РАО, подлежащих захоронению в ПЗРО, можно рекомендовать параметры и величины, приведенные в табл. 4.

Следует отметить, что в прогнозных исследованиях [11, 12] в качестве характеристики выщелачивания был использован параметр  $R$  (скорость выщелачивания, отнесенная к площади поверхности). При этом закладывалась не реальная динамика его изменения, а величина, условно постоянная во времени и консервативно завышенная. Согласно ГОСТ [13, 14] для оценок брали величину скорости выщелачивания, установившуюся в течение 30 суток выдержки. Учитывая то, что, согласно представленным выше

**Таблица 4. Данные для внесения в блок исходных данных по характеристикам блочного графита РБМК-1000**

Параметр/величина характеристик накопления и выщелачивания ДЖРН	Тип радионуклида		
	$^{14}\text{C}$	$^{36}\text{Cl}$	
Удельная активность, Бк/г:	Минимальная	$2 \cdot 10^4$	$1 \cdot 10^1$
	Средняя	$7,4 \cdot 10^5$	$7,7 \cdot 10^2$
	Максимальная	$1,6 \cdot 10^6$	$5 \cdot 10^3$
Полная активность графитовой кладки РБМК-1000 (~45 лет эксплуатации), Бк		$1,3 \cdot 10^{15}$	$1,4 \cdot 10^{12}$
$\gamma(300)$ – доля радионуклида, выходящего из образцов облученного блочного графита в единицу времени, установившаяся через 300 суток выдержки, сут $^{-1}$ :	Дистиллят	$9,1 \cdot 10^{-10}$	$3,4 \cdot 10^{-6}$
	Раствор А	$9,7 \cdot 10^{-9}$	$3,9 \cdot 10^{-6}$
	Раствор Б	$7,1 \cdot 10^{-9}$	$3,3 \cdot 10^{-6}$
$R(300)$ – скорость выщелачивания, отнесенная к площади поверхности (геометрия «графитовый блок РБМК-1000»), установившаяся через 300 суток выдержки, г/см $^2$ ·сут	Дистиллят	$5,1 \cdot 10^{-9}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$
	Раствор А	$5,4 \cdot 10^{-8}$	$2,2 \cdot 10^{-5}$
	Раствор Б	$4,0 \cdot 10^{-8}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$
Аппроксимирующая функция динамики выщелачивания $\gamma(t)$ в диапазоне времени выдержки до 300 сут, сут $^{-1}$	Дистиллят	$\gamma(t) = 4 \cdot 10^{-7} t^{-1,025}$	$\gamma(t) = 1,52 \cdot 10^{-3} t^{-1,09}$
	Раствор А	$\gamma(t) = 8 \cdot 10^{-7} t^{-0,757}$	$\gamma(t) = 1,1 \cdot 10^{-3} t^{-1,03}$
	Раствор Б	$\gamma(t) = 3 \cdot 10^{-7} t^{-0,618}$	$\gamma(t) = 3,2 \cdot 10^{-4} t^{-0,807}$
Связь параметров $\gamma$ и $R$ (геометрия «графитовый блок РБМК-1000»)	$R_{\text{бл}} = \gamma \rho V_{\text{бл}} / F_{\text{бл}} = 5,62 \gamma$		
Связь параметров выщелачивания из графитовой крошки и графитового блока	$\gamma_{\text{кр}}(t) \approx 3 \div 5 \gamma_{\text{бл}}(t)$		
<b>Прочие характеристики блочного графита РБМК-1000</b>			
Марка графита, плотность, г/см $^3$	ГР-280, 1,65–1,7		
Масса графитовой кладки, т	1750		
Количество графитовых блоков в кладке, шт.	~ 35 000		
Площадь поверхности одного блока*, см $^2$	9 200		
Суммарная площадь поверхности блоков в кладке, м $^2$	32 200		
Объем одного блока, см $^3$	31 380		
Масса одного блока, кг	50–53		

\*Массо-габаритные характеристики отдельных блоков приведены для основного типа (250 × 250 × 600 мм,  $\varnothing_{\text{отв}} = 114$  мм).

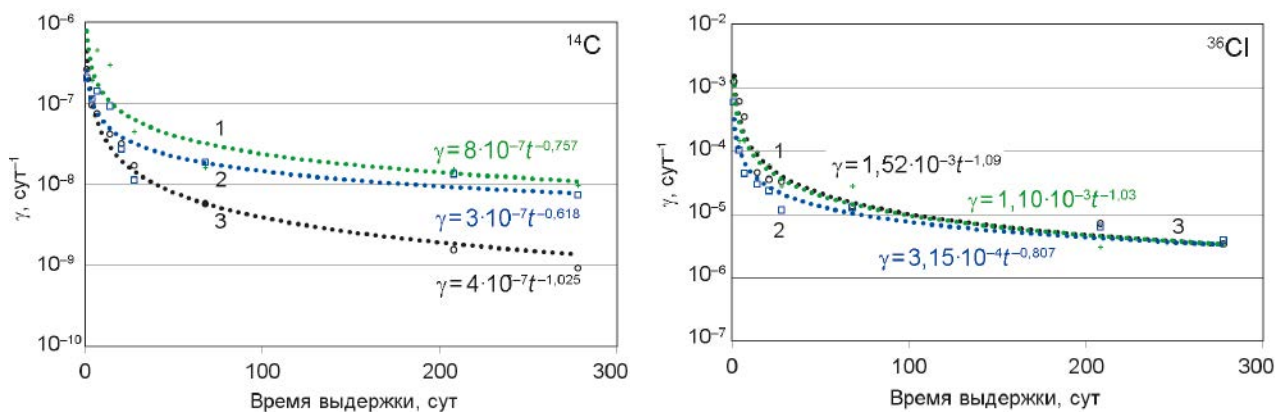


Рис. 6. Аппроксимация кривых динамики выщелачивания  $^{14}\text{C}$  (слева) и  $^{36}\text{Cl}$  (справа) в дистиллированной и модельных водах для образцов графита из блоков: 1 – модельный раствор А, 2 – модельный раствор Б; 3 – дистиллированная вода

данным, интенсивный спад скорости выщелачивания продолжается на протяжении более продолжительного времени, в разработанном для графитовых РАО проекте стандарта предусмотрен более длительный период выдержки [8].

Результаты исследований процесса выщелачивания  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$ , в том числе и настоящей работы, свидетельствуют о следующем:

- наиболее интенсивный выход радионуклидов наблюдается в начальный период контакта с водной средой (до ~ 100 суток);
- в последующее время спадающий характер кривых динамики выщелачивания сохраняется, но снижение становится менее активным;
- в период времени выдержки  $t$  более 100 суток интенсивность выщелачивания определяется преимущественно площадью поверхности открытых пор и практически не зависит от площади поверхности графитовой детали;
- использование в прогнозных расчетах параметра  $\gamma$  более предпочтительно, так как в данном случае кумулятивный выход радионуклида (доля от количества радионуклида, содержащегося в графите, вышедшая в водную среду за истекший период выдержки) будет зависеть от массы графита, а не от площади поверхности фрагментов, оно оптимально и наиболее обосновано;
- применение в прогнозных расчетах условно постоянной во времени и консервативно завышенной величины  $R$  дает существенное завышение кумулятивного выхода радионуклидов по сравнению с использованием характеристик реальной динамики выщелачивания.

Кривую реальной динамики выщелачивания за период испытаний (300 суток) можно включать в блок исходных данных как в виде дискретного по времени численного массива, так и в виде аппроксимирующих функций, среди которых наиболее высокую достоверность

аппроксимации дает использование степенных функций (рис. 6).

При традиционном подходе динамика выщелачивания  $^{14}\text{C}$  характеризуется условно постоянной во времени величиной скорости выщелачивания  $R = 2,0 \cdot 10^{-6}$  г/см<sup>2</sup>·сут [13, 14]. Для геометрии «графитовый блок РБМК-1000» такая величина  $R$  будет соответствовать  $\gamma = 3,6 \cdot 10^{-7}$  сут<sup>-1</sup>, согласно выражению (3). С помощью применения реальной динамики выщелачивания консервативное завышение величин при традиционном подходе можно проиллюстрировать на примере изменения кумулятивного выхода  $^{14}\text{C}$  из графита РБМК-1000 (рис. 7).

На рис. 7 показана предполагаемая динамика кумулятивного выхода  $^{14}\text{C}$  из блочного графита РБМК-1000 в дистиллированной воде при следующих трех подходах к оценке численного описания процесса выщелачивания для использования в качестве исходных данных прогнозных расчетов миграции радионуклидов из моделируемого ПЗРО:

- подход № 1: в интервале времени выдержки  $t < 300$  суток величина  $\gamma$  задана в виде аппроксимирующей функции реальной экспериментальной динамики (рис. 6)  $\gamma(t) = 4 \cdot 10^{-7} t^{-1,025}$  (достоверность аппроксимации – 0,97), в интервале  $t > 300$  суток – экстраполяция этой же функции;
- подход № 2: в течение всего периода прогнозирования (до 1000 лет)  $\gamma$  задана в виде постоянной величины, характерной для «традиционного» подхода –  $\gamma = 3,6 \cdot 10^{-7}$  сут<sup>-1</sup>;
- подход № 3: в интервале времени выдержки  $t < 300$  суток  $\gamma$  задана в виде аппроксимирующей функции реальной экспериментальной динамики  $\gamma(t) = 4 \cdot 10^{-7} t^{-1,025}$ , в интервале  $t > 300$  суток – в виде постоянной величины, равной  $\gamma$ , достигнутой через 300 суток выщелачивания –  $\gamma = \gamma(300) = 1,1 \cdot 10^{-9}$  сут<sup>-1</sup>.



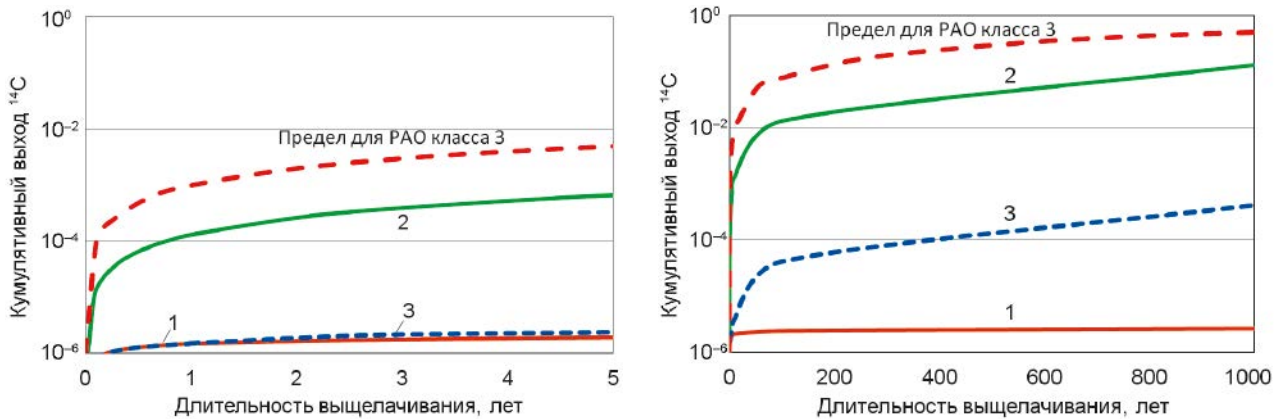


Рис. 7. Динамика кумулятивного выхода  $^{14}\text{C}$  из блочного графита РБМК-1000 при различных подходах к прогнозу численного описания процесса выщелачивания (слева – прогноз на 5 лет, справа – прогноз на 1000 лет): 1 – подход № 1; 2 – подход № 2; 3 – подход № 3

Кривая «Предел для РАО класса 3» соответствует динамике кумулятивного выхода  $^{14}\text{C}$  при  $\gamma = 1 \cdot 10^{-3} \text{ год}^{-1}$ . Данная величина, согласно НП-093-2014, соответствует предельной скорости выхода радионуклидов из упаковки РАО 3-го класса (доля активности, вышедшей из упаковки РАО за год) для бета-излучающих радионуклидов, за исключением трития.

Анализируя результаты прогнозных расчетов, можно отметить, что «традиционный» подход № 2 приводит к значительному завышению результатов прогнозирования по сравнению с подходами, использующими реальную экспериментально полученную динамику выщелачивания – свыше двух порядков по сравнению подходом № 3 и свыше четырех порядков по сравнению с № 1.

Подход № 1, хотя и демонстрирует прогноз наименьшего среди трех подходов кумулятивного выхода  $^{14}\text{C}$ , но имеет главный недостаток – это отсутствие гарантии того, что в интервале прогнозирования  $t > 300$  суток сохранится динамика спада интенсивности выщелачивания по закону  $\gamma(t) = 4 \cdot 10^{-7} t^{-1,025}$ .

Подход № 2 дает существенное завышение результатов прогнозирования, что может привести к неудовлетворительным результатам, хотя при меньшем, но гарантированно консервативном запасе, безопасность ПЗРО могла бы быть обоснована при идентичных прочих условиях, определяющих безопасность захоронения.

Подход № 3 является оптимальным, поскольку в первые 300 суток используется реальная динамика выщелачивания: в этот начальный период наблюдается наиболее интенсивный выход  $^{14}\text{C}$ , и именно он будет определять максимальную прогнозируемую величину концентрации радионуклида в контрольных точках моделируемой области. Присвоение  $\gamma$  в период прогнозирования  $t > 300$  суток значения постоянной

величины, равной достигнутой через 300 суток выщелачивания, также оправдано, поскольку не существует причин и предпосылок к росту интенсивности выщелачивания в этот период при сохранении условий сценария эволюции моделируемой системы. Данное обстоятельство обуславливает гарантированный запас при прогнозируемом моделировании миграции  $^{14}\text{C}$ , при этом более чем на 2 порядка менее консервативный, чем при «традиционном» подходе.

Как показали результаты сравнения динамики выщелачивания из графита, представленные на рис. 5, ПУГР и РБМК-1000 характеризуются практически одинаковой степенью потенциальной опасности. При этом можно отметить, что при сходной длительности эксплуатации реакторов графит РБМК-1000 характеризуется на 30–40% более низким содержанием  $^{14}\text{C}$ , чем графит ПУГР [1], при почти одинаковых показателях выщелачивания.

Согласно НП-093-2014 [18] величина скорости выхода радионуклидов из упаковки РАО 3-го класса (массовая доля активности, вышедшей из упаковки РАО за год) для бета-излучающих радионуклидов, за исключением трития, не должна превышать уровня  $1 \cdot 10^{-3} \text{ год}^{-1}$ . Максимальный относительный выход от суммарного количества бета-излучающих ДЖРН в графите будет определяться  $^{14}\text{C}$  (его активность на 3–4 порядка выше, чем  $^{36}\text{Cl}$ ).

Рассматривая полученные экспериментальные результаты (рис. 7), можно сделать вывод, что максимальный относительный выход бета-излучающих ДЖРН из облученного графита РБМК-1000 не превысит  $\sim 2 \cdot 10^{-6} \text{ год}^{-1}$  в дистиллированной воде и  $\sim 2 \cdot 10^{-5} \text{ год}^{-1}$  в подземной воде участка «Енисейский» и площадки в районе Ленинградского отделения ФГУП «ФЭО». Следует отметить, что в оценках защитные свойства

контейнера и других барьеров безопасности (инженерных и природных) не учитывались.

### Заключение

1. В рамках работы определен ряд характеристик, связанных с накоплением и выщелачиванием основных долгоживущих радионуклидов, облученного графита кладок реакторов РБМК-1000 энергоблоков №2 и №3 Ленинградской АЭС, определяющих потенциальную опасность графитовых РАО этого типа. На основании полученных численных значений сформирован набор данных по характеристикам облученного графита РБМК-1000 ЛАЭС, предназначенный для внесения в блок исходных показателей для проведения последующего обоснования безопасности всех этапов процесса ВЭ и последующего периода нахождения РАО в ПЗРО. Полученные результаты можно с высокой степенью достоверности распространять на остальные энергоблоки АЭС с РБМК-1000 с прогнозом периода эксплуатации на момент окончательного их останова ~ 45 лет.

2. По критериям содержания основных долгоживущих радионуклидов  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  на момент окончательного останова реакторов и по параметрам, характеризующим стойкость графита к их выщелачиванию, статистически значимых различий между графитом ПУГР и РБМК-1000 не наблюдается. При одинаковой длительности периода эксплуатации РБМК-1000 и ПУГР графит РБМК-1000 характеризуется более низким значением содержания  $^{14}\text{C}$  (на 30–40%). По величине удельной активности  $^{14}\text{C}$  блочный графит кладок РБМК-1000 в полном объеме относится ко 2-му классу РАО в соответствии с постановлением правительства РФ № 1069.

3. Согласно критериям, определенным в НП-093-2014, облученный графит РБМК-1000 по параметру скорости выхода радионуклидов из упаковки РАО (массовая доля активности, вышедшей из упаковки РАО за год) не превышает предельных значений, соответствующих РАО класса 3. При этом безопасность обеспечивается за счет стойкости графита к выщелачиванию, что является важным фактором, т. к., учитывая длительность периода потенциальной опасности графитовых РАО (не менее 10000 лет), обосновать надежность применения любых материалов для упаковок на данный период является крайне сложной задачей.

### Благодарность

Авторы выражают благодарность и признательность сотрудникам филиала АО «Концерн

Росэнергоатом» «Ленинградская атомная станция» Кудрявцеву К. Г., Ложникову И. Н., Бугакову И. М., Харахнину С. Н., Моченову Д. М. и др. за сотрудничество в рамках выполнения темы.

### Литература

1. Дорощев А. Н., Комаров Е. А., Захарова Е. В., Волкова А. Г., Линге И. И., Иванов А. Ю., Уткин С. С., Павлюк А. О., Котляревский С. Г. К вопросу захоронения реакторного графита // Радиоактивные отходы. 2019. № 2(7). С. 18–30. DOI: 10.25283/2587-9707-2019-2-18-30.
2. Вывод блоков из эксплуатации // РЭА. 2021. № 6. — URL: <https://www.rosenergoatom.ru/upload/iblock/5dd/5dd65251f7784f1d49d48f0273add2ab.pdf>.
3. Волков В. Г., Сафронова Н. Н., Морозов Ф. Т., Комаров Е. А., Зимин В. К., Былкин Б. К., Зверков Ю. А., Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И. О проблеме заключительного этапа обращения с облученным графитом блоков АЭС с водографитовыми реакторами // Радиоактивные отходы. 2021. № 2 (15). С. 10–20. DOI: 10.25283/2587-9707-2021-2-10-20.
4. Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Беспала Е. В., Волкова А. Г., Захарова Е. В. Анализ возможности снижения потенциальной опасности графитовых радиоактивных отходов при термической обработке // Известия ТПУ. Инжиниринг георесурсов. 2017. Т. 328. № 8. С. 24–32.
5. Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И., Волкова А. Г., Захарова Е. В., Илюхина М. А., Горшков В. Б., Дорощев А. Н., Зиннуров Б. С., Комаров Е. А. Подходы к характеристике графитовых блоков УГР по бета-излучающим радионуклидам  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$ . Апробация на реакторах типа РБМК-1000 // Радиоактивные отходы. 2021. № 2 (15). С. 21–32. DOI: 10.25283/2587-9707-2021-2-21-32.
6. Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И., Волкова А. Г., Золотов Д. А., Пахневич А. В., Захарова Е. В., Ширяев А. А. Определение параметров пористой структуры облученного графита, влияющих на механизмы выхода долгоживущих радионуклидов при контакте с жидкими средами // Радиохимия. 2020. Т. 62. № 6. С. 526–535. DOI: 10.31857/S003383112006009X.
7. Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И., Волкова А. Г., Захарова Е. В. Экспериментальные исследования процесса выщелачивания долгоживущих радионуклидов  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  из облученного графита // Радиохимия. 2021. Т. 63. № 2. С. 149–159. DOI: 10.31857/S0033831121020088.
8. Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И., Волкова А. Г., Захарова Е. В. Проект стандарта Госкорпорации «Росатом» СТО 95 120XX-20XX «Отходы радиоактивные. Определение скорости

выщелачивания долгоживущих нуклидов из графитовых радиоактивных отходов».

9. Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И., Волкова А. Г., Захарова Е. В. Отраслевая инструкция «Методика измерений удельной активности углерода-14 в графитовых блоках радиометрическим методом» ОИ 001.912-2020 (Свидетельство об аттестации № 01.00044/4119-2020).

10. Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И., Волкова А. Г., Захарова Е. В. Отраслевая инструкция «Методика измерений удельной активности хлора-36 в графитовых блоках радиометрическим методом» ОИ 001.911-2020 (Свидетельство об аттестации № 01.00044/4120-2020).

11. Самойлов А. А. Системная оптимизация и обоснование решений по безопасной эксплуатации установок по обращению с РАО на объектах ядерного топливного цикла: Дисс. канд. техн. наук. — Москва, ИБРАЭ РАН, 2020. 135 с.

12. Талицкая А. В., Захарова Е. В., Андрющенко Н. Д., Бочкарев В. В. Оценка долговременной безопасности объекта окончательной изоляции радиоактивных отходов, создаваемого при выводе из эксплуатации промышленного уран-графитового реактора // Ядерная и радиационная безопасность. 2017. № 2 (84). С. 54–60.

13. ГОСТ 29114-91. Отходы радиоактивные. Метод измерения химической устойчивости

отвержденных радиоактивных отходов посредством длительного выщелачивания.

14. ГОСТ 52126-2003. Определение химической устойчивости отвержденных высокоактивных отходов методом длительного выщелачивания.

15. Bucur C., Ichim C., Florea I.  $^{14}\text{C}$  release from TRIGA irradiated graphite // Radiocarbon. 2018. Vol. 60. no. 6. Pp. 1–11. DOI: <https://doi.org/10.1017/RDC.2018.131>.

16. Grigaliuniene D., Poskas P., Kilda R., Narkuniene A. Preliminary investigation of  $^{14}\text{C}$  migration from RBMK-1500 reactor graphite disposed of in a potential geological repository in crystalline rocks in Lithuania // Radiocarbon. 2018. Vol. 60. no. 6. Pp. 1839–1848. DOI:10.1017/RDC.2018.139.

17. Виргильев Ю. С., Балдин В. Д., Родченков Б. С. Российские реакторные графиты и их использование в конструкциях графитовых кладок ядерных реакторов: Препринт ОАО «НИКИЭТ». — М.: НИКИЭТ, 2013. 42 с.

18. Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И., Волкова А. Г., Захарова Е. В. Особенности пространственного распределения радионуклидов активационного происхождения в облученном графите // Известия ВУЗов. Физика. 2022. В печати.

19. НП-093-14. Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения.

## Информация об авторах

Павлюк Александр Олегович, кандидат физико-математических наук, руководитель группы НИОКР, АО «Опытно-демонстрационный центр вывода из эксплуатации уран-графитовых ядерных реакторов» (636000, Томская обл., Северск, Автодорога 13, здание 179), e-mail: [rao@dnrc.ru](mailto:rao@dnrc.ru).

Котляревский Сергей Геннадьевич, ведущий инженер, АО «Опытно-демонстрационный центр вывода из эксплуатации уран-графитовых ядерных реакторов» (636000, Томская обл., Северск, Автодорога 13, здание 179), e-mail: [ksg@dnrc.ru](mailto:ksg@dnrc.ru).

Кан Роман Игоревич, инженер-физик, АО «Опытно-демонстрационный центр вывода из эксплуатации уран-графитовых ядерных реакторов» (636000, Томская обл., Северск, Автодорога 13, здание 179), e-mail: [kri@dnrc.ru](mailto:kri@dnrc.ru).

Волкова Анна Генриховна, кандидат химических наук, старший научный сотрудник, Институт физической химии и электрохимии им. А. Н. Фрумкина РАН (119071, Москва, Ленинский пр-т, д. 31, корпус 4), e-mail: [anna.agv@yandex.ru](mailto:anna.agv@yandex.ru).

Захарова Елена Васильевна, кандидат химических наук, заведующая лабораторией, Институт физической химии и электрохимии им. А. Н. Фрумкина РАН (119071, Москва, Ленинский пр-т, д. 31, корпус 4), e-mail: [zakharova@ipc.rssi.ru](mailto:zakharova@ipc.rssi.ru).

Дорофеев Александр Николаевич, кандидат технических наук, руководитель Проектного офиса, Госкорпорация «Росатом» (119017, Москва, ул. Большая Ордынка, д. 24), e-mail: [ANDorofeev@rosatom.ru](mailto:ANDorofeev@rosatom.ru).

Зиннуров Борис Сайфутдинович, эксперт, Госкорпорация «Росатом» (119017, Москва, ул. Большая Ордынка, д. 24), e-mail: [BoSaZinnurov@rosatom.ru](mailto:BoSaZinnurov@rosatom.ru).

Комаров Евгений Алексеевич, старший менеджер управления, Госкорпорация «Росатом» (119017, Москва, ул. Большая Ордынка, д. 24), e-mail: [EAKomarov@rosatom.ru](mailto:EAKomarov@rosatom.ru).

Библиографическое описание статьи

Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И., Захарова Е. В., Волкова А. Г., Дорофеев А. Н., Зиннуров Б. С., Комаров Е. А. Анализ динамики выхода радионуклидов  $^{14}\text{C}$  и  $^{36}\text{Cl}$  из облученного графита РБМК-1000 в водных средах // Радиоактивные отходы. 2022. № 2(19). С. 35–48. DOI: 10.25283/2587-9707-2022-2-35-48.

THE DYNAMICS OF  $^{14}\text{C}$  AND  $^{36}\text{Cl}$  RADIONUCLIDE LEACHING FROM IRRADIATED RBMK-1000 GRAPHITE IN AQUEOUS MEDIA AND ITS ANALYSIS

Pavliuk A. O.<sup>1</sup>, Kotlyarevsky S. G.<sup>1</sup>, Kan R. I.<sup>1</sup>, Volkova A. G.<sup>2</sup>, Zakcharova E. V.<sup>2</sup>, Dorofeev A. N.<sup>3</sup>, Zinnurov B. S.<sup>3</sup>, Komarov E. A.<sup>3</sup>

<sup>1</sup>“Pilot & Demonstration Center for Decommissioning of Uranium-Graphite Nuclear Reactors”, JSC, Seversk, Tomsk region, Russia

<sup>2</sup>A. N. Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry of the Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

<sup>3</sup>State Corporation Rosatom, Moscow, Russia

Article received on January 26, 2022

The paper presents experimentally evaluated parameters of  $^{14}\text{C}$  and  $^{36}\text{Cl}$  leaching from irradiated RBMK-1000 graphite in aqueous media of various compositions, including distilled water and those stimulating the groundwater. To predict further radionuclide migration and to demonstrate the disposal safety, an array of initial data was formed presenting the characteristics of RBMK-1000 graphite stacks. The paper proposes an optimal approach describing numerically the function of the leaching dynamics. It also compares the calculated dynamics of  $^{14}\text{C}$  and  $^{36}\text{Cl}$  leaching from GR-220 (PUGR) and GR-280 (RBMK-1000) graphite.

**Keywords:** decommissioning, graphite RW, leaching of radionuclides, irradiated graphite, disposal, radioactive waste.

Acknowledgements

The authors would like to acknowledge and express their gratitude to the employees of the Leningrad Nuclear Power Plant (JSC Rosenergoatom Concern), in particular, to Kudryavtsev K. G., Lozhnikov I. N., Bugakov I. M., Kharakhnin S. N., Mochenov D. M. and others for their contribution to the study.

References

1. Dorofeev A. N., Komarov E. A., Zakharova E. V., Volkova A. G., Linge I. I., Utkin S. S., Ivanov A. Yu., Pavliuk A. O., Kotlyarevskiy S. G. K voprosu zakhoroneniya reaktornogo grafita [On Reactor Graphite Disposal]. *Radioaktivnyye otkhody — Radioactive Waste*, 2019, no. 2 (7), pp. 18–30. DOI: 10.25283/2587-9707-2019-2-18-30.

2. Vyvod blokov iz ekspluatatsii [Power Unit Decommissioning]. *Zhurnal “REA” — REA Journal*, 2021,

no. 6. — URL: <https://www.rosenergoatom.ru/upload/iblock/5dd/5dd65251f7784f1d49d48f0273add2ab.pdf>.

3. Volkov V. G., Safronova N. N., Morozov F. T., Komarov E. A., Zimin V. K., Bylkin B. K., Zverkov Yu. A., Pavlyuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Kan R. I. O probleme zaklyuchitel'nogo etapa obrashcheniya s obluchennym grafitom blokov AES s vodografitovymi reaktorami [On the Challenge Associated with the Final Stage of Irradiated Graphite Management from Water-Graphite NPP Reactor Units]. *Radioaktivnyye otkhody — Radioactive Waste*, 2021, no. 2 (15), pp. 10–20. DOI: 10.25283/2587-9707-2021-2-10-20.

4. Pavlyuk A. O., Kotlyarevskiy S. G., Bepala Ye. V., Volkova A. G., Zakharova Ye. V. Analiz vozmozhnosti snizheniya potentsial'noy opasnosti grafitovykh radioaktivnykh otkhodov pri termicheskoy obrabotke [Opportunities for Reducing the Potential Hazard Level of Graphite Radioactive Waste via its Thermal Treatment and their Analysis]. *Izvestiya TPU. Inzhiniring georesurov — TPU Proceedings*.

*Geological Resource Engineering*, 2017, vol. 328, no. 8, pp. 24–32.

5. Pavliuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zakcharova E. V., Ilyukhina M. A., Gorshkov V. B., Dorofeev A. N., Zinnurov B. S., Komarov E. A. Podkhody k kharakterizatsii grafitovykh blokov UGR po beta-izluchayushchim radionuklidam  $^{14}\text{C}$  i  $^{36}\text{Cl}$ . Aprobatsiya na reaktorakh tipa RBMK-1000 [Approaches to the Characterization of Graphite UGR Blocks Based on Beta-emitting  $^{14}\text{C}$  and  $^{36}\text{Cl}$  Radionuclides. Testing at RBMK-1000-type Reactors]. *Radioaktivnyye otkhody — Radioactive Waste*, 2021, no. 2 (15), pp. 21–32. DOI: 10.25283/2587-9707-2021-2-21-32.

6. Pavlyuk A. O., Kotlyarevskiy S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zolotov D. A., Pakhnevich A. V., Zakharova Ye. V., Shirayev A. A. Opredeleniye parametrov poristoy struktury obluchennogo grafito, vliyayushchikh na mekhanizmy vykhoda dolgozhivushchikh radionuklidov pri kontakte s zhidkimi sredami [Parameters of the porous irradiated graphite structure affecting the mechanisms associated with the release of long-lived radionuclides when exposed to liquid media and their identification]. *Radiokhimiya — Radiochemistry*, 2020, vol. 62, no. 6, pp. 526–535. DOI: 10.31857/S003383112006009X.

7. Pavlyuk A. O., Kotlyarevskiy S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zakharova Ye. V. Eksperimental'nyye issledovaniya protsessa vyshchelachivaniya dolgozhivushchikh radionuklidov  $^{14}\text{C}$  i  $^{36}\text{Cl}$  iz obluchennogo grafito [Experimental research on the long-lived  $^{14}\text{C}$  and  $^{36}\text{Cl}$  radionuclide leaching from irradiated graphite]. *Radiokhimiya — Radiochemistry*, 2021, vol. 63, no. 2, pp. 149–159.

8. Pavlyuk A. O., Kotlyarevskiy S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zakharova Ye. V. *Proyekt standarta Goskorporatsii "Rosatom" STO 95 120XX-20XX "Otkhody radioaktivnyye. Opredeleniye skorosti vyshchelachivaniya dolgozhivushchikh nuklidov iz grafitovykh radioaktivnykh otkhodov"* [Draft of SC Rosatom's Standard STO 95 120XX-20XX. Radioactive Waste. Assessing the rate of long-lived radionuclide leaching from graphite radioactive waste].

9. Pavlyuk A. O., Kotlyarevskiy S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zakharova Ye. V. *Otraslevaya instruksiya "Metodika izmereniy udel'noy aktivnosti ugleroda-14 v grafitovykh blokakh radiometricheskim metodom" OI 001.912-2020* (Svidetel'stvo ob attestatsii №01.00044/4119-2020) [Industry-based Instruction. Procedure Applied to Measure the Specific Activity of Carbon-14 in Graphite Stacks by Radiometric Method OI 001.912-2020 (Certificate No. 01.00044/4119-2020)].

10. Pavlyuk A. O., Kotlyarevskiy S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zakharova Ye. V. *Otraslevaya instruksiya "Metodika izmereniy udel'noy aktivnosti khloro-36 v grafitovykh*

*blokakh radiometricheskim metodom" OI 001.911-2020* (Svidetel'stvo ob attestatsii no/01.00044/4120-2020) [Industry-based Instruction. Procedure Applied to Measure the Specific Activity of  $^{36}\text{Cl}$  in Graphite Stacks by Radiometric Method OI 001.911-2020 (Certificate No. 01.00044/4120-2020)].

11. Samoilov A. A. *Sistemnaya optimizatsiya i obosnovaniye resheniy po bezopasnoy ekspluatatsii ustanovok po obrashcheniyu s RAO na ob'yektakh yadernogo toplivnogo tsikla* [Comprehensive optimization and justification of decisions on the safe operation of radioactive waste management facilities at nuclear fuel cycle facilities]. Cand. techn. sci. diss. Moscow, IBRAE RAS Publ., 2020. 135 p.

12. Talitskaya A. V., Zakharova Ye. V., Andryushchenko N. D., Bochkarev V. V. Otsenka dolgovremennoy bezopasnosti ob'yekta okonchatel'noy izolyatsii radioaktivnykh otkhodov, sozdavayemogo pri vyvode iz ekspluatatsii promyshlennogo uran-grafitovogo reaktora [Long-term Safety Assessment for a Radioactive Waste Disposal Facility Established During Uranium Graphite Reactor Decommissioning]. *Yadernaya i radiatsionnaya bezopasnost' — Nuclear and Radiation Safety*, 2017, no. 2 (84), pp. 54–60.

13. GOST 29114-91. *Otkhody radioaktivnyye. Metod izmereniya khimicheskoy ustoychivosti otverzhdennykh radioaktivnykh otkhodov posredstvom dlitel'nogo vyshchelachivaniya* [Radioactive Waste. Methods to Measure the Chemical Stability of Solidified Radioactive Waste via Long-term Leaching].

14. GOST 52126-2003. *Opredeleniye khimicheskoy ustoychivosti otverzhdennykh vysokoaktivnykh otkhodov metodom dlitel'nogo vyshchelachivaniya* [Assessing the Chemical Stability of Solidified High-Level Waste via Long-term Leaching].

15. Bucur C., Ichim C., Florea I.  $^{14}\text{C}$  release from TRIGA irradiated graphite. *Radiocarbon*, 2018, vol. 60, no. 6, pp. 1–11. DOI: <https://doi.org/10.1017/RDC.2018.131>.

16. Grigaliuniene D., Poskas P., Kilda R., Narkuniene A. Preliminary investigation of  $^{14}\text{C}$  migration from RBMK-1500 reactor graphite disposed of in a potential geological repository in crystalline rocks in Lithuania. *Radiocarbon*, 2018, vol. 60, no. 6, pp. 1839–1848. DOI:10.1017/RDC.2018.139.

17. Virgil'yev Yu. S., Baldin V. D., Rodchenkov B. S. *Rossiyskiye reaktornyye grafity i ikh ispol'zovaniye v konstruktsiyakh grafitovykh kladok yadernykh reaktorov* [Russian Reactor Graphite and its Application in the Graphite Stack Structures of Nuclear Reactors]. Preprint NIKIET. Moscow, NIKIET Publ., 2013. 42 p.

18. Pavlyuk A. O., Kotlyarevskiy S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zakharova Ye. V. Osobennosti prostranstvennogo raspredeleniya radionuklidov aktivatsionnogo proiskhozhdeniya v obluchennom grafito [Specific Aspects Associated with the Spatial Distribution of

Activation Radionuclides in Irradiated Graphite]. *Izvestiya VUZov. Fizika — Proceedings of Higher Educational Institutions. Physics*, 2022. (In print). 19. NP-093-14. *Kriterii priyemlemosti radioaktivnykh otkhodov dlya zakhoroneniya* [Radioactive Waste Acceptance Criteria for Disposal].

---

### Information about the authors

*Pavliuk Alexander Olegovich*, PhD, head of the R&D group, “Pilot & Demonstration Center for Decommissioning of Uranium-Graphite Nuclear Reactors”, JSC (Building 179, 13 Avtodoroga, Seversk, Tomsk Region, 636000, Russia), e-mail: pao@dnrc.ru.

*Kotlyarevsky Sergey Gennadievich*, leading engineer, “Pilot & Demonstration Center for Decommissioning of Uranium-Graphite Nuclear Reactors”, JSC (Building 179, 13 Avtodoroga, Seversk, Tomsk Region, 636000, Russia), e-mail: ksg@dnrc.ru.

*Kan Roman Igorevich*, engineer-physicist, “Pilot & Demonstration Center for Decommissioning of Uranium-Graphite Nuclear Reactors”, JSC (Building 179, 13 Avtodoroga, Seversk, Tomsk Region, 636000, Russia), e-mail: kri@dnrc.ru.

*Volkova Anna Genrihovna*, PhD, Senior Researcher, A. N. Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry of the Russian Academy of Sciences (31, bld. 4, Leninsky prospect, Moscow, 119071, Russia), e-mail: anna.agv@yandex.ru.

*Zakharova Elena Vasil'evna*, PhD, Head of the Laboratory, A. N. Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry of the Russian Academy of Sciences (31, bld. 4, Leninsky prospect, Moscow, 119071, Russia), e-mail: zakharova@ipc.rssi.ru.

*Dorofeev Aleksandr Nikolaevich*, PhD, Head of the Project Office, State Corporation Rosatom (24, Bolshaya Ordynka St., Moscow, 119017, Russia), e-mail: ANDorofeev@rosatom.ru.

*Zinnurov Boris Saifutdinovich*, expert, State Corporation Rosatom (24, Bolshaya Ordynka St., Moscow, 119017, Russia), e-mail: BoSaZinnurov@rosatom.ru.

*Komarov Evgenij Alekseevich*, Senior management manager, State Corporation Rosatom (24, Bolshaya Ordynka St., Moscow, 119017, Russia), e-mail: EAKomarov@rosatom.ru.

### Bibliographic description

Pavliuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zakcharova E. V., Dorofeev A. N., Zinnurov B. S., Komarov E. A. The dynamics of  $^{14}\text{C}$  and  $^{36}\text{Cl}$  radionuclide leaching from irradiated RBMK-1000 graphite in aqueous media and its analysis. *Radioactive Waste*, 2022, no. 2 (19), pp. 35–48. DOI: 10.25283/2587-9707-2022-2-35-48. (In Russian).