

ПОДХОДЫ К ХАРАКТЕРИЗАЦИИ ГРАФИТОВЫХ БЛОКОВ УГР ПО БЕТА-ИЗЛУЧАЮЩИМ РАДИОНУКЛИДАМ ^{14}C И ^{36}Cl . АПРОБАЦИЯ НА РЕАКТОРАХ ТИПА РБМК-1000

А. О. Павлюк¹, С. Г. Котляревский¹, Р. И. Кан¹, А. Г. Волкова², Е. В. Захарова²,
М. А. Илюхина³, В. Б. Горшков³, А. Н. Дорофеев⁴, Б. С. Зиннуров⁴, Е. А. Комаров⁴

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

²ФГБУН Институт физической химии и электрохимии им. академика А. Н. Фрумкина РАН, Москва

³АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов
им. академика А. А. Бочвара», Москва

⁴Госкорпорация «Росатом», Москва

Статья поступила в редакцию 13 мая 2021 г.

В настоящей статье приведены разработанные в АО «ОДЦ УГР» методические подходы к характеристике извлекаемых графитовых блоков по сложнодетектируемым радионуклидам ^{14}C и ^{36}Cl в процессе демонтажа графитовой кладки. Представлены результаты апробации применения этих методик при характеристике блоков графитовых кладок реакторов РБМК-1000 ЛАЭС.

Ключевые слова: облученный графит, сложнодетектируемые радионуклиды, радиоактивные отходы, неразрушающий метод контроля, характеристика, радионуклидный вектор.

Введение

Одной из наиболее важных особенностей облученного графита кладок остановленных уран-графитовых реакторов (УГР), выделяющих его среди других типов РАО, является тот факт, что ключевыми радионуклидами, определяющими потенциальную опасность основной массы РАО данного типа, являются долгоживущие β -излучатели ^{14}C ($T_{1/2} = 5730$ лет) и ^{36}Cl ($T_{1/2} = 301\,000$ лет) [1].

Изотоп ^{14}C составляет ~95% суммарной активности и определяет класс графитовых РАО. Удельная активность изотопа ^{36}Cl в облученном графите ниже, чем удельная активность ^{14}C , в среднем на 3–4 порядка [2, 3]. При этом параметры, характеризующие интенсивность

выщелачивания радионуклидов из графитовых РАО, для ^{36}Cl на те же 3–4 порядка выше, чем для ^{14}C [2]. В связи с этим при прогнозных оценках безопасности обращения с РАО данного типа на длительные периоды (в том числе захоронение в ПЗРО) оба радионуклида имеют сопоставимую значимость с точки зрения потенциального влияния на окружающую среду и население [4].

Актуальность и проблематика вопроса характеристики графитовых РАО по ^{14}C и ^{36}Cl

Характеристика графитовых РАО по β -излучающим радионуклидам ^{14}C и ^{36}Cl является одним из определяющих моментов обоснования

безопасности при обращении с графитовыми РАО при любом варианте вывода из эксплуатации уран-графитовых реакторов. В случае варианта «захоронение на месте» определяющее значение имеет количество данных изотопов, накопленное в графитовой кладке реактора. Этот параметр является одним из определяющих при выполнении прогнозных расчетов миграции радионуклидов из создаваемого пункта захоронения. При выводе из эксплуатации по варианту «ликвидация» в процессе характеристики устанавливается класс графитовых РАО и, соответственно, способ захоронения. При этом данные по параметрам графитовых РАО по ^{14}C и ^{36}Cl и их скорости выщелачивания являются определяющими при обосновании безопасности варианта захоронения и определении критериев приемлемости для конкретного ПЗРО [5].

Существенной особенностью варианта «ликвидация» является то, что он подразумевает полный демонтаж реакторной установки (включая графитовую кладку). Одним из этапов обращения с графитовыми РАО в данном случае будет являться контейнеризация извлеченных графитовых блоков УГР.

При этом одной из необходимых процедур будет паспортизация заполненных упаковок (контейнеров). В процессе паспортизации для упаковки с РАО должны быть определены изотопный состав, значения средней удельной и суммарной активности упаковок по радионуклидам, содержащимся в РАО. Для графитовых РАО процесс паспортизации упаковок при демонтаже графитовых кладок УГР по изотопам ^{14}C и ^{36}Cl представляет собой серьезную методическую проблему.

Изотопы ^{14}C ($E_{\text{вмакс}} = 156$ кэВ, $E_{\text{сред}} = 49$ кэВ) и ^{36}Cl ($E_{\text{вмакс}} = 710$ кэВ, $E_{\text{сред}} = 251$ кэВ) являются чистыми β -излучателями и относятся к сложнотестируемому радионуклидам. Методы, основанные на прямом детектировании спектров излучения данных изотопов (без пробоотбора и пробоподготовки) при определении характеристик активности упаковок с облученным графитом применены быть не могут (характерно для абсолютного большинства чистых β -излучателей, находящихся в смеси с другими радионуклидами). По этой причине определение содержания радионуклидов ^{14}C и ^{36}Cl в облученном графите по всем используемым в настоящее время методикам предполагает достаточную длительную последовательность, включающую:

- отбор проб;
- изготовление образцов;
- предварительную подготовку образцов;

- радиохимическое выделение «целевого радионуклида»;
- изготовление счетного образца (СОБ);
- β -спектрометрический анализ.

Применение данных методик при паспортизации упаковок с демонтированными графитовыми блоками УГР технически и экономически крайне неэффективно из-за большого количества таких блоков (~ 35 000 для графитовой кладки одного реактора типа РБМК-1000).

Анализ возможности применения метода «радионуклидный вектор» для характеристики графитовых РАО по ^{14}C и ^{36}Cl

Одним из методов, который предлагается использовать при паспортизации упаковок с РАО в подобной ситуации, является метод «радионуклидного вектора» (или «изотопных корреляций», «масштабирующих коэффициентов») [6–8]. В этом случае определение содержания сложнотестируемого радионуклида проводится по спектру излучения другого (легко поддающегося детектированию), активность которого связана (коррелирует) с активностью интересующего радионуклида.

Данное соотношение может быть обусловлено физически (через цепочку распада). Пример такого варианта применения «радионуклидного вектора» — это определение содержания изотопа ^{238}U по спектру γ -излучения изотопа $^{234\text{m}}\text{Pa}$. Второй вариант — если изотопы не являются звеньями одной цепочки распада, но активность интересующего изотопа однозначно связана с активностью детектируемого изотопа через параметры накопления при облучении. Пример такого варианта применения «радионуклидного вектора» — это определение содержания в облученных нержавеющей стали изотопов $^{59}, ^{63}\text{Ni}$ по спектру γ -излучения изотопа ^{60}Co .

Вариант, при котором «радионуклидный вектор» строится по цепочке радиоактивного распада для ^{14}C и ^{36}Cl невозможен, поскольку данные радионуклиды распадаются по простой цепочке с образованием стабильных изотопов (^{14}N и ^{36}Ar , соответственно). По истечении времени выдержки порядка 10 лет после окончательного останова УГР единственным надежно детектируемым γ -излучающим радионуклидом активационного происхождения в графите является изотоп ^{60}Co . Но в данном случае, в силу ряда причин, корреляционная связь по удельным активностям ^{60}Co относительно ^{14}C и ^{36}Cl неудовлетворительна из-за существенных диапазонов неопределенности коэффициентов корреляции. Основной причиной является то,

что в необлученном графите примесь кобальта варьируется в широких пределах [9]:

- для графита ГР-220 — $0,7 \cdot 10^{-7}$ — $3,8 \cdot 10^{-6}$ % масс.;
- для графита ГР-280 — $2,1 \cdot 10^{-7}$ — $6,2 \cdot 10^{-6}$ % масс.

Такие диапазоны вариации содержания кобальта характерны как между отдельными блоками, так и по объему отдельно взятых блоков. Подобная ситуация характерна и для примеси хлора ^{35}Cl , из которого идет образование ^{36}Cl [10]. Кроме того, определенный вклад в результирующую неопределенность дают [11]:

- нелинейность законов накопления ^{60}Co и ^{36}Cl (в отличие от ^{14}C , для которого характерно накопление по закону, близкому к линейному);
- зависимость форм кривых накопления ^{60}Co и ^{36}Cl от величин потоков тепловых нейтронов и температуры облучения.

На рис. 1 показаны диаграммы, характеризующие соотношение удельных активностей ^{14}C и ^{60}Co в графитовых блоках реакторов типа РБМК-1000 энергоблоков № 2 и № 3 Ленинградской АЭС. Для построения диаграмм использованы экспериментальные данные Курчатовского института [12] и АО «ОДЦ УГР», полученные в 2018 и 2020—2021 гг. Значения приведены для выборки из 43 графитовых блоков. В выборку включены блоки, расположенные по всей высоте графитовой кладки (включая торцевые отражатели) из ячеек «плато» активных зон энергоблоков № 2 и № 3 Ленинградской АЭС.

Экспериментальные результаты (рис. 1) показывают, что величины соотношения активностей ^{14}C и ^{60}Co варьируются в очень широких пределах относительно среднего значения (от –99% до +700%). Интервал значений соотношения активностей ^{14}C и ^{60}Co составляет почти 3 порядка. Величины диапазонов, характеризующие отдельные классы РАО по существующей классификации,

составляют также 3 порядка. При паспортизации упаковок с графитовыми РАО такая величина неопределенности изотопного соотношения явно неприемлема. То есть при паспортизации упаковок с графитовыми РАО по данному соотношению имеет место не только существенная неопределенность определения значений активности ^{14}C , но и высока вероятность завышения или занижения класса РАО (учитывая, что содержание ^{14}C в графите определяет класс РАО). Таким образом, метод «радионуклидного вектора» при определении характеристик активности упаковок с облученным графитом по радионуклидам ^{14}C и ^{36}Cl применен быть не может.

Разработка отраслевых инструкций (методик) характеристики графитовых РАО по ^{14}C и ^{36}Cl

Результаты ряда исследований особенностей накопления и пространственной локализации ^{14}C и ^{36}Cl в графитовых кладках УГР, проведенных в АО «ОДЦ УГР» в период 2019—2020 гг. с привлечением специализированных организаций ИФХЭ РАН им. А. Н. Фрумкина и Метрологического отделения АО «ВНИИНМ» им. А. А. Бочвара, позволили сформулировать иные принципы и алгоритмы проведения паспортизации упаковок с графитовыми РАО в ходе демонтажа графитовых кладок УГР [13]. Они были заложены в основу методик характеристики облученного графита по изотопам ^{14}C и ^{36}Cl — отраслевых инструкций ОИ 001.911-2020 и ОИ 001.912-2020 [14, 15].

Они состоят из следующих основных блоков:

- порядок отбора проб из графитового блока (Приложение А);
- методика выполнения измерений удельной активности радионуклида (^{14}C или ^{36}Cl) в пробах облученного графита;

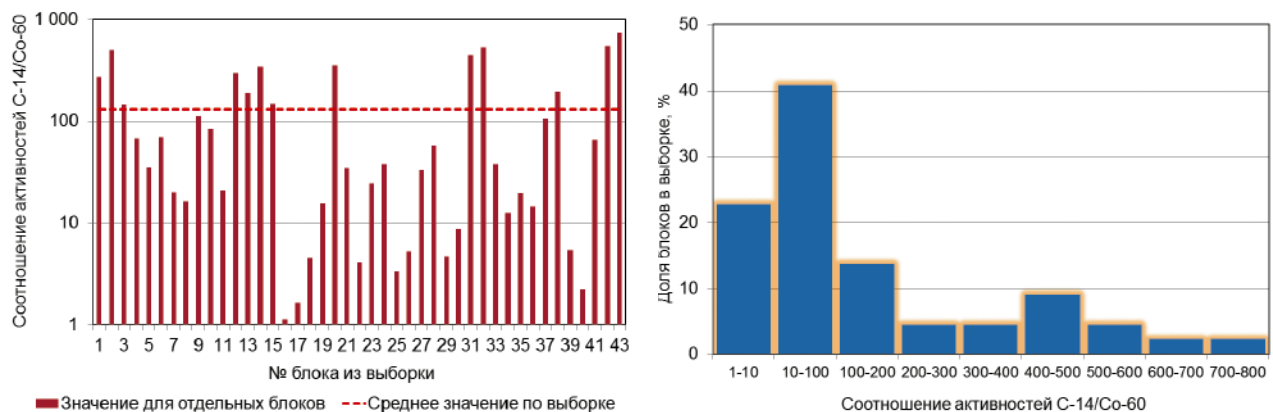


Рис. 1. Диаграммы, характеризующие соотношение удельных активностей ^{14}C и ^{60}Co в графитовых блоках реакторов типа РБМК-1000 энергоблоков № 2 и № 3 Ленинградской АЭС: значения соотношений активностей ^{14}C и ^{60}Co в отдельных графитовых блоках в выборке (слева); функция распределения графитовых блоков в выборке по величине соотношения активностей ^{14}C и ^{60}Co (справа)



Рис. 2. Схема получения и использования регрессионных зависимостей при характеристике графитовых РАО по изотопам ^{14}C или ^{36}Cl в соответствии с ОИ 001.911-2020 [14] и ОИ 001.912-2020 [15]

- порядок паспортизации упаковок с графитовыми блоками по изотопу (^{14}C или ^{36}Cl) при демонтировании графитовых кладок УГР (Приложение Б).

Предложенный принцип характеристики по изотопам ^{14}C и ^{36}Cl при паспортизации упаковок с извлеченными графитовыми блоками (Приложения Б Методик ОИ 001.911-2020 и ОИ 001.912-2020 [14]), позволяет уйти от массовых измерений проб в лабораторных условиях. Согласно принципу, заложенному в Приложениях Б методик ОИ 001.911-2020 и ОИ 001.912-2020 [15], определение содержания ^{14}C в блоках проводится с использованием регрессионных зависимостей от высотной отметки блока в ячейке и величины энерговыработки ячейки (для топливных ячеек) в относительных долях от максимальной. Для ^{36}Cl регрессионные зависимости строятся на основе пространственного распределения и функции распределения графитовых блоков по величине активности ^{36}Cl . Получение массива экспериментальных данных по содержанию ^{14}C и ^{36}Cl в кладке УГР для построения регрессионных зависимостей проводится в рамках комплексного радиационного обследования. Схема получения и использования регрессионных зависимостей при характеристике графитовых РАО по изотопам ^{14}C или ^{36}Cl в соответствии с ОИ 001.911-2020 [14] и ОИ 001.912-2020 [15] представлена на рис. 2.

Результаты апробации применения отраслевых инструкций (методик) для характеристики блоков графитовых кладок УГР типа РБМК-1000

Физические особенности накопления изотопа ^{14}C приводят к тому, что для отечественных УГР (в т.ч. и РБМК-1000), где значительный вклад в него составляет образование ^{14}C на газообразном азоте, объемное распределение ^{14}C с высокой степенью корреляции определяется

пространственным распределением потоков тепловых нейтронов как по объему графитовых кладок, так и отдельным графитовым блокам [17, 18]. В процессе исследований экспериментальная апробация методик проводилась не только с использованием ядерных, отобранных дистанционно из графитовых кладок УГР. Значительная статистика по объемному распределению ^{14}C получена на графитовых блоках, извлеченных из графитовой кладки ПУГР АДЭ-5. На рис. 3 приведен внешний вид извлеченного блока, на рис. 4 — форма аксиального распределения удельной активности ^{14}C в данном блоке.

По результатам исследований пространственного распределения этот блок, извлеченный из графитовой кладки ПУГР АДЭ-5, аттестован

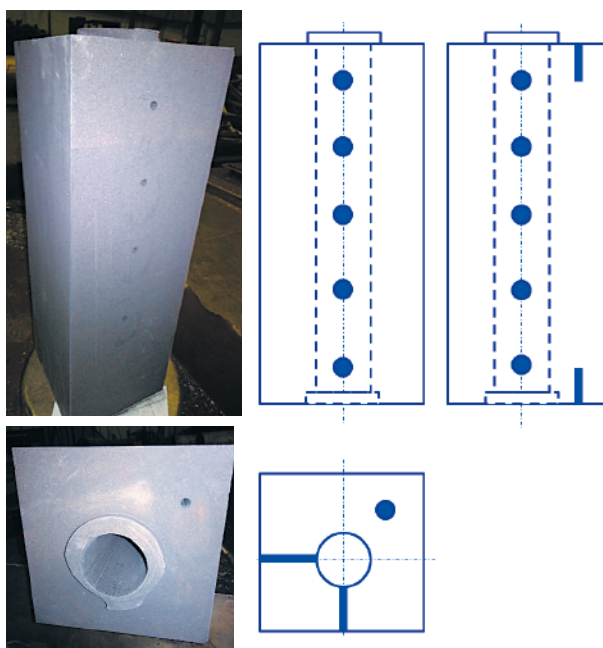


Рис. 3. Графитовый блок, извлеченный из графитовой кладки ПУГР АДЭ-5, после отбора проб графита: боковая стенка и торцевая поверхность (слева); схема отбора проб из графитового блока (справа)

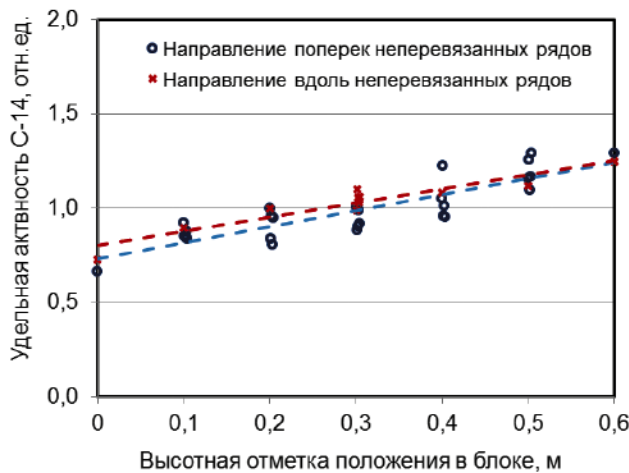


Рис. 4. Относительное распределение удельной активности ^{14}C по высоте извлеченного графитового блока в двух взаимно перпендикулярных плоскостях

Метрологическим отделением АО «ВНИИНМ» им. академика А. А. Бочвара. Графитовый блок аттестован по величине усредненной по объему блока удельной активности изотопа ^{14}C , а также функции объемного распределения удельной активности изотопа ^{14}C . Выдано Свидетельство «Аттестованный объект активности углерода-14», АО 95 505/531-27-2020. Данный блок в последующем может быть использован в качестве стандартного образца при проверке корректности используемых и вновь разрабатываемых методик выполнения измерений (МВИ), калибровке средств измерений, а также при тестировании возможных вариантов экспресс-методов определения содержания ^{14}C . Ранее был получен практический опыт по созданию Отраслевых стандартных образцов. В 2018 г. в результате проведения межлабораторных сравнительных испытаний (МСИ) были аттестованы партии графита № 1, № 2 и № 3 по содержанию изотопа ^{14}C в качестве Отраслевых стандартных образцов [19]. По результатам аттестации оформлены «Свидетельства на комплекты аттестованных объектов по удельной активности изотопа углерода-14: АО 95 505/532-3-2018; АО 95 505/532-3-2018; АО 95 505/532-3-2018». Аттестованные объекты внесены в отраслевой реестр аттестованных объектов.

В основе порядка паспортизации упаковок с графитовыми блоками по изотопу ^{14}C при демонтаже графитовых кладок УГР по методике ОИ 001.912-2020 лежит пространственное распределение удельной активности ^{14}C (A_c) графитовых блоков по объему графитовой кладки, обусловленное распределением величины потока тепловых нейтронов в период эксплуатации УГР и величиной энерговыработки ячеек графитовой кладки.

Регрессионные зависимости для определения удельной активности ^{14}C графитовых блоков по объему графитовой кладки определяются путем аналитической обработки экспериментальных данных, полученных путем дистанционного отбора проб (в соответствии с Приложением А методики ОИ 001.912-2020) в объеме графитовой кладки УГР и последующих измерений их удельной активности по изотопу ^{14}C . Работы по экспериментальному определению пространственного распределения удельной активности ^{14}C графитовых блоков по объему графитовой кладки осуществляются в рамках КИРО графитовой кладки УГР после его окончательного останова и выгрузки топлива. Схема формирования статистически представительного массива образцов из графитовых блоков по объему графитовой кладки для получения регрессионных зависимостей представлена в Приложении Б методики ОИ 001.912-2020.

По результатам обработки полученного массива данных строятся эмпирические регрессионные зависимости величины удельной активности ^{14}C графитовых блоков от высотного расположения в ячейке графитовой кладки и энерговыработки ячейки. Порядок получения зависимостей определен в Приложении Б методики ОИ 001.912-2020 для ячеек с штатной топливной загрузкой, ячеек СУЗ, ячеек бокового отражателя.

В соответствии с алгоритмом, заложенным в Приложении Б методики ОИ 001.912-2020, получены регрессионные зависимости содержания ^{14}C для ячеек графитовых кладок в области активной зоны ЛАЭС-2 и ЛАЭС-3 в характерном для них диапазоне величин энерговыработки. На рис. 5 показаны регрессионные зависимости, полученные АО «ОДЦ УГР» по массиву экспериментальных данных в ходе выполнения исследований накопления ^{14}C и ^{36}Cl в графитовых кладках РБМК-1000 ЛАЭС-2 и ЛАЭС-3 в соответствии с методикой ОИ 001.912-2020.

На рис. 5 видно, что максимальные отклонения основной доли экспериментальных точек (более 95 %) от полученных в соответствии с методикой ОИ 001.912-2020 регрессионных зависимостей не превышают 25 %. Данный факт свидетельствует в пользу корректности алгоритмов и рекомендаций Приложения Б ОИ 001.912-2020 об использовании этих регрессионных зависимостей при проведении характеризации извлекаемых графитовых блоков и паспортизации упаковок с извлеченными графитовыми блоками по величине содержания ^{14}C при демонтаже графитовых кладок реакторов типа РБМК-1000.

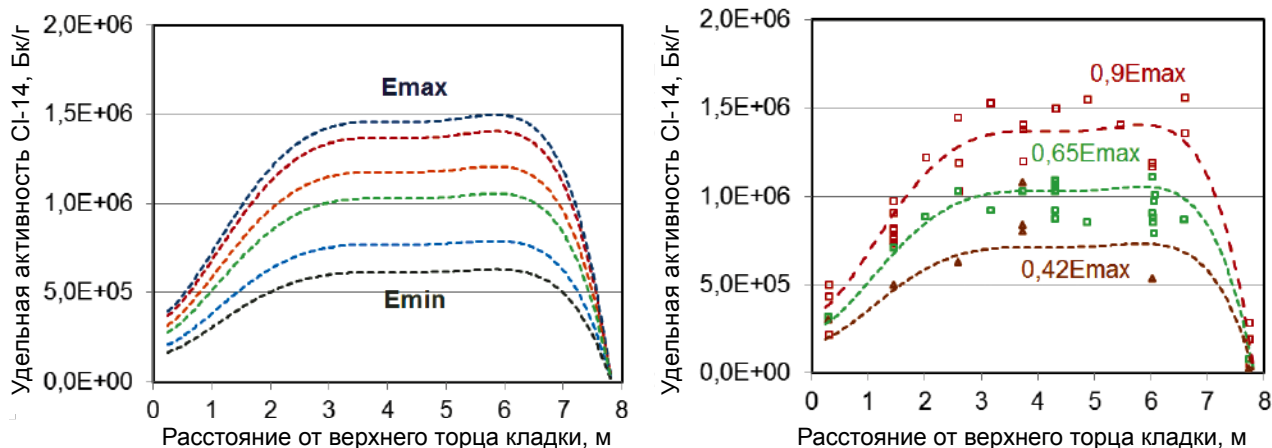


Рис. 5. Регрессионные зависимости содержания ^{14}C для ячеек графитовых кладок ЛАЭС-2 и ЛАЭС-3 в характерном для ячеек РБМК диапазоне величин энерговыработки: полученные в соответствии с методикой ОИ 001.912-2020 (слева); с наложением экспериментальных точек (справа)

Регрессионные зависимости содержания ^{14}C в графите могут существенно различаться для разных типов реакторов (РБМК, ПУТР, АМБ, ЭГП и др.). Таким образом, требуется их определение для каждого определенного типа реакторов с идентичными марками графита и параметрами эксплуатации.

Порядок паспортизации упаковок с графитовыми блоками по изотопу ^{36}Cl при демонтаже графитовых кладок УТР определен в Приложении Б методики ОИ 001.911-2020.

Пространственное распределение удельной активности ^{36}Cl (A_{Cl}) по объему кладки существенно зависит от вариации содержания примеси ^{35}Cl (примесные атомы в необлученном графите, из которых образуется ^{36}Cl) по объему отдельных графитовых блоков и от блока к блоку. Результаты исследований показали, что для распределения содержания ^{36}Cl по высоте

отдельных ячеек графитовых кладок УТР не характерны какие-либо общие закономерности и корреляции (рис. 6).

Изотоп ^{36}Cl распределен по объему графитовых кладок хаотично, но в границах определенного диапазона (рис. 6). При этом для всего массива экспериментальных данных по высоте графитовой кладки прослеживается тенденция корреляции с высотным распределением потока нейтронов. Но ширина данного диапазона значительно превышает диапазоны, характерные для пространственного распределения потоков тепловых нейтронов в кладках.

Особенности такого явления обуславливаются несколькими факторами, приводящими к значительной вариации его содержания [10, 18]. Функции распределения содержания ^{36}Cl по всему массиву проб графита кладок УТР (как ПУТР, так и РБМК-1000) близки по основным

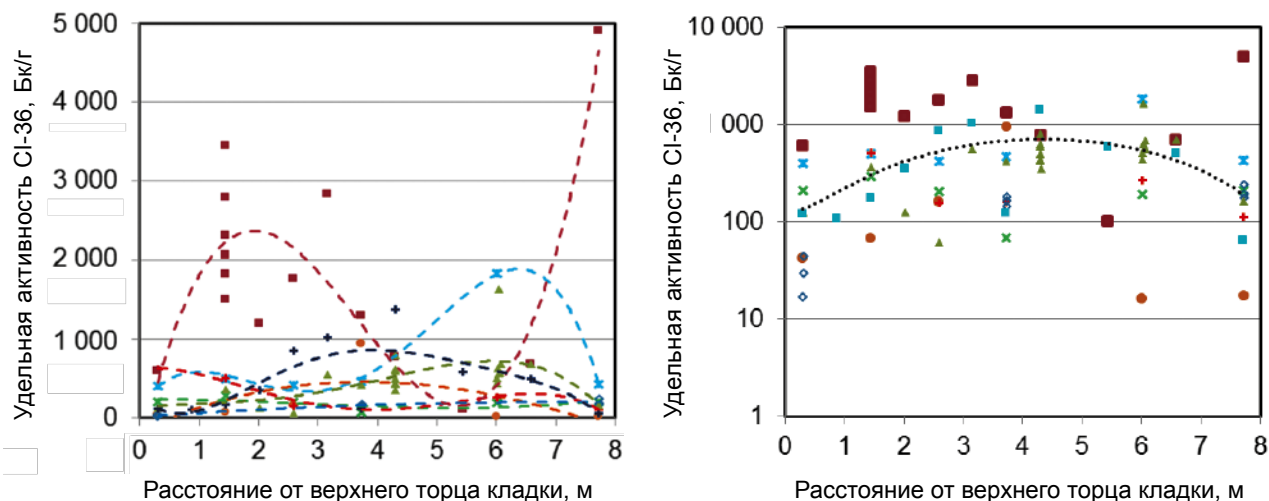


Рис. 6. Распределение содержания ^{36}Cl по высоте отдельных ячеек графитовых кладок реакторов РБМК-1000 ЛАЭС-2 и ЛАЭС-3 (линейный масштаб (слева) и логарифмический масштаб (справа))

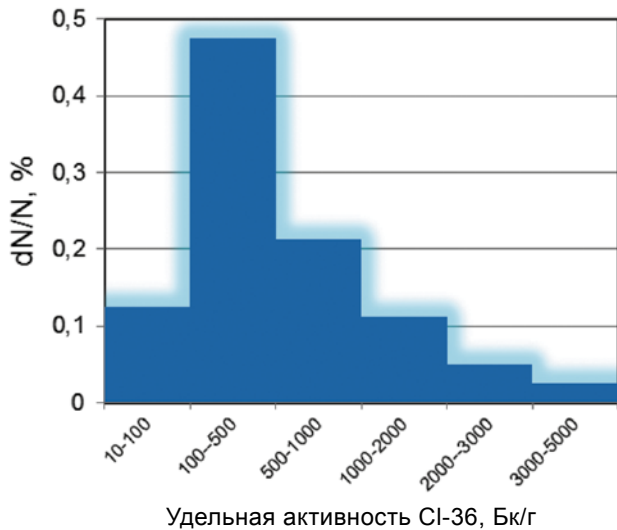


Рис. 7. Функция распределения содержания ^{36}Cl в графите РБМК-1000 ЛАЭС-2 и ЛАЭС-3

величинам и параметрам и могут быть описаны распределением Пуассона (рис. 7).

Ширина диапазона значений содержания ^{36}Cl составляет более двух порядков. Основная масса блоков (~70%) лежит в интервале шириной в 1 порядок и составляет 100–1000 Бк/г. Для характеристики блоков при паспортизации упаковок по методике ОИ 001.911-2020 значение содержания ^{36}Cl определяется с использованием регрессионной зависимости аксиального распределения (рис. 6), а также функции распределения содержания изотопа и определенными для нее показателями неопределенности (рис. 7). Получаемая величина неопределенности определения удельной активности ^{36}Cl является приемлемой, поскольку величина удельной активности ^{36}Cl для графитовых блоков не является определяющей класс РАО. Класс определяет изотоп ^{14}C , удельная активность которого в среднем на 3–4 порядка выше, чем удельная активность ^{36}Cl . Характерные значения содержания ^{36}Cl в графите — не более 5000 Бк/г. Таким образом, даже с принятой величиной неопределенности измерений до 90% полученные значения средней удельной активности по упаковке будут гарантированно ниже, чем верхняя граница для РАО класса 3 (удельная активность 10^4 Бк/г). Фактическая величина неопределенности значения средней удельной активности ^{36}Cl в графите будет зависеть от величины выборки блоков, то есть от количества их в упаковке. При количестве блоков ~50 шт. неопределенность средней удельной активности ^{36}Cl по упаковке составит величину менее 50%.

В соответствии с Приложением Б методики ОИ 001.911-2020 пространственное распределение

удельной активности ^{36}Cl графитовых блоков по объему графитовой кладки и функция распределения блоков по величине содержания ^{36}Cl (рис. 6, 7) определяется путем дистанционного отбора проб (в соответствии с Приложением А методики ОИ 001.911-2020) в объеме графитовой кладки УГР и последующих измерений их удельной активности по изотопу ^{36}Cl в ходе проведения КИРО (по тому же массиву проб, что и для ^{14}C).

При паспортизации упаковок величина удельной активности ^{14}C и ^{36}Cl графитовых блоков, извлекаемых при демонтаже графитовой кладки УГР из определенной ячейки и расположенных на определенной высотной отметке, определяется в соответствии с эмпирическими выражениями регрессионных зависимостей.

При укладке извлекаемых блоков в упаковку (контейнер) суммарная активность содержимого контейнера по ^{14}C или ^{36}Cl будет определяться выражением:

$$A_{\text{C,Cl}}^{\Sigma} = \sum_{i=1}^L A_{\text{C,Cl}i} \quad (1)$$

где L — количество извлеченных блоков в упаковке (контейнере); $A_{\text{C,Cl}}^{\Sigma}$ — суммарная активность ^{14}C или ^{36}Cl в извлекаемых блоках в упаковке (контейнере), Бк;

$A_{\text{C,Cl}i}$ — активность по ^{14}C или ^{36}Cl i -го блока в упаковке (контейнере), Бк.

Средняя удельная активность содержимого упаковки (контейнера) определяется исходя из величины $A_{\text{C,Cl}}^{\Sigma}$ и полной массы блоков в контейнере.

При выполнении паспортизации упаковок (контейнеров) в соответствии с порядком, определенным Приложениями Б методик ОИ 001.911-2020 и ОИ 001.912-2020, рекомендуется выполнение подтверждающих измерений проб, отобранных из извлеченных блоков в соответствии с настоящей Методикой. Измерения рекомендуется выполнять для одного или двух блоков, помещаемых в контейнер. Выборку блоков для контрольных измерений рекомендуется делать среди блоков, характеризующихся максимальными для паспортизируемой упаковки величинами удельной активности изотопов ^{14}C и ^{36}Cl .

Заключение

На основе результатов исследований особенностей накопления и пространственного распределения радионуклидов ^{14}C и ^{36}Cl в графитовых кладках УГР разработаны Отраслевые инструкции (методики) по характеристике облученного графита по указанным

изотопам ОИ 001.911-2020 и ОИ 001.912-2020, определяющие:

- методику выполнения измерений удельной активности радионуклида (^{14}C или ^{36}Cl) в пробах облученного графита;
- порядок отбора проб из графитового блока;
- порядок паспортизации упаковок с графитовыми блоками по изотопу (^{14}C или ^{36}Cl) при демонтаже графитовых кладок УГР.

Предложенный принцип характеристики графитовых РАО по изотопам ^{14}C и ^{36}Cl при паспортизации упаковок с извлеченными графитовыми блоками (Приложения Б ОИ 001.911-2020 и ОИ 001.912-2020) в ходе демонтажа графитовых кладок позволяет уйти от массовых измерений проб в лабораторных условиях. Практическая применимость разработанных методик экспериментально доказана для графитовых кладок ПУГР И-1, АДЭ-5, реакторов РБМК-1000 ЛАЭС-2 и ЛАЭС-3. Результаты апробации показали приемлемые показатели точности определения величин удельной активности ^{14}C и ^{36}Cl по предложенным алгоритмам в графитовых блоках кладок УГР и признаны метрологически обоснованными. Отраслевые инструкции (методики) ОИ 001.911-2020 и ОИ 001.912-2020 аттестованы Метрологическим отделением АО «ВНИИНМ» имени академика А. А. Бочвара.

Регрессионные зависимости по содержанию изотопов ^{14}C и ^{36}Cl в графитовых РАО, полученные в соответствии с методиками ОИ 001.911-2020 и ОИ 001.912-2020, применимы не только для процедуры паспортизации упаковок с демонтированными графитовыми блоками УГР. Их использование позволяет определить полное содержание ^{14}C и ^{36}Cl как в демонтируемых графитовых РАО УГР при захоронении в ПЗРО различных типов, так и при реализации варианта «захоронение на месте». Использование данных зависимостей позволяет более точно (с гарантией не занижения результатов) определить содержание данных радионуклидов и избежать необоснованного (излишне консервативного) завышения результатов оценок потенциальной опасности графитовых РАО при обосновании вариантов их захоронения.

Благодарность

Авторы выражают признательность сотрудникам филиала АО «Концерн Росэнергоатом» «Ленинградская атомная станция» Бугакову И. М., Кудрявцеву К. Г., Ложникову И. Н., Моченову Д. М., Харахнину С. Н., Хромову А. В. и др. за сотрудничество при формировании массива проб графита и предоставление исходных данных по эксплуатационным характеристикам

реакторов ЛАЭС-2 и ЛАЭС-3 для проведения исследований и анализа результатов.

Литература

1. Дорощев А. Н., Комаров Е. А., Захарова Е. В., Волкова А. Г., Мартынов К. В., 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. Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И., Волкова А. Г., Захарова Е. В. Экспериментальные исследования процесса выщелачивания долгоживущих радионуклидов ^{14}C и ^{36}Cl из облученного графита // Радиохимия. 2021. Т. 63. № 2. С. 149—159. DOI: 10.31857/S0033831121020088.
3. Poncet B., Laurent P. Method to assess the radionuclide inventory of irradiated graphite waste from gas-cooled reactors // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2013. № 298. Pp. 941—953. DOI: 10.1007/s10967-013-2519-6.
4. Талицкая А. В., Захарова Е. В., Андрищенко 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.
5. НП-093-14. Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения.
6. ISO 16966-2013. Nuclear-energy — Nuclear fuel technology — Theoretical activation calculation method to evaluate the radioactivity of activated waste generated at nuclear reactors.
7. IAEA Nuclear Energy Series NW-T-1.18. Determination and use of scaling factors for waste characterization in NPP. IAEA, Vienna, Austria, 2009.
8. Жеребцов А. А., Варлаков А. П., Германов А. В., Шаров Д. А., Ельцин В. Ф., Чураков А. К., Скакун Г. Е. Подходы к характеристике РАО, образующихся при реализации проекта «ПРОРЫВ» // Радиоактивные отходы. 2018. № 2 (3). С. 88—94.
9. Бушуев А. В., Кожин А. Ф., Петрова Е. В. и др. Радиоактивный реакторный графит. М. : Национальный исследовательский ядерный университет МИФИ, 2015. 148 с.
10. Nicaise G. O., Poncet B. A reverse method for the determination of the radiological inventory of irradiated graphite at reactor scale // Kerntechnik. 2016. Vol. 81. № 5. Pp. 565—570. DOI: 10.3139/124.110732; Понсе Б. Оценка содержания изотопа ^{36}Cl в графите по методике ЭДФ: отбор проб и «эффект самородка» / Семинар EDF-Росэнергоатом, 2017 г.
11. Левин В. И. Получение радиоактивных изотопов. М. : Атомиздат, 1972. 256 с.

12. Послереакторные исследования в горячих камерах образцов (кернах) графита, взятых из кладки энергоблока № 2 Ленинградской АЭС в 2018 году. Отчет, инв. № 110.9-15вн-19. 78 с.
13. Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И. Рекомендации по порядку паспортизации графитовых РАО. АО «ОДЦ УГР». Инв. № ЛКИРО-3349.
14. 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).
15. 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).
16. Беспала Е. В., Павлюк А. О., Котляревский С. Г. О форме нахождения и характере связи ^{14}C в облученном графите уран-графитовых ядерных реакторов // Известия высших учебных заведений. Ядерная энергетика. 2017. №4. С. 116–126. DOI: 10.26583/npe.2017.4.11.
17. 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.
18. 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.
19. Pavliuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Kan R. I., Gorshkov V. B., Maksimova I. M., Volkova A. G., Zakharova E. V., Stepanov A. V., Volkovich A. G., Simirsky Yu. N., Dushin V. N., Alekseev I. E., Merkulov V. G., Tchibisov E. V., Kabanov D. V. Fabrication and Calibration of New Carbon-14 Reference Standards Using Irradiated Graphite from Uranium–Graphite Reactors // Nuclear Inst. and Methods in Physics Research. Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2021. Vol. 1003 (7). P. 165350, DOI: 10.1016/j.nima.2021.165350.

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.

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.

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.

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

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

Илюхина Мария Анатольевна, кандидат физико-математических наук, начальник лаборатории, АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов им. академика А. А. Бочвара» (123098, Москва, ул. Рогова, д. 5а), e-mail: maailyukhina@bochvar.ru.

Горшков Владимир Борисович, директор метрологического отделения АО ВНИИИМ им. А. А. Бочвара, главный метролог ГНМЦ Госкорпорации «Росатом», АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов им. академика А. А. Бочвара» (123098, Москва, ул. Рогова, д. 5а), e-mail: vbgorshkov@bochvar.ru.

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

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

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

Библиографическое описание статьи

Павлюк А. О., Котляревский С. Г., Кан Р. И., Волкова А. Г., Захарова Е. В., Илюхина М. А., Горшков В. Б., Дорофеев А. Н., Зиннуров Б. С., Комаров Е. А. Подходы к характеристике графитовых блоков УГР по бета-излучающим радионуклидам ^{14}C и ^{36}Cl . Апробация на реакторах типа РБМК-1000 // Радиоактивные отходы. 2021. № 2 (15). С. 21–32. DOI: 10.25283/2587-9707-2021-2-21-32.

APPROACHES TO THE CHARACTERIZATION OF GRAPHITE UGR BLOCKS BASED ON BETA-EMITTING ^{14}C AND ^{36}Cl RADIONUCLIDES. TESTING AT RBMK-1000-TYPE REACTORS

Pavliuk A. O.¹, Kotlyarevsky S. G.¹, Kan R. I.¹, Volkova A. G.², Zakcharova E. V.²,
Plyukhina M. A.³, Gorshkov V. B.³, Dorofeev A. N.⁴, Zinnurov B. S.⁴, Komarov E. A.⁴

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

²Federal State Budgetary Institution of Science A. N. Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry of the Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

³JSC “A. A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials”, Moscow, Russia

⁴State Corporation “Rosatom”, Moscow, Russia

Article received on May 13, 2021

This paper presents some methodological approaches to the characterization of graphite blocks based on difficult-to-measure ^{14}C and ^{36}Cl radionuclides during graphite stack dismantlement at uranium-graphite reactors (UGR) developed by JSC PDC UGR. It presents the testing results of the developed methods applied during RBMK-1000 graphite stack block characterization at the Leningrad NPP.

Keywords: irradiated graphite, difficult-to-measure radionuclides, radioactive waste radiation characteristics, radioactive waste, non-destructive method, radionuclide vector.

Acknowledgements

The authors would like to express their gratitude and appreciation to the employees of the Leningrad Nuclear Power Plant operated as a branch of the Rosenergoatom Concern, in particular, to Bugakov I. M., Kudryavtsev K. G., Lozhnikov I. N., Mochev D. M., Kharakhnin S. N., Khromov A. V. and others for the cooperation during the formation of graphite sample array and the initial data provided on LNPP-2 and LNPP-3 operational characteristics for the study performed and the evaluation of its findings.

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., Kotlyarevskij S. G. K voprosu zakhoroneniya reaktornogo grafito [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. Pavlyuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zakharova E. V. Eksperimental'nyye issledovaniya protsessy vyshchelachivaniya dolgozhivushchikh

- radionuklidov ^{14}C i ^{36}Cl iz obluchennogo grafita [Experimental Studies of Long-lived ^{14}C and ^{36}Cl Radionuclide Leaching from Irradiated Graphite]. *Radiokhimiya — Radiochemistry*, 2021, vol. 63, no. 2, pp. 149–159. DOI: 10.31857/S0033831121020088.
3. Poncet B., Laurent P. Method to assess the radionuclide inventory of irradiated graphite waste from gas-cooled reactors. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2013, no. 298, pp. 941–953. DOI: 10.1007/s10967-013-2519-6.
4. Talitskaya A. V., Zakharova E. V., Andryuzhenko N. D., Bochkarev V. V. Otsenka dolgovremennoi bezopasnosti ob"ekta okonchatel'noi izolyatsii radioaktivnykh otkhodov, sozdavaemogo pri vyvode iz ehkspluatatsii promyshlennogo uran-grafitovogo reaktora [Long-Term Safety Assessment of Radioactive Waste Disposal Facility Formed During Decommissioning Uranium-Graphite Production Reactor]. *Yadernaya i radiatsionnaya bezopasnost' — Nuclear and Radiation Safety*, 2017, no. 2 (84), pp. 54–60.
5. NP-093-14. *Kriterii priyemlosti radioaktivnykh otkhodov dlya zakhoroneniya* [Radioactive Waste Acceptance Criteria for Disposal].
6. ISO 16966-2013. Nuclear-energy — Nuclear fuel technology — Theoretical activation calculation method to evaluate the radioactivity of activated waste generated at nuclear reactors.
7. IAEA Nuclear Energy Series NW-T-1.18. Determination and use of scaling factors for waste characterization in NPP. IAEA, Vienna, Austria, 2009.
8. Zherebtsov A. A., Varlakov A. P., Germanov A. V., Sharov D. A., Eltsin V. F., Churakov A. K., Skakun G. E. Podkhody k kharakterizatsii RAO, obrazuyushchikh-sya pri realizatsii proyekta "PRORYV" [Approaches to the characterization of RW generated during the implementation of the PRORYV project]. *Radioaktivnyye otkhody — Radioactive Waste*, 2018, no. 2 (3), pp. 88–94.
9. Bushuev A. V., Kozhin A. F., Petrova E. V. et al. *Radioaktivnyy reaktorny grafit* [Radioactive Reactor Graphite], Moscow, National Research Nuclear University MEPhI Publ., 2015. 148 p.
10. Nicaise G. O., Poncet B. A reverse method for the determination of the radiological inventory of irradiated graphite at reactor scale. *Kern-technik*, 2016, vol. 81, no. 5, pp. 565–570. DOI: 10.3139/124.110732; Ponce B. Otsenka sodержaniya izotopa ^{36}Cl v grafite po metodike EDF: otbor prob i "effekt samorodka" [Evaluation of ^{36}Cl Isotope Content in Graphite by the EDF Method: Sampling and the Nugget Effect]. EDF-Rosenergoatom Workshop, 2017.
11. Levin V. I. *Polucheniye radioaktivnykh izotopov* [Extraction of Radioactive Isotopes]. Moscow, Atomizdat Publ., 1972. 256 p.
12. Hot cell post-irradiation studies of graphite stack samples (cores) from Leningrad NPP unit No.2 in 2018. Report, inv. No. 110.9-15vn-19. 78 p..
13. Pavlyuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Kan R. I. *Rekomendatsii po poryadku pasportizatsii grafitovykh RAO* [Recommendations on the Graphite Radioactive Waste Certification Procedure]. PDC UGR JSC. Inv. No. LKIRO-3349.
14. Pavlyuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zakharova E. V. *Otraslevaya instruktsiya "Metodika izmereniy udel'noy aktivnosti ugleroda-14 v grafitovykh blokakh radiometricheskim metodom"* [Industry instruction. Methodology Applied to Measure the Specific Activity of Carbon-14 in Graphite Blocks by Radiometric Method] OI 001.912-2020 (Certificate of Attestation No. 01.00044 / 4119-2020).
15. Pavlyuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zakharova E. V. *Otraslevaya instruktsiya "Metodika izmereniy udel'noy aktivnosti khloro-36 v grafitovykh blokakh radiometricheskim metodom"* [Industry instruction. Methodology Applied to Measure the Specific Activity of Chlorine-36 in Graphite Blocks by Radiometric Method] OI 001.911-2020 (Certificate of Attestation No. 01.00044 / 4120-2020).
16. Bepala E. V., Pavlyuk A. O., Kotlyarevsky S. G. O forme nakhozhdeniya i kharaktere svyazi ^{14}C v obluchennom grafite uran-grafitovykh yadernykh reaktorov [About Chemical Form and Binding Energy of ^{14}C in Irradiated Graphite of Uranium-Graphite Nuclear Reactors]. *Izvestiya vysshikh uchebnykh zavedeniy. Yadernaya energetika — Proceedings of Higher Educational Institutions. Nuclear Energy*, 2017, no. 4, pp. 116–126. DOI: 10.26583/npe.2017.4.11.
17. Pavlyuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Bepala E. V., Volkova A. G., Zakharova E. V. Analiz vozmozhnosti snizheniya potentsial'noy opasnosti grafitovykh radioaktivnykh otkhodov pri termicheskoy obrabotke [Evaluating the Opportunities for Reducing the Potential Hazard of Graphite Radioactive Waste During Its Heat Treatment]. *Izvestiya TPU. Inzhiniring georesursov — Georesource Engineering*, 2017, vol. 328, no. 8, pp. 24–32.
18. Pavlyuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Kan R. I., Volkova A. G., Zolotov D. A., Pakhnevich A. V., Zakharova E. V., Shiryaev A. A. Opredeleniye parametrov poristoy struktury obluchennogo grafita, vliyayushchikh na mekhanizmy vykhoda dolgozhivushchikh radionuklidov pri kontakte s zhidkimi sredami [Specifying the Parameters of Porous Irradiated Graphite Structure Affecting the Mechanisms of Long-lived Radionuclides Release Due to Their Interaction with Liquid Media]. *Radiokhimiya — Radiochemistry*, 2020, vol. 62, no. 6, pp. 526–535. DOI: 10.31857/S003383112006009X.
19. Pavliuk A. O., Kotlyarevsky S. G., Kan R. I., Gorshkov V. B., Maksimova I. M., Volkova A. G., Zakharova E. V., Stepanov A. V., Volkovich A. G., Simirsky Yu. N.,

Dushin V. N., Alekseev I. E., Merkulov V. G., Tchibisov E. V., Kabanov D. V. Fabrication and Calibration of New Carbon-14 Reference Standards Using Irradiated Graphite from Uranium–Graphite Reactors. *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research. Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2021, vol. 1003 (7), p. 165350. DOI: 10.1016/j.nima.2021.165350.

Information about the authors

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

Kotlyarevskij 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: info@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, Federal State Budgetary Institution of Science A. N. Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry of the Russian Academy of Sciences (31, Leninsky Av., Moscow, 119071, Russia), e-mail: anna agv@yandex.ru.

Zakharova Elena Vasil’evna, PhD, Head of the Laboratory, Federal State Budgetary Institution of Science A. N. Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry of the Russian Academy of Sciences (31, Leninsky Av., Moscow, 119071, Russia), e-mail: zakharova@ipc.rssi.ru.

Ilyukhina Maria Anatolievna, PhD, Head of the Laboratory of Nuclear Metrology, JSC “A. A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials” (5a, Rogova St., Moscow, 123060, Russia), e-mail: MAIlyukhina@bochvar.ru.

Gorshkov Vladimir Borisovich, Director of the Research Metrology Department, Chief Metrologist of the State Scientific and Research Center of the State Corporation “Rosatom”, JSC “A. A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials” (5a, Rogova St., Moscow, 123060, Russia), e-mail: VBGorshkov@bochvar.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 Manager of the Decommissioning department, 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., Ilyukhina M. A., Gorshkov V. B., Dorofeev A. N., Zinnurov B. S., Komarov E. A. Approaches to the Characterization of Graphite UGR Blocks Based on Beta-emitting ^{14}C and ^{36}Cl Radionuclides. Testing at RBMK-1000-type Reactors. *Radioactive Waste*, 2021, no. 2 (15), pp. 21–32. DOI: 10.25283/2587-9707-2021-2-21-32. (In Russian).