

В. О. Желтоножський¹, Д. Є. Мизніков¹, А. М. Саврасов^{1,*},
В. І. Слісєнко¹, М. Д. Бондарьков²

¹ Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ, Україна

² Державна науково-дослідна установа

«Чорнобильський центр з проблем ядерної безпеки, радіоактивних відходів та радіоекології»,
Славутич, Україна

*Відповідальний автор: asavrasov@kinr.kiev.ua

ВИМІРЮВАННЯ АКТИВНОСТІ ³⁶СІ В ГРАФІТІ З ТЕПЛОВОЇ КОЛОНИ 2-ГО БЛОКА ЧАЕС

Виміряно бета- та гамма-спектри зразків радіоактивного графіту з 2-го блока ЧАЕС, опроміненого гальмівними гамма-квантами з граничною енергією 18 МеВ. Використовуючи експериментальні та паспортні дані, визначено співвідношення мас хлору та кобальту. З отриманих даних та вимірної активності ⁶⁰Со в досліджуваних зразках розроблено метод визначення активності ³⁶Сі.

Ключові слова: середньозважені виходи, фотоактиваційний метод, гамма-спектрометрія, хлор, кобальт.

1. Вступ

Відповідно до вимог нормативних документів експлуатуюча організація повинна забезпечити захист персоналу, населення, навколишнього середовища та майбутніх поколінь від небезпечного впливу іонізуючих випромінювань на всіх етапах зняття з експлуатації ядерних установок. Тому завдання отримання достовірних даних про ізотопний склад та активності реакторних конструкцій є надзвичайно актуальним. Слід відзначити, що за різними розрахунковими оцінками і для різних часових інтервалів після зупинки блоків відсоток графітової кладки та графітових елементів каналів у загальному об'ємі радіоактивних відходів реактора може коливатися в межах до 80 %. При цьому, отримані розрахункові оцінки наведеної активності та їхня похибка в першу чергу визначаються неточністю задання вихідного матеріалу конструкцій та невизначеністю розрахунків густини потоку. У той же час саме графітові елементи реактора, мають найбільшу невизначеність вихідного ізотопного складу. Тому лише експериментальне визначення ізотопного складу та активності зразків графіту, які зазнали опромінення, можуть дати необхідну «точку відліку» та прив'язати до неї отримані розрахункові дані. Це дасть змогу ретроспективно скорелювати вихідний склад домішок та підвищити точність розрахункових оцінок активності в цілому по реактору.

У рамках даної роботи розроблялася нерадіохімічна методика з вимірювання ³⁶Сі. Для цього досліджувалися графітові елементи реактора великої потужності каналного 2-го енергоблока ЧАЕС.

Умови експлуатації реактора були такими: тривалість роботи становила приблизно 13 років, графіт знаходився в азотно-гелієвій атмосфері, мали місце інциденти, пов'язані з протіканнями в кладку водяного теплоносія. Технологічні канали, графітові елементи яких досліджувалися, мали енерговиділення, близьке до середнього (~ 7000 МВт·доба/канал). Після закінчення опромінення (03.08.1991 р.) зразки графіту знаходились у воді басейну витримки паливних касет (БВПК) за температури 40 - 60 °С до моменту їх вилучення. У результаті сформувався складне за вмістом та об'ємним розподіленням радіоактивне забруднення. При цьому можна виділити два основних джерела забруднення: активація домішок нейтронами та надходження радіонуклідів при інцидентах під час експлуатації реактора.

Не слід забувати також і про зовнішнє забруднення графіту радіонуклідами корозійного походження, які присутні у воді БВПК, або які потрапили у графіт під час операцій по його зняттю з паливних каналів, хоча останнє вважається малоімовірним. Кількісні оцінки в усіх цих випадках ускладнені, оскільки дані про домішки у графіті були неповні та неточні, а надходження радіонуклідів у результаті інцидентів і при подальшому зберіганні в БВПК носило випадковий характер. Тим не менш, основне надходження довгоживучих радіонуклідів пов'язане з процесами активації домішок, у тому числі адсорбованих у процесі експлуатації реактора і тому дане питання потребує окремого розгляду.

Домішки в реакторному графіті включають велику кількість (до 30) поширених у природі елементів з концентрацією 10^{-4} - 10^{-6} % за масою,

© Автор(и), 2025

Стаття опублікована ІЯД НАН України за умовами відкритого доступу за ліцензією [CC BY-NC 4.0](https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/)

багато з яких внаслідок (n, γ) -, (n, p) -, (n, α) -, $(n, 2n)$ -, (n, t) -реакцій утворюють довгоживучі радіонукліди. Поряд з цією групою радіонуклідів у графіті присутні актиноїди та продукти поділу.

Визначення вихідного складу домішок у графіті конкретного реактора є доволі складним завданням, яке неможливо вирішити без проведення спеціальних досліджень. Це пов'язано з тією обставиною, що вміст багатьох домішок у реакторному графіті не нормується і, відповідно, не контролюється в процесі його виготовлення, оскільки «ядерну чистоту» графіту визначають за сумарним поглинанням нейтронів. Унаслідок цього для різних партій графіту може бути значний розкид за складом домішок, що залежить від заводу-виробника, ступеню очищення сировини, технології очищення тощо. Тому інформація про склад та вміст домішок у реакторному графіті, яка є в технічній літературі, часто досить суперечлива.

Радіонукліди, що утворюються в конструкційних матеріалах умовно можна розділити на дві групи. У першій групі знаходяться радіонукліди, що розпадаються з випромінюванням гамма-квантів. Їхня реєстрація легко здійснюється за допомогою напівпровідникової гамма-спектроскопії. До другої групи відносяться радіонукліди, розпад яких супроводжується β^- - та електронним захопленням без випромінювання гамма-квантів. Реєстрація таких радіонуклідів є складною методичною проблемою, оскільки необхідно готувати тонкі ($\sim 0,1$ г/см²) зразки чи переводити ці зразки в рідкий розчин, для того щоб використати рідинну сцинтилометрію.

Одним з таких радіонуклідів є ³⁶Сl. Цей радіоізотоп утворюється в конструкційних елементах реактора зі стабільного нукліда ³⁵Сl.

Період напіврозпаду ³⁶Сl дорівнює 301000 років, розпад супроводжується β^- -випромінюванням з граничною енергією 710 кеВ. Стандартні для таких ізотопів радіохімічні методи визначення активності не можуть бути застосовані в масштабі сотень тон конструкційних матеріалів, оскільки є занадто складні та дорогі. У той же час фотоактиваційний метод дає змогу досліджувати зразки більшої маси, ніж радіохімічні методи, і потребує менших затрат ресурсів. Цей метод дає можливість визначити активність радіонукліда в зразку за активністю дочірнього ізотопу, що утворюється при опроміненні зразка пучком гальмівного випромінювання від прискорювача електронів внаслідок (γ, x) -реакцій. Активність дочірнього ізотопу визначається методом гамма-спектрометрії, після чого активність радіоізотопу, що досліджується, розраховується, виходячи з активності «ізоотопу-маркера»,

розпад якого супроводжується характерними гамма-лініями і присутність якого в зразку надійно фіксується до опромінення гальмівними фотонами.

Виходячи з вищевикладеного, метою даної роботи є визначення активності ³⁶Сl за допомогою фотоактиваційного методу. При цьому ця активність розраховується за допомогою активності «ізоотопу-маркера» ⁶⁰Со.

2. Методика і результати вимірювань

Для розрахунку активностей у конструкційних матеріалах АЕС, переважно, використовується формула:

$$A = N_A \sigma \phi (1 - \exp(-\lambda t_{\text{опр}})) \exp(-\lambda t_{\text{охол}}). \quad (1)$$

Тут N_A – число відповідних атомів у конструкційних матеріалах АЕС; σ – переріз активації тепловими нейтронами; ϕ – усереднена густина потоку теплових нейтронів, який опромінює конструкційні матеріали; $t_{\text{опр}}$ – інтегральна тривалість опромінення; $t_{\text{охол}}$ – тривалість витримки в перервах між опроміненням та вимірюванням; λ – стала радіоактивного розпаду ядра, активованого внаслідок (n, γ) -реакції.

В якості $t_{\text{опр}}$ використовуються величини тривалості роботи в ефективних добах, розраховані за відомими значеннями енергогенерації E (МВт·доба).

При розрахунку $t_{\text{охол}}$ усереднюються існуючі за рік величини сумарних простоїв реактора з даних про графіки навантажень блоків. Щільності потоків в основних вузлах опромінення вимірюються, проте очевидно, що внаслідок перерозсіяння нейтронів можливі значні варіації величин потоків. Ще більше невизначеностей існує при розрахунку мас опромінених матеріалів. Так для кобальту часто обмежуються тим, що його маса не повинна перевищувати 0,5 % загальної маси. Існують значні проблеми і при оцінці перерізів реакцій на теплових нейтронах.

Дані обставини призводять до того, що розраховані за формулою (1) активності розходяться з експериментальними значеннями на 1 - 2 порядки.

У конструкційних матеріалах основною гамма-активністю після зупинки реактора і протягом наступних 50 років є активність ⁶⁰Со. Вона легко вимірюється гамма-спектрометрами, зібраними на базі напівпровідникових детекторів, оскільки при розпаді ⁶⁰Со випромінюються гамма-кванти високої енергії (1173 та 1333 кеВ). Знаючи активність ⁶⁰Со та співвідношення досліджуваних матеріалів порівняно з домішками кобальту, можна розрахувати кількості радіоактивних нуклідів, які напрацьовуються в

(n, γ)-реакції. Для визначення співвідношення різних елементів у конструкційних матеріалах нами пропонується використовувати фотоактиваційну методику [1].

Для визначення активності ^{36}Cl нами проводилися дослідження елементного складу двох зразків графіту різної маси, які зазнали опромінення різними величинами потоків нейтронів. Ці зразки було відібрано на 2-му блоці ЧАЕС (далі зразок № 1 ($m = 9,2$ г) та зразок № 2 ($m = 0,46$ г)). При активації кобальту та хлору основний внесок дають теплові нейтрони. Внесками епітеплових і швидких нейтронів можна знехтувати і тому в подальших розрахунках ми будемо використовувати табличні значення перерізів саме для теплових нейтронів. Будемо розраховувати відношення активностей ^{36}Cl та ^{60}Co за формулою [2]:

$$\frac{A(^{36}\text{Cl})}{A(^{60}\text{Co})} = \frac{(1 - e^{-\lambda(^{36}\text{Cl})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{36}\text{Cl})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{35}\text{Cl}}^n N_{^{35}\text{Cl}}}{(1 - e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}} = \frac{(1 - e^{-\lambda(^{36}\text{Cl})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{36}\text{Cl})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{35}\text{Cl}}^n N_{^{35}\text{Cl}}}{(1 - e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}}, \quad (2)$$

де $A(^{36}\text{Cl})$ та $A(^{60}\text{Co})$ – активності ^{36}Cl та ^{60}Co відповідно, Бк; Φ_n – потік теплових нейтронів у реакторі, н/с; $\sigma_{^{35}\text{Cl}}^n$ та $\sigma_{^{59}\text{Co}}^n$ – табличні значення перерізів реакцій $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ та $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ відповідно, взяті з [3], б; $\lambda(^{36}\text{Cl}) = 0,693/T_{1/2}(^{36}\text{Cl})$ та $\lambda(^{60}\text{Co}) = 0,693/T_{1/2}(^{60}\text{Co})$ – сталі радіоактивного розпаду ^{36}Cl та ^{60}Co відповідно, с^{-1} ; $T_{1/2}(^{36}\text{Cl})$ та $T_{1/2}(^{60}\text{Co})$ – періоди напіврозпаду ^{36}Cl та ^{60}Co

відповідно, с; $N_{^{35}\text{Cl}}/N_{^{59}\text{Co}}$ – співвідношення між кількостями атомів ^{35}Cl та ^{59}Co ; $t_{\text{опр}}$, $t_{\text{охол}}$ – тривалості опромінення та охолодження відповідно. Оскільки для досліджуваних зразків графіту $t_{\text{опр}} = 13$ років, а $t_{\text{охол}} = 32$ роки, то формула (2) матиме такий вигляд:

$$\frac{A(^{36}\text{Cl})}{A(^{60}\text{Co})} \approx \frac{\lambda(^{36}\text{Cl})t_{\text{опр}}\sigma_{^{35}\text{Cl}}^n N_{^{35}\text{Cl}}}{(1 - e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}}, \quad (3)$$

У підсумковій формулі (3) усі фізичні величини (за винятком $N_{^{35}\text{Cl}}/N_{^{59}\text{Co}}$) для визначення активності ^{36}Cl легко отримуються, а активність ^{60}Co у зразках вимірюється до опромінення мішеней гальмівними гамма-квантами. Тому фотоактиваційна методику використовується для отримання співвідношення між кількостями атомів ^{35}Cl та ^{59}Co . Для цього на прискорювачі М-30 Інституту електронної фізики НАН України (м. Ужгород) [4, 5] пучком гальмівних гамма-квантів з граничною енергією 18 МеВ опромінювалися досліджувані зразки графіту. При цьому для отримання домішки хлору в зразках нами разом зі зразками опромінювалася мішень порошкоподібного хлориду кальцію.

Середній струм електронів становив 0,7 мкА, загальний їхній потік протягом опромінення дорівнював 2,1 мкА·год ($\sim 4,7 \cdot 10^{16}$ електронів). Розкид електронного пучка по енергії, що дорівнює 18 МеВ, не перевищував 0,25 %, і він повністю накривав гальмівну мішень, яка складалася з танталової прямокутної пластини розмірами $5,2 \times 4,6$ см та товщиною 1,05 мм. За нею на відстані 10 - 20 см кріпилися досліджувані мішені.

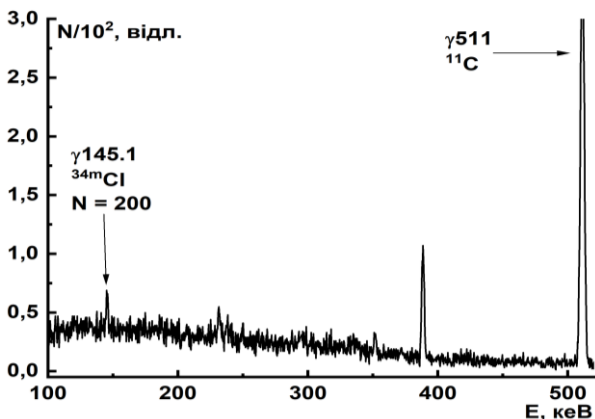


Рис. 1. Фрагмент гамма-спектра активованого зразка № 1.

Гамма-спектри опроміненого зразка № 1 графіту та хлориду кальцію, виміряні відразу після опромінення, наведено на рис. 1 і 2 відповідно.

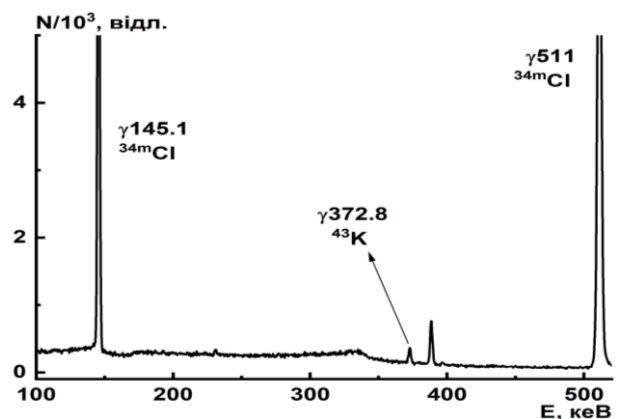


Рис. 2. Фрагмент гамма-спектра активованого хлориду кальцію.

Для визначення вмісту ^{35}Cl у графіті вимірювалося співвідношення інтенсивностей гамма-лінії з величиною енергії $\gamma 145,1$ кеВ – ^{34m}Cl

($T_{1/2} = 32$ хв) [3], який напрацьовується в реакції $^{35}\text{Cl}(\gamma, n)^{34\text{m}}\text{Cl}$ у досліджуваному зразку № 1 та в мішені хлориду кальцію. З цих даних вміст ^{35}Cl у графіті становив 20,0(24) атомів ^{35}Cl на 10^6 атомів графіту.

У свою чергу величина домішки кобальту в графіті була отримана з використанням паспортних даних та експериментальних перерізів реакції $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}$ і становила 21(3) атомів ^{59}Co на 10^9 атомів графіту. Отже відношення $N_{^{35}\text{Cl}} / N_{^{59}\text{Co}} = 963(18)$.

Фрагмент гамма-спектра активованого зразка № 2 показано на рис. 3. На ньому з гарною ста-

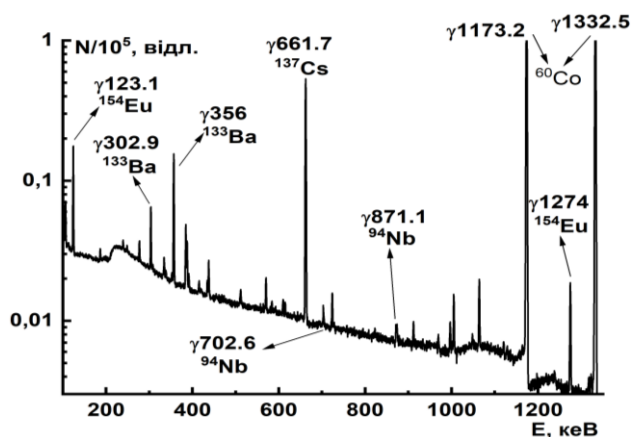


Рис. 3. Фрагмент гамма-спектра активованого зразка № 2.

тистикою спостерігаються піки, які супроводжують розпад ^{60}Co . З формули (3) було отримано, що активність ^{36}Cl у графіті, який перебував під дією інтенсивних нейтронних потоків, дорівнює 1020 ± 200 Бк/г.

Також було проведено вимірювання ^{14}C та ^{36}Cl на бета-спектрометрі (рис. 4) та отримано такі активності: ^{14}C – 4080 ± 400 Бк/г, ^{36}Cl – 990 ± 100 Бк/г. Як видно, узгодження доволі гарне з врахуванням того, що невизначеності вимірювань ^{14}C та ^{36}Cl при β -дослідженнях є не нижчими 10 %.

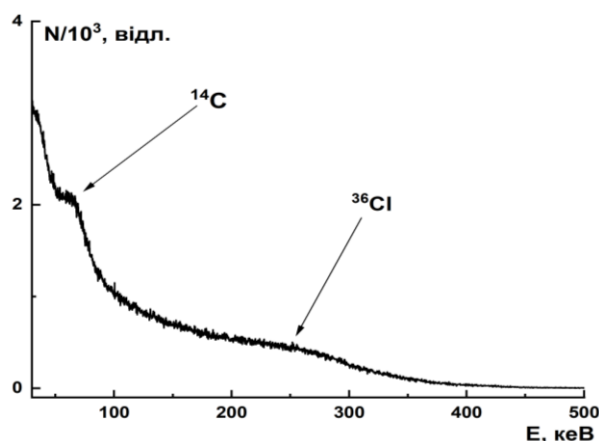


Рис. 4. Фрагмент бета-спектра активованого зразка № 2.

Довгоживучі активності в опромінену графіті

Радіонуклід	^{36}Cl	^{14}C	^{60}Co	^{94}Nb	^{133}Ba	^{137}Cs	^{154}Eu
Активність на 03.08.1991 р., Бк/г	1020(200)	4080(400)	24700(1200)	0,18(1)	16,8(8)	12,9(6)	34,5(17)
Активність на 01.10.2024 р., Бк/г	1020(200)	4080(400)	368(18)	0,18(1)	1,9(1)	6,0(3)	2,40(12)

В опромінену зразку № 2 розраховано також інші довгоживучі активності (див. рис. 3), величини яких наведено в таблиці (перераховані на момент зупинки 2-го блока (03.08.1991 р. та на сьогодні).

3. Висновки

З використанням фотоактиваційної методики, на гальмівному пучку мікротрона М-30 визначена активність ^{36}Cl , розпад якого не супроводжується випромінюванням гамма-квантів. У реакторному графіті, що перебував під впливом значних нейтронних потоків зареєстрована активність становить 1020 ± 200 Бк/г. Гранично допустима концентрація (ГДК) для радіонуклідів, як правило, знаходиться в діапазоні 1 - 10 Бк/г. Як видно, значне перевищення ГДК для ^{36}Cl в реакторному графіті потребує особ-

ливої уваги під час контролю радіоактивних матеріалів. У той же час слід відзначити, що на сьогодні внесок гамма-випромінювачів у загальну активність не перевищує 7 % і тому особливий контроль за їхнім вмістом при утилізації графіту не потрібен.

Розроблений фотоактиваційний метод визначення активності ^{36}Cl дає змогу значно спростити його ідентифікацію, контроль та паспортизацію в конструкційних матеріалах АЕС та різних видах радіоактивних відходів.

У зв'язку з великою масою опромінених конструкційних матеріалів та радіоактивних відходів, що утворюються на АЕС, створений метод більш ефективний порівняно з традиційними радіохімічними методами дослідження концентрації радіонуклідів, які потребують наявності спеціальних радіохімічних лабораторій.

Висловлюємо подяку персоналу мікротрона М-30 за проведений фотоактиваційний експеримент.

Робота виконана за фінансової підтримки

бюджетної програми «Підтримка розвитку пріоритетних напрямів наукових досліджень» (КПКВК 6541230) на 2023 - 2024 рр. та гранта МАГАТЕ № 28137.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ / REFERENCES

1. V.A. Zheltonozhsky et al. Determination of the long-lived ^{10}Be in construction materials of nuclear power plants using photoactivation method. *Journal of Environmental Radioactivity* 227 (2021) 106509.
2. В.О. Желтоножський та ін. Визначення вмісту ^{41}Ca в радіоактивних матеріалах АЕС. *Ядерна фізика та енергетика* 24(4) (2023) 293. / V.O. Zheltonozhskiy et al. Determination of ^{41}Ca content in NPP radioactive materials. *Nucl. Phys. At. Energy* 24(4) (2023) 293. (Ukr)
3. R.B. Firestone. *Table of Isotopes*. 8th edn. (New York: Wiley Interscience, 1999) 218 p.
4. M.I. Romanyuk et al. Microtron M-30 for radiation experiments: formation and control of irradiation fields. *Problems of Atomic Science and Technology* 3(139) (2022) 137.
5. М.І. Романюк та ін. Методи формування та контролю полів опромінення мікротрона М-30. *Журнал фізичних досліджень* 26(1) (2022) 1201. / M.I. Romanyuk et al. Methods of formation and control of radiation fields of M-30 microtron. *Journal of Physical Studies* 26(1) (2022) 1201. (Ukr)

V. O. Zheltonozhsky¹, D. E. Myznikov¹, A. M. Savrasov^{1,*}, V. I. Slisenko¹, M. D. Bondarkov²

¹ *Institute for Nuclear Research, National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine*

² *State Scientific and Research Institution*

“Chornobyl Centre for Nuclear Safety, Radioactive Waste, and Radioecology”, Slavutych, Ukraine

*Corresponding author: asavrasov@kinr.kiev.ua

**^{36}Cl ACTIVITY MEASUREMENT IN GRAPHITE
FROM THE THERMAL COLUMN OF THE 2nd UNIT OF ChNPP**

The beta- and gamma-spectra of samples of radioactive graphite were measured from the 2nd Unit of ChNPP irradiated by bremsstrahlung gamma-beam with an end-point energy of 18 MeV. Using experimental and passport data, the mass ratio of chlorine and cobalt was determined. From the obtained data and the measured activity of ^{60}Co in the studied samples, a method for determining the ^{36}Cl activity was developed.

Keywords: flux-weighted average yields, photoactivation method, gamma-spectrometry, chlorine, cobalt.

Надійшла / Received 04.12.2024