

**ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ,
МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ**

УДК 621.039.7

**ФОТОАКТИВАЦИОННЫЙ ПОДХОД К ОПРЕДЕЛЕНИЮ
ДОЛГОЖИВУЩИХ ИЗОТОПОВ НИКЕЛЯ В КОНСТРУКЦИОННЫХ
МАТЕРИАЛАХ АЭС**

© 2023 г. М. В. Желтоножская^{а,*}, А. П. Черняев^а,
Д. А. Юсюк^а, Ю. О. Балаба^а

^аМосковский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Физический факультет
Россия, 119991, ГСП-1, Москва, Ленинские горы, 1, стр. 2

*e-mail: nzhelton@yandex.ru

Поступила в редакцию 26.07.2022 г.

После доработки 26.08.2022 г.

Принята к публикации 27.09.2022 г.

Разработан фотоактивационный метод определения активности долгоживущих изотопов никеля по активности ^{60}Co в металлических конструкционных материалах активной зоны реакторов. Погрешность представленного метода составляет 5–10%, чувствительность 0.5 Бк/г при использовании полупроводниковых γ -спектрометров с детекторами из сверхчистого германия. Предлагаемый подход позволяет значительно упростить идентификацию, контроль и паспортизацию металлических конструкционных материалов на стадии снятия реактора с эксплуатации, а также существенно снизить стоимость этих работ по сравнению с радиохимическими методами.

DOI: 10.31857/S0032816223010317, EDN: PXENOW

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время около 200 промышленных и более 500 исследовательских реакторов останвлены и выведены или выводятся из эксплуатации. Самые первые атомные станции были рассчитаны на срок службы ~30 лет, однако после реконструкции срок эксплуатации некоторых из них продлевался еще на 5–10 лет. Проектный срок службы современных реакторных установок составляет от 40 до 60 лет.

Вывод из эксплуатации энергоблоков АЭС после выработки является важным и необходимым этапом их жизненного цикла [1–3] и предусматривает проведение комплекса мероприятий, как-то: удаление ядерного топлива, после чего исключается использование блока в качестве энергоисточника, а также немедленный демонтаж либо отсроченный демонтаж конструкций установки. В процессе эксплуатации реактора под воздействием облучения нейтронами активируются конструкционные материалы, теплоизоляция шахты, внутренние слои бетона. Кроме того, возможно осаждение радиоактивных продуктов коррозии и продуктов деления на поверхности оборудования технологических контуров и ограждающих строительных конструкций помещений, в которых размещено технологическое оборудование. Общее количество отходов различных материалов при выводе из эксплуатации любого реак-

тора может достигать сотен кубических метров. Нарботанные радионуклиды продолжают распадаться и после выключения установки и имеют широкий диапазон периодов полураспада.

Немедленный демонтаж позволяет вывести объект из-под регулирующего контроля в достаточно сжатые сроки после выгрузки ядерного топлива [4]. Окончательный демонтаж и дезактивация проводятся в срок от нескольких месяцев до 5 лет, в зависимости от объекта. Существенным преимуществом этого подхода является наличие на площадке персонала, знакомого со всеми аспектами эксплуатации реактора. Через десять лет после окончательной остановки промплощадка становится доступной для повторного использования.

Вариант безопасного хранения или отсроченного демонтажа откладывает окончательную разборку конструкций реактора на более длительный период, обычно порядка 40–60 лет. Установку переводят в режим безопасного хранения до тех пор, пока после распада остаточной радиоактивности не будут проведены окончательные работы по демонтажу и дезактивации. Фактически этот вариант предусматривает меньший риск воздействия как на персонал, осуществляющий вывод из эксплуатации, так и на население.

При реализации любой из двух стратегий рано или поздно оборудование, конструкции, системы и элементы, содержащие радиоактивные матери-

алы, должны быть вывезены и/или дезактивированы до уровня радиоактивного фона, при котором установка может быть освобождена от регулирующего контроля. К особенностям радиоактивных отходов (РАО), образующихся при штатной эксплуатации реакторов, относятся: новая массовая и изотопная структура, возникшая за счет активации конструкционных и строительных материалов; наличие радионуклидов с очень длительными периодами полураспадов; присутствие большого количества бета- и рентгеновских излучателей. Тем не менее после соответствующей переработки значительную часть облученных конструкционных материалов возможно повторно использовать. Однако, учитывая огромный массив конструкций реактора, только радиохимическими методами весьма затруднительно провести тщательную характеризацию и инвентаризацию накопленных в них радионуклидов.

Никель широко используется в жаропрочных нержавеющей сталях и сплавах конструкционных материалов реакторных установок АЭС [5–8], и его содержание в них составляет в среднем ~8–10% от общей массы, но может достигать и 45–72% (например, при использовании никелевых сплавов инконель и хастеллой, обладающих высокой прочностью и хорошей коррозионной стойкостью при повышенных температурах) [9]. На фоне общей массы конструкционных материалов энергоблока масса никеля может составлять десятки тонн. Природный никель состоит из пяти изотопов: ^{58}Ni (68.3%), ^{60}Ni (26.1%), ^{61}Ni (1.1%), ^{62}Ni (3.6%), ^{64}Ni (0.9%). При штатной эксплуатации реактора в стальных конструкционных материалах из природного никеля нарабатываются долгоживущие радиоизотопы ^{59}Ni ($T_{1/2} = 7.6 \cdot 10^4$ лет) и ^{63}Ni ($T_{1/2} = 10^2$ лет). ^{63}Ni является чистым β -излучателем, в то время как ^{59}Ni распадается путем электронного захвата с испусканием характеристического рентгеновского излучения очень низкой энергии, что делает определение их активности в конструкционных материалах АЭС современными методами неразрушающего анализа весьма затруднительным, а радиохимическими — ввиду огромной массы конструкционных материалов и РАО АЭС — крайне дорогостоящим и длительным по времени.

Мы предлагаем определять активность нарабатываемых радиоизотопов никеля в конструкционных материалах АЭС по активности кобальта ^{60}Co с периодом полураспада 5.27 лет. Природный кобальт состоит из ^{59}Co и неразрывно связан с никелем, так как является примесью никелевых руд. Для сталей, используемых в конструкционных материалах АЭС, примесь кобальта не должна превышать 0.5% [9]. Однако ввиду очень большого сечения захвата тепловых нейтронов из ^{59}Co в (n, γ) -реакции нарабатывается ^{60}Co , активность

которого легко идентифицируется по γ -линиям 1173 и 1333 кэВ во всех облученных конструкционных материалах [10].

Серии расчетов, проведенных для реакторов различных типов [11, 12], показали, что большая часть накопленных продуктов активации находится в кожухе активной зоны и лишь несколько радиоизотопов преобладают над общим уровнем активности. Было установлено, что ^{60}Co доминирует в общей активности от 5 до ~20 лет после остановки реактора, а в дозе γ -излучения он будет преобладать на протяжении до ~100 лет. Изотопы никеля будут преобладать в общей активности примерно через 20 лет. Аналогичная картина получена и для стенок корпусов реакторов, но с меньшими значениями активностей радиоизотопов кобальта и никеля.

Таким образом, на стадии снятия реактора с эксплуатации, зная активность ^{60}Co , можно оценить активность долгоживущих изотопов никеля, нарабатываемую в (n, γ) -реакциях в стальных конструкционных материалах за время работы реактора.

ОПИСАНИЕ МЕТОДА

Для расчета наработки определенной активности в конструкционных материалах АЭС, как правило, используется выражение:

$$A = N_A \sigma \Phi (1 - e^{-\lambda t_{\text{обл}}}) e^{-\lambda t_n}, \quad (1)$$

где A — активность образовавшегося в результате облучения потоком нейтронов радионуклида; N_A — число исходных атомов в конструкционных материалах АЭС; σ — сечение активации тепловыми нейтронами; Φ — усредненная плотность потока тепловых нейтронов, облучающего конструкционные материалы; λ — постоянная распада образовавшегося радионуклида; $t_{\text{обл}}$ — интегральная продолжительность облучения; t_n — время паузы в перерывах между облучениями.

В качестве $t_{\text{обл}}$ используются значения продолжительности работы в эффективных сутках, определенных по известным значениям энерговыработки, измеряемой в мегаваттах-сутки. Для времени t_n применяется усредненное за год значение суммарных простоев реактора, согласно графику нагрузки блока. Плотность потока нейтронов в основных узлах облучения обычно измеряется, однако, очевидно, из-за перерассеяния нейтронов возможны различные вариации потоков. Отдельной проблемой является корректная оценка сечения нейтронов. В тепловых реакторах “работаю” нейтроны с энергией ~2 эВ, что больше, чем энергия “стандартизированных” тепловых нейтронов (0.025 эВ), для которых промеряны сечения (n, γ) -реакций. Все это приводит к тому, что теоретические расчеты нарабатываемой

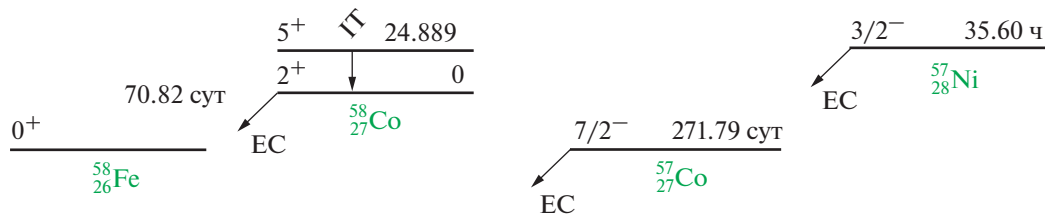


Рис. 1. Схемы распада ^{58}Co и ^{57}Ni .

активности, проведенные по формуле (1), расходятся с реально измеренными значениями на 1–2 порядка.

Для расчета активности долгоживущих изотопов никеля относительно активности ^{60}Co мы предлагаем использовать отношение активностей ^{59}Ni и ^{60}Co , которые нарабатываются при работе реактора в (n, γ) -реакции на тепловых нейтронах. Таким образом, из формулы (1) получаем:

$$\frac{A_{^{59}\text{Ni}}}{A_{^{60}\text{Co}}} = \frac{\Phi N_{^{58}\text{Ni}} \sigma_{^{58}\text{Ni}} (1 - e^{-\lambda_{^{59}\text{Ni}} t_{\text{обл}}}) e^{-\lambda_{^{59}\text{Ni}} t_{\text{п}}}}{\Phi N_{^{59}\text{Co}} \sigma_{^{59}\text{Co}} (1 - e^{-\lambda_{^{59}\text{Co}} t_{\text{обл}}}) e^{-\lambda_{^{59}\text{Co}} t_{\text{п}}}}, \quad (2)$$

где $N_{^{58}\text{Ni}}, N_{^{59}\text{Co}}$ — количество исходных атомов ^{58}Ni и ^{59}Co в конструкционных материалах из нержавеющей стали; $\sigma_{^{58}\text{Ni}}, \sigma_{^{59}\text{Co}}$ — сечения активации ^{58}Ni и ^{59}Co тепловыми нейтронами; $\lambda_{^{58}\text{Ni}}, \lambda_{^{59}\text{Co}}$ — постоянные распада ^{59}Ni и ^{60}Co .

При относительных расчетах активности потоки нейтронов сокращаются. Временной множитель с учетом небольшого периода полураспада ^{60}Co и очень большого периода полураспада ^{59}Ni может быть упрощен. Так как в среднем реактор работает около 30 лет, через ~ 10 лет работы любого реактора (что соответствует удвоенному периоду полураспада ^{60}Co) активация кобальта выйдет на насыщение. Это означает, что количество распадающихся ядер будет равно количеству ядер, появляющихся в результате ядерных реакций. С учетом этого временная экспонента будет стремиться к единице на временах ≥ 10 лет. Период полураспада ^{59}Ni очень велик по сравнению как с эксплуатационным временем работы реактора, так и с временами остановки реактора, что позволяет нам разложить в ряд Тейлора по малому параметру $t/T_{1/2}$ все члены уравнения, содержащие период полураспада ^{59}Ni . В результате мы получим линейную зависимость от времени:

$$A_{^{59}\text{Ni}} = A_{^{60}\text{Co}} X \frac{\sigma_{^{58}\text{Ni}} \lambda_{^{59}\text{Ni}} t_{\text{обл}}}{\sigma_{^{59}\text{Co}} e^{-\lambda_{^{60}\text{Co}} t_{\text{п}}}}, \quad (3)$$

где $X = N_{^{58}\text{Ni}}/N_{^{59}\text{Co}}$ — неизвестное первоначальное отношение ядер ^{58}Ni и ^{59}Co в конструкцион-

ных материалах до облучения в реакторной установке.

Оценку этого отношения мы предлагаем проводить с помощью γ -активационного анализа. При таком подходе нам не нужно отдельно оценивать первоначальное количество ядер ^{58}Ni и ^{59}Co , что значительно сокращает время анализа.

Мы предлагаем облучать образцы стальных конструкционных материалов, активированных при штатной эксплуатации реактора, на ускорителе электронов и использовать реакции $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$ и $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}$ для расчета неизвестного первоначального отношения ядер ^{58}Ni и ^{59}Co . Эти реакции приводят к наработке ^{57}Ni ($T_{1/2} = 35.6$ ч) и ^{58}Co ($T_{1/2} = 70.8$ сут), которые можно легко определять по γ -лучам с энергиями 1377 кэВ ^{57}Ni и 811 кэВ ^{58}Co (рис. 1). Важно отметить, что γ -переходы, характеризующие распад этих радионуклидов, находятся в области 800–1500 кэВ. В этой области энергий с использованием полупроводниковых спектрометров γ -кванты измеряются с высокой точностью, погрешность составляет менее 2%.

После облучения образцов на ускорителе электронов по аналогии с (1) можно оценить соотношение наработанных в образцах активностей как:

$$\begin{aligned} \frac{A_{^{57}\text{Ni}}}{A_{^{58}\text{Co}}} &= \frac{\Phi_{\gamma} Y_{^{58}\text{Ni}} N_{^{58}\text{Ni}} (1 - e^{-\lambda_{^{57}\text{Ni}} t_{\text{обл}}^{\gamma}}) e^{-\lambda_{^{57}\text{Ni}} t_{\text{п}}^{\gamma}}}{\Phi_{\gamma} Y_{^{59}\text{Co}} N_{^{59}\text{Co}} (1 - e^{-\lambda_{^{58}\text{Co}} t_{\text{обл}}^{\gamma}}) e^{-\lambda_{^{58}\text{Co}} t_{\text{п}}^{\gamma}}} = \\ &= X \frac{Y_{^{58}\text{Ni}} (1 - e^{-\lambda_{^{57}\text{Ni}} t_{\text{обл}}^{\gamma}}) e^{-\lambda_{^{57}\text{Ni}} t_{\text{п}}^{\gamma}}}{Y_{^{59}\text{Co}} (1 - e^{-\lambda_{^{58}\text{Co}} t_{\text{обл}}^{\gamma}}) e^{-\lambda_{^{58}\text{Co}} t_{\text{п}}^{\gamma}}}, \end{aligned} \quad (4)$$

где Φ_{γ} — интегральный поток тормозных γ -квантов; $N_{^{58}\text{Ni}}, N_{^{59}\text{Co}}$ — количество исходных атомов ^{58}Ni и ^{59}Co в конструкционных материалах до активации на ускорителе; $X = N_{^{58}\text{Ni}}/N_{^{59}\text{Co}}$ — неизвестное первоначальное отношение ядер ^{58}Ni и ^{59}Co в конструкционных материалах до облучения в реакторной установке; $Y_{^{58}\text{Ni}}, Y_{^{59}\text{Co}}$ — средневзвешенные выходы (γ, n) -реакций на ^{58}Ni и ^{59}Co ;

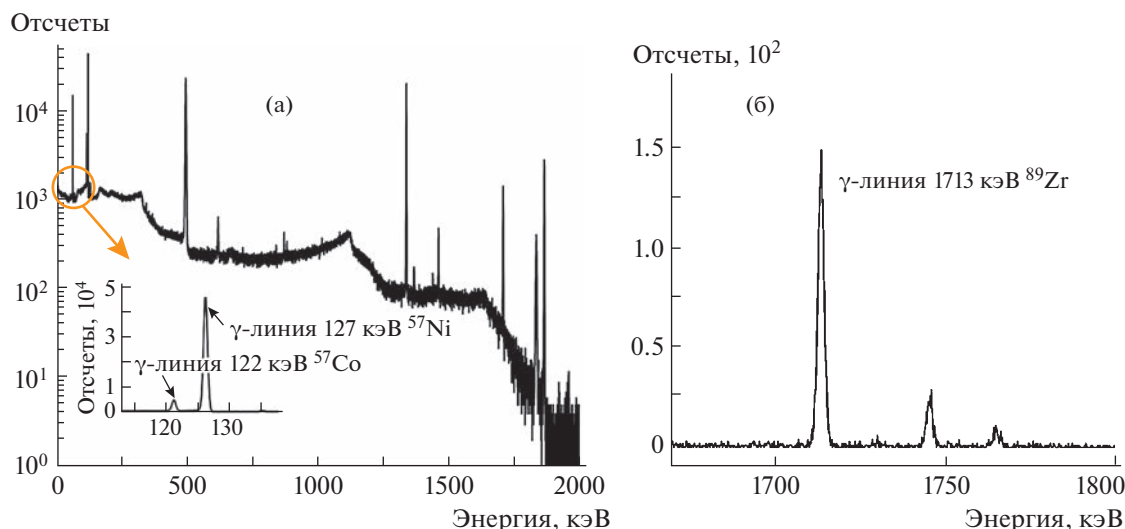


Рис. 2. Фрагмент спектра облученной мишени естественного никеля (а) и естественного циркония (б).

$\lambda_{^{58}\text{Ni}}, \lambda_{^{59}\text{Co}}$ — постоянные распада ^{57}Ni и ^{58}Co ; $t_{\text{обл}}^y$ и $t_{\text{п}}^y$ — время работы ускорителя и время между выключением ускорителя и измерениями на γ -спектрометре соответственно.

Для получения средневзвешенных выходов (γ, n) - и (γ, p) -реакций на ^{58}Ni и (γ, n) -реакций на ^{59}Co мы провели облучение мишеней из никеля и кобальта естественного изотопного состава. Наши исследования проводились методом наведенной активности на тормозных γ -квантах для пучков электронов 20 МэВ. Продолжительность облучения образцов составила 30 мин. В эксперименте облучались объемные мишени из металлического никеля и циркония (рис. 2). Размеры объемных мишеней составляли $1 \times 1 \times 1 \text{ см}^3$. Наведенную активность измеряли γ -спектрометрами на основе HPGe-детекторов с эффективностью регистрации 15–40% по сравнению с NaI(Tl)-детектором размерами 3×3 " и энергетическим разрешением 1.8–2 кэВ на γ -линиях ^{60}Co . Обработка γ -спектров проводилась с помощью программы Winspectrum [13]. Эффективность регистрации γ -квантов распада определялась с помощью объемного смешанного калибровочного источника.

Для определения средневзвешенных выходов реакций $\langle Y \rangle$ нужно знать потоки тормозных γ -квантов на мишенях. Для расчета потока тормозных γ -квантов мы обычно используем хорошо изученную ядерную реакцию на тантале [14], однако в этот раз использовалась реакция $^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$.

Для оценки потока определялись интенсивность γ -линии 1713 кэВ, сопровождающей распад ^{89}Zr , и средневзвешенный выход реакции $^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$.

Выбор циркония в качестве монитора для расчета средневзвешенного выхода (γ, p) -реакции на никеле был связан с тем, что пороги (γ, n) -реакции на цирконии и (γ, n) -реакции на никеле совпадают (12.2 МэВ и 12 МэВ), а γ -переходы, сопутствующие распаду ^{89}Zr и ^{57}Ni , находятся в одной энергетической области (1713 кэВ для циркония и 1757 кэВ для никеля, см. рис. 2). Такая близость по энергии γ -переходов при исследуемой реакции и мониторинг минимизирует наши ошибки.

Средневзвешенный выход $^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$ -реакции определялся в результате свертки табличных значений сечений этой реакции для монохроматических γ -квантов с шагом 0.5 МэВ с относительными величинами смоделированного в Geant4 [15] спектра тормозных γ -квантов:

$$Y_{\text{Zr}}^{\text{cp}} = \frac{\sum_{i=1}^N \sigma_i \varphi_i}{\sum_{i=1}^N \varphi_i}. \quad (5)$$

Табличные значения сечений реакции $^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$ для монохроматических γ -квантов были взяты из работы [16]. Из спектра тормозных γ -квантов (рис. 3) были взяты относительные величины смоделированного потока тормозных γ -квантов, приведенные к пороговым величинам реакции на мониторе.

После этого рассчитывались потоки тормозных γ -квантов по формуле, [18]:

$$\Phi_{\gamma}[\gamma/(\text{см}^2 \cdot \text{с})] = \frac{S \lambda A}{(1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}}) e^{-\lambda t_{\text{p}}} (1 - e^{-\lambda t_{\text{m}}}) \xi k \alpha Y_{\text{Zr}}^{\text{cp}} N_A m p}, \quad (6)$$

где S — площади фотопиков, которые сопровождают распад ^{89}Zr ; α — квантовые выходы γ -квантов при распаде ^{89}Zr ; ξ — эффективность регистрации γ -квантов; $t_{\text{обл}}$, $t_{\text{охл}}$, $t_{\text{изм}}$, с — время облучения, охлаждения и измерения соответственно; k — коэффициент самопоглощения γ -квантов распада; p — абсолютное содержание ^{90}Zr в естественной смеси (51/5%); $N_A = 6.02 \cdot 10^{23}$ — число

Авогадро; $Y_{\text{Zr}}^{\text{cp}}$ — средневзвешенный выход реакции $^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$, рассчитанный согласно (1); m , г/см² — масса мишени, нормированная на единицу площади; $A = 90$ а.о.м. — массовое число атомов циркония; λ , с⁻¹ — постоянная распада. Величины λ , k , α , A , p берутся из [19], S — из экспериментальных γ -спектров, а ξ — из калибровочных кривых, дополнительно проверенных с помощью моделирования в Geant4.

Далее по формуле (2), используя эти потоки и поправки на разницу энергетических порогов, рассчитывались средневзвешенные выходы изученных реакций на никеле и кобальте. Полученные результаты приведены в табл. 1.

Статистическая погрешность для расчетов реакции $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$, $^{58}\text{Ni}(\gamma, p)^{57}\text{Co}$, $^{62}\text{Ni}(\gamma, p)^{61}\text{Co}$ ввиду использования в качестве монитора циркония составила менее 5%. В то же время моделирование спектра тормозных γ -квантов — достаточно сложная задача, так как при облучении использовались разные по размерам и массам сборки. Наша оценка погрешности за счет формы тормозного γ -спектра составила около 5%. Для оценки систематической погрешности измерения проводились на разных спектрометрах, в табл. 1 указана общая погрешность.

Отдельно мы уделили внимание корректной оценке сечения нейтронов, используемого в формуле (1). Как известно, в энергетическом спектре нейтронов теплового реактора выделяют три составляющие: быстрые нейтроны или нейтроны деления, промежуточные или замедляющиеся нейтроны и собственно тепловые нейтроны, которые находятся в термодинамическом равновесии с окружающей средой.

Распределение быстрых нейтронов описывается спектром Уатта [23]:

$$N(E) = Ce^{-E} \frac{e^{\sqrt{2E}} - e^{-\sqrt{2E}}}{2}, \quad (7)$$

где $N(E)$ — число нейтронов с энергией E ; постоянная C характеризует тип делящегося материала (для ^{235}U $C = 0.48$). Для быстрых нейтронов тепловых реакторов средняя энергия составляет ~2 МэВ.

При взаимодействии с окружающей средой быстрые нейтроны замедляются до энергий промежуточных (резонансных) нейтронов. Эта часть спектра описывается спектром Ферми [23]:

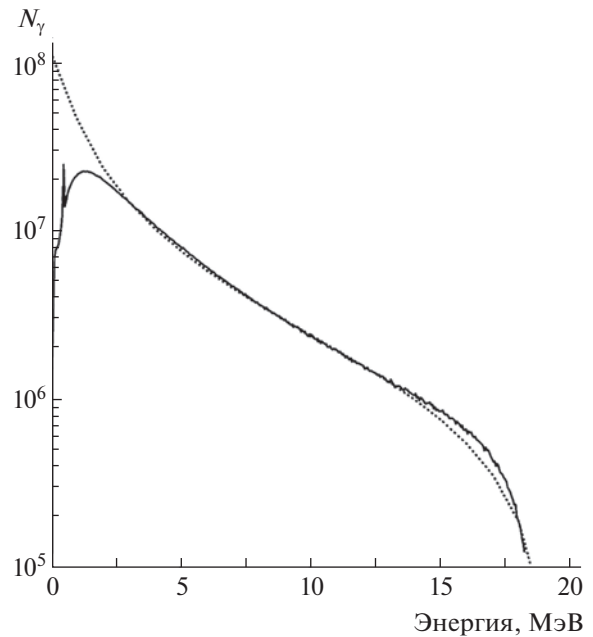


Рис. 3. Спектр, смоделированный с использованием программного кода Geant 4 (пунктирная линия) и из работы [17] (сплошная линия).

$$\Phi(E) \sim \frac{1}{E}. \quad (8)$$

При этом в связи с перерасеянием нейтронов спектр промежуточных нейтронов осложнен ярко выраженной резонансной структурой, особенно в области энергий ближе к тепловой, что хорошо видно, например, на нормированном спектре потока нейтронов реактора РБМК-1500 из работы [24].

Энергетическое распределение собственно тепловых нейтронов описывается спектром Максвелла [23]:

$$\Phi(E) \sim e^{-E} \sqrt{E}. \quad (9)$$

Наиболее вероятная энергия тепловых нейтронов описывается как

$$E \approx kT, \quad (10)$$

где k — постоянная Больцмана, а T — температура окружающей среды.

Таблица 1. Средневзвешенные выходы исследованных фотоядерных реакций

Реакция	$\langle Y \rangle_{\text{эксп}}$, мб	$\langle Y \rangle_{\text{лит}}$, мб
$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	11.2 ± 0.6	10.8 ± 1.0 [20]
$^{58}\text{Ni}(\gamma, p)^{57}\text{Co}$	12.7 ± 0.6	5.3 ± 0.6 [21]
$^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{60}\text{Co}$	21.5(12)	21.3 [22]

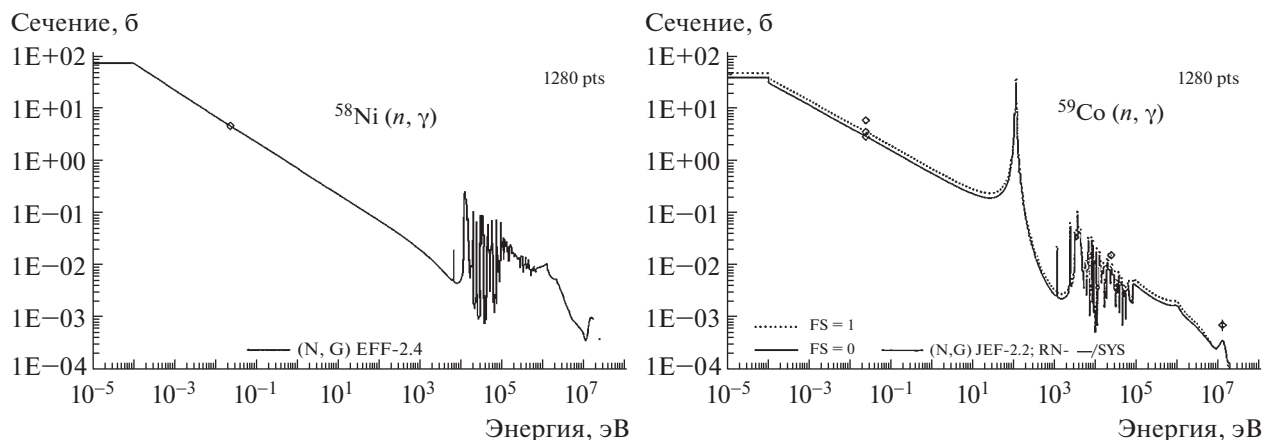


Рис. 4. Сечения (n, γ) -реакций для ^{58}Ni и ^{59}Co [25].

Однако в результате интенсивного поглощения и утечки тепловых нейтронов в реакторе полное тепловое равновесие этих нейтронов со средой не устанавливается, и реальный спектр реакторных тепловых нейтронов сдвинут относительно спектра стандартизованных тепловых нейтронов в сторону более высоких энергий на ~ 2 эВ, а сечение эпитепловых нейтронов описывается выражением:

$$\sigma_{\text{эпит}} = \frac{\sigma_t}{V}, \quad (11)$$

где σ_t — сечение стандартизованных тепловых нейтронов с энергией 0.025 эВ, V — скорость нейтронов.

Так как табличные значения сечений (n, γ) -реакций получены для стандартизованных тепловых нейтронов, а реальный спектр реакторных тепловых нейтронов сдвинут относительно спектра стандартизованных тепловых нейтронов в сторону более высоких энергий на ~ 2 эВ, мы оценили поправку из данных о сечении захвата для естественного никеля и кобальта и спектров тепловых реакторов. На рис. 4 приведены сечения захвата для естественного никеля и кобальта. Как видно, из-за сильного резонанса функция возбуждения кобальта отличается от функции возбуждения никеля. Но в итоговых расчетах эти отличия дают небольшой поправочный коэффициент, который может изменить конечный результат не более чем на 5%. Кроме того, учет вклада времени t_n для ^{60}Co в формуле (1) фактически нивелирует и эту поправку.

Таким образом, получив средневзвешенные выходы (γ, n) - и (γ, p) -реакций, можно рассчитать неизвестное первоначальное отношение ядер ^{58}Ni и ^{59}Co в конструкционных материалах до облучения в реакторной установке и из формулы (3) получить активность ^{59}Ni из активности ^{60}Co в активированных стальных конструкционных матери-

алах реактора. То есть для определения соотношения ^{58}Ni и ^{59}Co в образцах металлических конструкционных материалов, облученных на ускорителе электронов, необходимо измерить активность ^{57}Co ($T_{1/2} = 272$ дня), который мог быть наработан либо в (γ, p) -реакции на изотопе ^{58}Ni , либо в (γ, n) -реакции на изотопе ^{58}Co ($T_{1/2} = 71$ день), наработанном в свою очередь в (γ, n) -реакции на изотопе ^{59}Co . Затем по формуле (3), с учетом соотношения изотопов никеля в естественной изотопной смеси, мы можем легко рассчитать активность ^{59}Ni и ^{63}Ni относительно активности ^{60}Co ($T_{1/2} = 5.27$ лет), наработанного в (n, γ) -реакции за время эксплуатации реактора.

ОБСУЖДЕНИЕ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Апробация предлагаемого метода проводилась на образцах массой 50 мг, отобранных в местах повышенного нейтронного фона (жалюзи системы вентиляции) и из корпуса реактора РБМК-1000. Облучение образцов проводилось на ускорителе электронов с граничной энергией тормозных γ -квантов 40 МэВ (ОИЯИ, Дубна). Спектр одного из облученных образцов приведен на рис. 5. Соотношение никеля и кобальта в образцах определяли по γ -линиям 136 кэВ ^{57}Co ($T_{1/2} = 272$ дня) и 811 кэВ ^{58}Co ($T_{1/2} = 71$ день).

Используя приведенные выше рассуждения и данные была рассчитана активность ^{63}Ni по сравнению с активностью ^{60}Co . В табл. 2 приведены полученные результаты для облученных образцов конструкционных материалов.

Для валидации полученных данных о первоначальном отношении ядер ^{58}Ni и ^{59}Co в исследуемых фрагментах облученных конструкционных материалов реактора РБМК нами проведены ис-

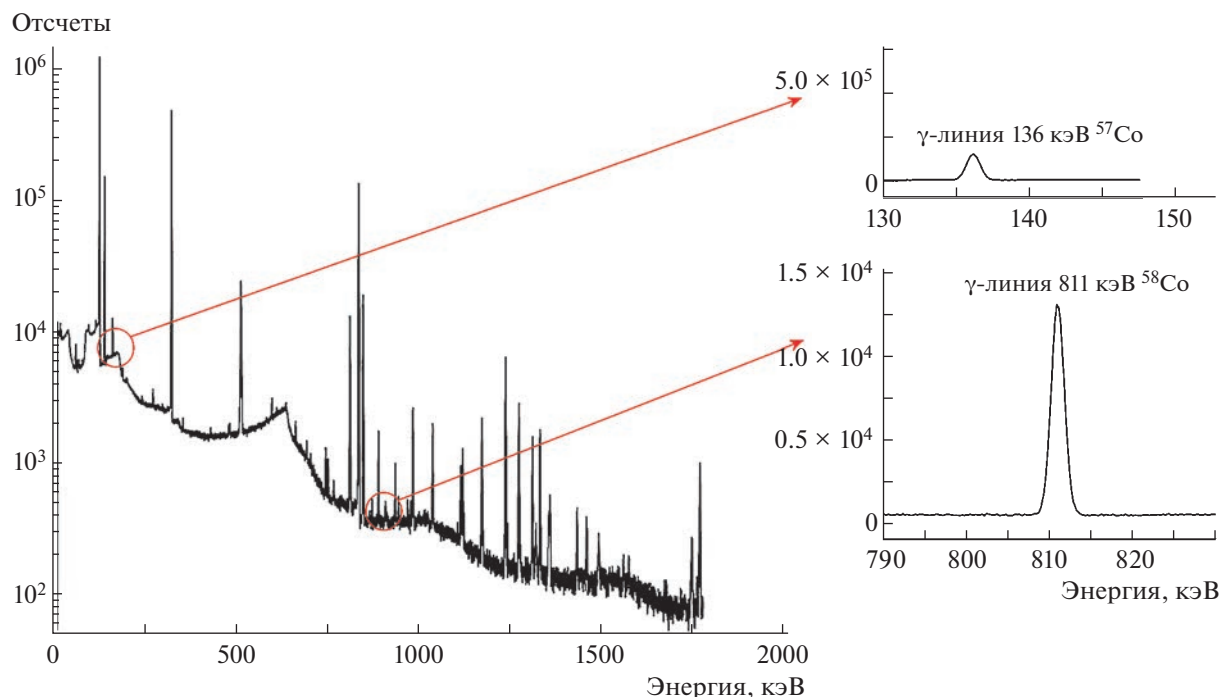


Рис. 5. Гамма-спектр облученного образца жалюзи системы вентиляции реактора РБМК-1000.

следования элементного состава образцов методом растровой электронной микроскопии с рентгеноспектральным микроанализом на электронном микроскопе JEOL JSM-IT500 с энергодисперсионным спектрометром Oxford X-MaxN (рис. 6). В результате было получено соотношение $\text{Co/Ni} = 0.029(2)$. Как видно, эта величина находится в хорошем согласии с нашими результатами (см. табл. 2).

Для контроля полученных результатов об активности долгоживущих радиоизотопов никеля были проведены радиохимические исследования содержания ^{59}Ni и ^{63}Ni в исследованных образцах с помощью высокомолекулярных смол (см. табл. 2). Можно отметить, что при использовании полупроводниковой γ -спектрометрии чувствительность разработанного метода гораздо лучше радиохимического метода, кроме того, наблюдается

хорошее согласие радиохимических и спектроскопических измерений.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложенный в данной статье фотоактивационный метод определения активности долгоживущих изотопов никеля позволяет значительно упростить их идентификацию, контроль и паспортизацию в стальных конструкционных материалах АЭС и в различных видах радиоактивных отходов.

Разработанный метод является более эффективным по сравнению с традиционными радиохимическими методами для проведения масштабных измерений облученных конструкционных материалов и огромной массы радиоактивных отходов, образующихся на АЭС.

Таблица 2. Активность долгоживущих изотопов никеля в облученных конструкционных материалах реактора РБМК-1000, полученная разработанным и радиохимическими методами

№	$A(^{57}\text{Co})/A(^{58}\text{Co})$	$A(^{60}\text{Co})$, Бк/г	Co/Ni	$A(^{59}\text{Ni})$, Бк/г		$A(^{63}\text{Ni})$, Бк/г	
				Разработанный метод	Радиохимия	Разработанный метод	Радиохимия
1	15.9	1.81 ± 0.14	0.035	0.017 ± 0.002	<0.04	1.6 ± 0.2	<2
2	16.4	1.55 ± 0.12	0.034	0.017 ± 0.002	<0.04	1.5 ± 0.2	4.1
3	4.4	5.80 ± 0.46	0.12	0.016 ± 0.002	<0.04	1.4 ± 0.2	<2
4	18.0	42.3 ± 2.1	0.031	0.48 ± 0.05	0.71	41.3 ± 4.1	43.2

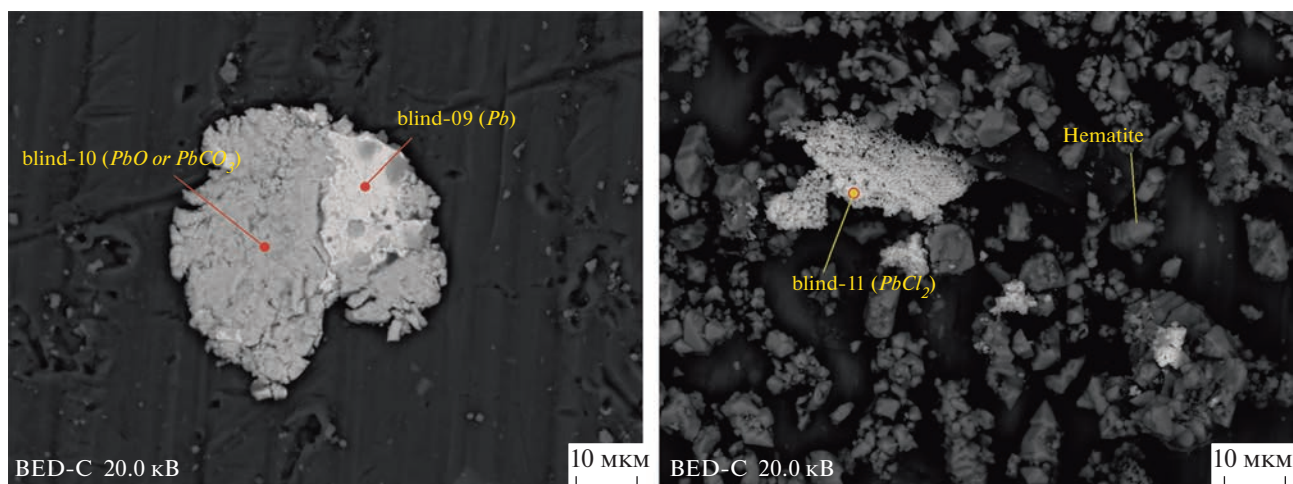


Рис. 6. Изображения фрагментов жалюзи системы вентиляции активной зоны реактора РБМК-1000, полученные на электронном микроскопе JEOL JSM-IT500.

Погрешность расчета метода составляет 5–10%, его чувствительность 0.5 Бк/г при использовании полупроводниковой γ -спектрометрии. Отметим, что предельно допустимая концентрация для β -излучателей составляет ~500 Бк/г, т.е. предлагаемый метод имеет большой запас чувствительности.

При использовании фотоактивационных методов допустимая масса исследуемых образцов составляет несколько миллиграмм, тогда как с использованием ускорителей электронов можно облучать мишени массой 5–10 г. Таким образом, с использованием описанного метода можно облучать одновременно до нескольких сотен образцов конструкционных материалов или радиоактивных отходов, что значительно снижает стоимость работ по сравнению с традиционными радиохимическими методами.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 22-29-01013).

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы выражают благодарность Власовой И.Э., старшему научному сотруднику кафедры радиохимии МГУ им. М.В. Ломоносова за оказанную помощь при проведении анализа элементного состава образцов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Общие положения безопасности атомных станций. НП-001-15. Ростехнадзор, 2015.
- IAEA Safety Standards. Safety of Nuclear Power Plants Design. Specific Safety Requirements. No SSR-2/1 (Rev.1). Vienna: IAEA, 2016.
- The Interface between Safety and Security at Nuclear Power Plants. INSAG-24. A Report by the International Nuclear Safety Group. Vienna: IAEA, 2010.
- Вывод из эксплуатации установок. Общие требования безопасности. Серия норм безопасности МАГАТЭ GSR Part 6. STI/PUB/1652: 978-92-0-404515-4. Вена: МАГАТЭ, 2015.
- Беляев Л.А., Воробьев А.В., Гаврилов П.М., Гвоздяков Д.В., Губин В.Е. Топливо и материалы ядерной техники. Уч. пособие. Томск: Изд-во ТПУ, 2010.
- Design of Instrumentation and Control Systems for Nuclear Power Plants. Specific Safety Guide. IAEA Safety Standards Series No. SSG-39. STI/PUB/1694: 978-92-0-102815-0. Vienna: IAEA, 2016.
- Construction for Nuclear Installations. Specific Safety Guide. IAEA Safety Standards Series No. SSG-38. STI/PUB/1693: 978-92-0-102715-3. Vienna: IAEA, 2015.
- Design of the Reactor Core for Nuclear Power Plants. Safety Guide. IAEA Safety Standards Series No. NS-G-1.12. STI/PUB/1221: 92-0-116004-6. Vienna: IAEA, 2005.
- Тарасиков В.П., Соловьев В.А. Влияние нейтронного облучения на физико-механические свойства сталей и сплавов отечественных ядерных реакторов. М.: Физматлит, 2020.
- Бондарьков М.Д., Максименко А.М., Вишневский И.Н., Желтоножский В.А., Желтоножская М.В., Садовников Л.В., Ильичев С.В., Боярищев В.В. // Известия Российской академии наук. Серия физическая. 2009. Т. 73. № 2. С. 279. <https://doi.org/10.3103/S1062873809020312>
- Long-Lived Activation Products in Reactor Materials. NUREG/CR-3474. Pacific Northwest Laboratory. Richland. WA 99352.
- Жемжуров М.Л., Жмура Г.М., Рубин И.Е., Серебряный Г.З., Днепровская Н.М., Тетерева Н.А., Руденков И.В., Бабичев Л.Ф. // Вести Национальной академии наук Беларуси. Серия физико-технических

- наук. 2021. Т. 66. № 3. С. 365.
<https://doi.org/10.29235/1561-8358-2021-66-3-365-377>
13. Желтоножская М.В., Желтоножский В.А., Мызников Д.Е., Никитин А.Н., Стрильчук Н.В., Хоменков В.П. // Известия Российской академии наук. Серия физическая. 2021. Т. 85. № 10. С. 1446.
<https://doi.org/10.31857/S0367676521100276>
14. Agostinelli S., Allison J., Amako K., Apostolakis J., Araujo H., Arce P., Asai M., Axen D., Banerjee S., Barrand G., Behner F., Bellagamba L., Boudreau J., Broglia L., Brunengo A., et al. // Nucl. Instrum. and Methods Phys. Res. A: Accel. Spectrom. Detect. Assoc. Equip. 2003. V. 506. Iss. 3. P. 250.
[https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(03\)01368-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)01368-8)
15. Zheltonozhskaya M.V., Zheltonozhsky V.A., Lykova E.N., Chernyaev A.P. and Iatsenko V.N. // Nucl. Instrum. and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2020. V. 470. P. 38.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2020.03.002>
16. Brajnik D., Jamnik D., Kernel G., Korun M., Miklavžič U., Pucelj B., Stanovnik A. // Phys. Rev. 1976. C. 13. Art. 1852.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevC.13.1852>
17. Brualla L., Rodriguez M., Sempau J., Andreo P. // Radiat. Oncol. 2019. V. 14. Article number 6.
<https://doi.org/10.1186/s13014-018-1186-8>
18. Zheltonozhsky V.A., Savrasov A.M. // Nucl. Instrum. and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2019. V. 456. P. 116.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2019.06.029>
19. Firestone R. Table of Isotopes. 8th edition. NY.: Wiley Interscience, 1996.
20. Utsunomiya H., Renström T., Tveten G.M., Goriely S., Katayama S., Ari-izumi T., Takenaka D., Symochko D., Kheswa B.V., Ingeberg V.W., Glodariu T., Lui Y.-W., Miyamoto S., Larsen A.C., Midtbø J.E. et al. // Phys. Rev. C 98. Art. 054619.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevC.98.054619>
21. Ишханов Б.С., Капитонов И.М., Пискарев И.М., Шевченко В.Г., Шевченко О.П. // Ядерная физика. 1970. Т. 11. № 3. С. 485.
22. Давыдов М.Г., Хамраев Ф.Ш., Шомуродов Э.М. // Советская атомная энергия. 1987. V. 63. P. 545
23. Стогов Ю.В. Основы нейтронной физики: Учебное пособие. М.: МИФИ, 2008.
24. Ancius D., Remeikis V., Plukis A., Plukiene R., Ridikas D., Cometto M. // Nukleonika. 2005. V. 50. Iss. 3. P. 113.
25. Kopecky J. Atlas of Neutron Capture Cross Sections. VIENNA: IAEA, 1997.