

В.О. ЖЕЛТОНОЖСЬКИЙ, Д.Є. МИЗНИКОВ, А.М. САВРАСОВ, В.І. СЛІСЕНКО

Інститут ядерних досліджень НАН України  
(Просп. Науки, 47, Київ 03028; e-mail: asavrasov@kinr.kiev.ua)

## ВИЗНАЧЕННЯ ВМІСТУ $^{59}\text{Ni}$ ТА $^{55}\text{Fe}$ В КОНСТРУКЦІЙНИХ ЕЛЕМЕНТАХ АЕС

УДК 539.17.02

*Проведено опромінювання конструкційних матеріалів 2-го блока ЧАЕС гальмівними  $\gamma$ -квантами з граничною енергією 37 МеВ. З вимірних  $\gamma$ -спектрів, використовуючи співвідношення виходів  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$  та  $^{54}\text{Mn}$ , ми визначили відношення концентрацій ізотопів  $^{58}\text{Ni}$  та  $^{56}\text{Fe}$  до концентрації  $^{59}\text{Co}$ . Із використанням отриманих даних та вимірної активності  $^{60}\text{Co}$  в досліджуваних зразках розроблено метод визначення активностей  $^{59}\text{Ni}$  та  $^{55}\text{Fe}$ . Проведено радіохімічну валідацію створеного методу і отримано гарне кількісне узгодження активностей  $^{59}\text{Ni}$  та  $^{55}\text{Fe}$ , знайдених спектроскопічним та радіохімічним методами.*

*Ключові слова:* середньозважені виходи, фотоактиваційний метод, гамма-спектрометрія, нікель, залізо.

### 1. Вступ

В даний час близько 200 промислових реакторів та понад 500 дослідницьких зупинені та виведені/виводяться з експлуатації. Це переважно зумовлено тим, що найперші атомні станції були розраховані на термін експлуатації в межах 30 років. Проте після проведення реконструкції термін експлуатації деяких з них продовжувався ще на 5–10 років. Хоча проектний термін експлуатації сучасних реакторних установок становить від 40 до 60 років, питання виведення їх з експлуатації є й залишається актуальним.

Виведення з експлуатації АЕС після вироблення ресурсу є необхідним етапом їх життєвого циклу та передбачає проведення комплексу заходів, в результаті яких відбувається вилучення ядерного палива. В процесі роботи реактора під впливом опромінення нейтронами активуються конструкційні матеріали, теплоізоляційні шахти та внутрішні шари бетону. Крім того, можливе осадження радіоактивних продуктів корозії та продуктів діле-

ння на поверхні обладнання технологічних контурів та загороджувальних будівельних конструкцій приміщень, в яких розміщено технологічне обладнання. Загальна кількість відходів різних матеріалів при виведенні з експлуатації будь-якого реактора може досягати сотень м<sup>3</sup>. Напрацьовані радіонукліди починають розщеплюватися відразу ж після вимкнення установки і мають широкий діапазон періодів напіврозпаду.

Радіоактивні матеріали, які утворюються при штатній експлуатації реакторів, мають специфічні властивості, а саме: нова масова та ізотопна структура радіоактивних матеріалів, яка виникає за рахунок активації конструкційних та будівельних матеріалів; наявність радіонуклідів з дуже тривалими періодами напіврозпаду; присутність значної кількості бета- та рентгенівських випромінювачів; наявність величезної кількості матеріалів, які можна повторно використовувати після відповідної переробки. У зв'язку із величезним масивом опромінених конструкційних матеріалів, лише радіохімічними методами доволі складно провести ретельну характеристику та інвентаризацію накопичених в них радіонуклідів.

© В.О. ЖЕЛТОНОЖСЬКИЙ, Д.Є. МИЗНИКОВ,  
А.М. САВРАСОВ, В.І. СЛІСЕНКО, 2022

ISSN 2071-0194. Укр. фіз. журн. 2022. Т. 67, № 10

Крім заліза широко використовується також нікель у нержавіючих сталях та сплавах конструкційних матеріалів АЕС [1, 2]. Вміст нікеля у сталі, яка використовується в конструкційних матеріалах реакторних установок, становить в середньому, не менше 8% від загальної маси, але може досягати й 20–30%. На фоні загальної маси конструкційних матеріалів енергоблока маса нікеля може складати десятки тонн. У природній ізотопній суміші нікеля вміст  $^{58}\text{Ni}$  становить 68,1%. Таким чином, при штатній експлуатації реактора в сталених конструкційних матеріалах працює довгоживучий радіоізоотоп  $^{59}\text{Ni}$  ( $T_{1/2} = 7,6 \cdot 10^4$  років). Він розпадається шляхом електронного захвату з випромінюванням характеристичного рентгенівського випромінювання дуже низької енергії, що робить визначення активності  $^{59}\text{Ni}$  в конструкційних матеріалах АЕС методами прикладної гамма-спектрометрії доволі ускладненим. При опроміненні ізоотопів заліза, на  $^{54}\text{Fe}$ , вміст якого у природній суміші – 5,8%, працює  $^{55}\text{Fe}$  з  $T_{1/2} = 2,73$  р. Останній також розпадається внаслідок електронного захвату, який супроводжується лише характеристичним випромінюванням. Тому на часі розробка нерадіохімічних методів визначення активності довгоживучих радіонуклідів  $^{55}\text{Fe}$  та  $^{59}\text{Ni}$ , яка і буде метою даної роботи.

## 2. Методика і результати вимірювань

В розробленій методиці пропонується визначати активності працюючих радіоізоотопів заліза та нікеля в конструкційних матеріалах АЕС за активністю  $^{60}\text{Co}$  з періодом напіврозпаду 5,27 роки. Природний кобальт складається лише з  $^{59}\text{Co}$  та нерозривно пов'язаний з нікелем, оскільки є домішкою нікелевих руд. Для сортів сталі, які використовуються в конструкційних матеріалах АЕС, домішка кобальта не повинна перевищувати 0,5%. Проте внаслідок дуже великого перерізу захоплення теплових нейтронів ядрами  $^{59}\text{Co}$  працює  $^{60}\text{Co}$ , активність якого легко ідентифікується за гамма-лініями 1173 та 1333 кеВ в усіх опроміненних конструкційних матеріалах.

Серії розрахунків, проведених для різних типів реакторів [3], показали, що більша частина накопичених продуктів активації реактора знаходиться в кожусі активної зони, і лише декілька радіоізо-

топів дають домінуючий внесок у загальний рівень активності. Було встановлено, що  $^{60}\text{Co}$  та  $^{55}\text{Fe}$  домінують у загальній активності в часовому діапазоні від 5 до 20 років після зупинки реактора. В той же час у дозі гамма-випромінювання  $^{60}\text{Co}$  буде домінувати протягом 100 років після зупинки. Ізотопи нікеля почнуть домінувати в загальній активності приблизно через 20 років. Аналогічна картина отримана і для стінок корпусів реакторів, але з меншими значеннями активностей радіоізоотопів кобальта та нікеля.

Таким чином, знаючи активність кобальта та склад конструкційних матеріалів з домішкою кобальта, можна оцінити кількості радіоактивних нуклідів, які працюють в  $(n, \gamma)$ -реакції при роботі реактора в конструкційних матеріалах.

Для розрахунку активностей в конструкційних матеріалах АЕС, як правило, використовується така формула:

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

Тут  $N_A$  – число відповідних атомів в конструкційних матеріалах АЕС;  $\sigma$  – переріз активації тепловими нейтронами;  $\varphi$  – 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.

В ролі  $t_{\text{опр}}$  використовуються значення тривалості роботи в ефективних добах, визначені по відомим значенням енергогенерації  $E$  (МВт · доб).

В ролі часу  $t_{\text{охол}}$  використовуються усереднені за рік значення сумарних простоїв реактора згідно існуючих графіків навантажень блоків. Густина потоку, в загальному, в основних вузлах опромінення вимірюється, проте очевидно, що внаслідок перерозсіяння нейтронів можливі значні варіації величин потоків. Ще складніша ситуація з масами опромінених матеріалів. Зокрема, для кобальта часто обмежуються тим, що його маса не повинна перевищувати 0,5% загальної маси. Існують значні проблеми і при оцінці перерізів реакцій на теплових нейтронах. В реакторі знаходяться “теплові” нейтрони працюючого реактора, і їх енергія значно вища енергії теплових нейтронів, для яких виміряні  $(n, \gamma)$ -перерізи. Енергії теплових нейтронів коливаються в діапазоні від 0,025 до 0,5 еВ, а в реакторі ці енергії – близько 2 еВ (див. рисунок спектра нейтронів для РБМК-1000 [4]).

Все це призводить до того, що розраховані за формулою (1) активності розходяться з експериментальними значеннями на 1–2 порядки. Для розв'язання цієї проблеми нами розроблено методику визначення активності досліджуваного нукліда по відношенню до активності  $^{60}\text{Co}$ . Знаючи активність  $^{60}\text{Co}$  та співвідношення досліджуваних матеріалів порівняно з домішками кобальта, можна розрахувати активності, які напрацьовуються в  $(n, \gamma)$ -реакції. Для визначення співвідношення різних елементів в конструкційних матеріалах нами пропонується використовувати фотоактиваційну методику [5].

Для валідації отриманих даних нами проводились дослідження елементного складу зразків, відібраних на 2-му блоці ЧАЕС. За допомогою фотоактиваційної методики проведено вимірювання величини домішки кобальта порівняно з нікелем та залізом. В конструкційних матеріалах АЕС нікель та залізо завжди йдуть у парі з кобальтом, тому, для усунення методичних похибок, проводяться відносні вимірювання із порівнянням виходу  $\gamma$ -ліній  $^{57,58}\text{Co}$  та  $^{54}\text{Mn}$ . Для цього на прискорювачі ЛУЕ-40 Харківського фізико-технічного інституту НАН України [6] пучком гальмівних  $\gamma$ -квантів з граничною енергією 37 МеВ опромінювались зразки, відібрані на цьому блоці як в області підвищеного нейтронного фону (ЖЗ), так і в інших місцях – корпус реактора (Fe), трубопроводу, трубки МНЖ. Гамма-спектр опроміненого зразка заліза наведено на рис. 1. Для визначення співвідношення мас нікеля і кобальта та заліза і кобальта вимірювалось співвідношення інтенсивностей  $\gamma$ -ліній з величинами енергії  $\gamma 136$  кеВ –  $^{57}\text{Co}$  ( $T_{1/2} = 272$  дні),  $\gamma 811$  кеВ –  $^{58}\text{Co}$  ( $T_{1/2} = 71$  день) та  $\gamma 834$  кеВ –  $^{54}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} = 312,1$  день) [7].  $^{57}\text{Co}$  напрацьовується, в основному, в реакціях  $(\gamma, n)$  та  $(\gamma, p)$  на ізотопі  $^{58}\text{Ni}$ , а  $^{58}\text{Co}$ , переважно, в  $(\gamma, n)$ -реакції на моноізотопі  $^{59}\text{Co}$ . В той час як для ідентифікації  $^{56}\text{Fe}$  використовуються реакції  $^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$  та  $^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$ .

При опроміненні використовувались зразки вагою 50 мг.

З відомих формул активаційного аналізу відношення числа атомів  $^{58}\text{Ni}$  та  $^{59}\text{Co}$  і  $^{56}\text{Fe}$  та  $^{59}\text{Co}$  буде рівне:

$$\frac{m(\text{Ni})}{m(\text{Co})} = \frac{N(\text{Ni})(1 - e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{опр}}})(1 - e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{вим}}})}{N(\text{Co})(1 - e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{опр}}})(1 - e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{вим}}})} \times$$

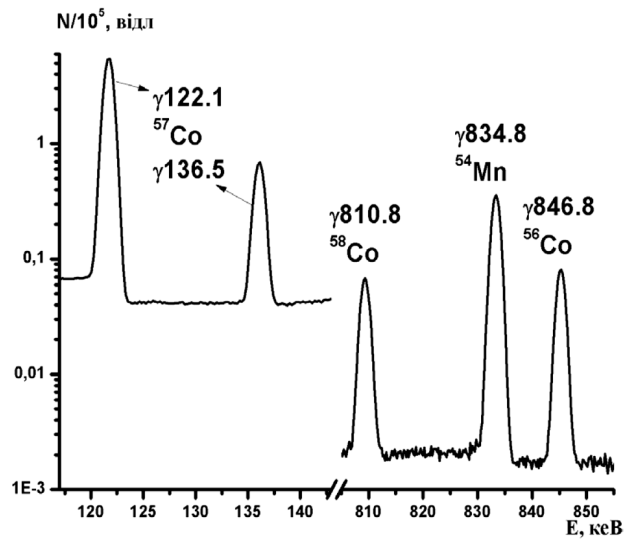


Рис. 1. Фрагмент  $\gamma$ -спектра активованої мішені заліза (Fe)

$$\times \frac{e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}} Y(\text{Co}) \lambda(\text{Ni})}{e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{охол}}} Y(\text{Ni}) \lambda(\text{Co})}, \quad (2a)$$

$$\frac{m(\text{Fe})}{m(\text{Co})} = \frac{N(\text{Mn})(1 - e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{опр}}})(1 - e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{вим}}})}{N(\text{Co})(1 - e^{-\lambda(\text{Mn})t_{\text{опр}}})(1 - e^{-\lambda(\text{Mn})t_{\text{вим}}})} \times \frac{e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}} Y(\text{Co}) \lambda(\text{Mn})}{e^{-\lambda(\text{Mn})t_{\text{охол}}} Y(\text{Mn}) \lambda(\text{Co})}, \quad (2b)$$

де  $m(\text{Ni})$ ,  $m(\text{Co})$ ,  $m(\text{Fe})$  – числа атомів  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{59}\text{Co}$  та  $^{56}\text{Fe}$ , відповідно.  $\lambda(\text{Co})$ ,  $\lambda(\text{Ni})$  та  $\lambda(\text{Mn})$  – сталі радіоактивного розпаду  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$  та  $^{54}\text{Mn}$ , відповідно,  $\text{с}^{-1}$ .  $Y(\text{Ni})$ ,  $Y(\text{Co})$  та  $Y(\text{Mn})$  – середньозважені виходи напрацювання  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$  та  $^{54}\text{Mn}$ , відповідно.  $N(\text{Ni})$ ,  $N(\text{Co})$  та  $N(\text{Mn})$  – числа радіоактивних ядер  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$  та  $^{54}\text{Mn}$ , відповідно.  $t_{\text{опр}}$ ,  $t_{\text{охол}}$ ,  $t_{\text{вим}}$  – тривалості опромінення, охолодження та вимірювання, відповідно. Тут враховується той факт, що вимірювання проводились за місяць після опромінення, тому усі ядра  $^{57}\text{Ni}$ , які утворилися в  $(\gamma, n)$ -реакції, розпалися на ядра  $^{57}\text{Co}$  внаслідок захоплення електронів

Періоди напіврозпаду  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$  та  $^{54}\text{Mn}$  рівні 271,8, 70,8 та 312,1 дні, відповідно [7]. Зразки опромінювались протягом декількох годин. Таким чином,  $T_{1/2}$  напрацьованих нуклідів  $\gg t_{\text{опр}}$ , тому вирази з  $t_{\text{опр}}$  можна розкласти в ряд Тейлора і отримати, що  $1 - e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{опр}}} \approx \lambda(\text{Co})t_{\text{опр}}$ ,  $1 - e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{опр}}} \approx \lambda(\text{Ni})t_{\text{опр}}$  та  $1 - e^{-\lambda(\text{Mn})t_{\text{опр}}} \approx \lambda(\text{Mn})t_{\text{опр}}$ . Аналогічні вирази мають місце і для  $t_{\text{вим}}$ :  $1 - e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{вим}}} \approx \lambda(\text{Co})t_{\text{вим}}$ ,  $1 - e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{вим}}} \approx$

$\approx \lambda(\text{Ni})t_{\text{вим}}$  та  $1 - e^{-\lambda(\text{Mn})t_{\text{вим}}} \approx \lambda(\text{Mn})t_{\text{вим}}$ . Підставляючи це у вираз (2), отримуємо:

$$\frac{m(\text{Ni})}{m(\text{Co})} = \frac{N(\text{Ni})\lambda(\text{Co})e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}}Y(\text{Co})}{N(\text{Co})\lambda(\text{Ni})e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{охол}}}Y(\text{Ni})}, \quad (3a)$$

$$\frac{m(\text{Fe})}{m(\text{Co})} = \frac{N(\text{Mn})\lambda(\text{Co})e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}}Y(\text{Co})}{N(\text{Co})\lambda(\text{Mn})e^{-\lambda(\text{Mn})t_{\text{охол}}}Y(\text{Mn})}. \quad (3b)$$

Таким чином, для АЕС, працюючих у нормальному режимі, вирази для напрацювання активностей  $^{55}\text{Fe}$  та  $^{59}\text{Ni}$  з урахуванням квантових виходів для гамма-лінії 834,8 кеВ ( $^{54}\text{Mn}$ ) – 100%, 136 кеВ ( $^{57}\text{Co}$ ) – 10,68% і для гамма-лінії 811 кеВ ( $^{58}\text{Co}$ ) – 99,45% значно спрощуються і мають такий вигляд:

$$\frac{m(\text{Ni})}{m(\text{Co})} = 9,3 \frac{N_\gamma(136 \text{ кеВ})\lambda(\text{Co})e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}}Y(\text{Co})}{N_\gamma(811 \text{ кеВ})\lambda(\text{Ni})e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{охол}}}Y(\text{Ni})}, \quad (4a)$$

$$\frac{m(\text{Fe})}{m(\text{Co})} = 9,4 \frac{N_\gamma(136 \text{ кеВ})\lambda(\text{Co})e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}}Y(\text{Co})}{N_\gamma(835 \text{ кеВ})\lambda(\text{Mn})e^{-\lambda(\text{Mn})t_{\text{охол}}}Y(\text{Mn})}, \quad (4b)$$

де 9,3 та 9,4 – відношення квантових виходів гамма-ліній 811 кеВ та 136 кеВ і 835 кеВ та 136 кеВ, відповідно;  $N_\gamma(136 \text{ кеВ})$  – число відліків в піку з енергією 136 кеВ з урахуванням ефективності реєстрації спектрометра (в даному випадку – 18,4%);  $N_\gamma(811 \text{ кеВ})$  – число відліків у піку повного поглинання з енергією 811 кеВ з урахуванням ефективності реєстрації спектрометра (в даному випадку – 5,2%).  $N_\gamma(835 \text{ кеВ})$  – число відліків у піку з енергією 835 кеВ з урахуванням ефективності реєстрації спектрометра (в даному випадку – 5%). Оскільки мішені тонкі, то самопоглинанням даних  $\gamma$ -квантів можна знехтувати.

Як вже обговорювалось у вступі, нержавіюча сталь в конструкційних матеріалах містить, як правило, 70% Fe, 10% Ni та не більше 0,5% Co.

Таблиця 1. Середньозважені виходи досліджуваних реакцій

Елемент	$^{58}\text{Ni}$ (Talys)	$^{58}\text{Ni}$ [13]	$^{59}\text{Co}$ (Talys)	$^{59}\text{Co}$ [14]	$^{55}\text{Mn}$ (Talys)	$^{55}\text{Mn}$ [12]
$Y(\gamma, n)$ , мб	10,1(7)	13,4(13)	24,2(17)	24,4(24)	22,0(16)	25,0(26)

З цих даних можна оцінити, що активності  $^{55}\text{Fe}$  не будуть перевищувати 0,5 А ( $^{60}\text{Co}$ ), а активність  $^{59}\text{Ni}$  буде нижчою  $10^{-2}$  А ( $^{60}\text{Co}$ ) при нормальній роботі АЕС.

Природно, в таких матеріалах як наплавлення, теплоізоляція, різні вигородки активності можуть значно змінюватись, тому необхідно проводити експериментальні дослідження співвідношення кобальта, нікеля та заліза за допомогою фотоактиваційного аналізу. При таких дослідженнях критичним є вихід відповідних реакцій.

Середньозважений вихід реакції  $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$  визначався в результаті згортки з кроком 1 МеВ за формулою:

$$Y = \frac{\sum_{i=1}^N \sigma_i \varphi_i}{\sum_{i=1}^N \varphi_i}, \quad (5)$$

де  $\sigma_i$  – табличні значення перерізів реакції  $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$  для монохроматичних  $\gamma$ -квантів;  $\varphi_i$  – відносні величини потоку, модельованого в Geant4 [8] спектра гальмівних  $\gamma$ -квантів для різної кількості подій, приведені до порогової величини енергії для даної реакції.

Для розрахунку середньозважених виходів перерізи реакцій використовувались з двох джерел: як табульовані експериментальні дані, так і розраховані в програмі Talys-1.96 [9]. Якщо між ними існували розбіжності, які виходили за межі експериментальних похибок, то використовувались експериментальні дані. Зокрема, опис отримання виходів для реакцій  $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$  та  $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}^{\text{tot}}$  детально викладено в роботі [10]. Для визначення кількості ядер  $^{56}\text{Fe}$  необхідно отримати середньозважені виходи реакцій  $^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$  та  $^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$ , оскільки в досліджуваних зразках містяться домішки марганця. Експериментальні перерізи першої реакції відсутні в базі даних EXFOR [11], і тому вони були взяті із теоретичного моделювання в коді Talys-1.96 (див. рис. 2).

Для реакції  $^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$  перерізи для розрахунку середньозваженого виходу за формулою (5) бралися з експериментальної роботи [12] див. рис. 3.

Цими способами за формулою (5) були розраховані величини середньозважених виходів для різних елементів, які містяться в опроміненних зразках. Отримані виходи наведено в табл. 1.

Як видно з табл. 1, різниця між експериментальними та теоретичними виходами знаходиться в межах необхідної точності методу для  $^{59}\text{Co}$  та  $^{55}\text{Mn}$  і дещо відрізняється для реакції  $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$ . Подібна ситуація спостерігається і для реакції  $^{58}\text{Ni}(\gamma, p)^{57}\text{Co}$ . Ми в даних дослідженнях використовували експериментальні дані інших авторів.

Для середньозважених виходів, які розраховувались за даними коду Talys-1.96, похибка складається з похибки моделювання гальмівного спектру в коді Geant4, яка знаходиться в межах 7%. У випадку використання експериментальних даних загальна похибка дещо вища, оскільки до похибок моделювання додається квадратично похибка експериментального перерізу. Для кожного перерізу похибка береться зі своїм ваговим коефіцієнтом, тобто розраховується середньозважена похибка, яка становить теж 7–8%. Тому загальна сумарна похибка визначення середньозважених виходів, які використовувались в наступних розрахунках, знаходиться в межах 10%.

Похибки середньозважених виходів є домінуючими при розрахунку співвідношень за формулою (4). В нашому випадку похибки визначення квантових виходів складала менше 1%, оскільки ми використовували найбільш інтенсивні  $\gamma$ -лінії. Загальна похибка визначення ефективностей реєстрації коливалася в межах 3–5% і складалася як із похибки визначення активності калібрувального джерела, так і з похибок інтенсивностей та квантових виходів  $\gamma$ -ліній калібрувального джерела. В цю похибку також входила похибка згладжувальних поліномів, якщо енергія необхідного  $\gamma$ -кванта знаходилась між піками калібрувальних  $\gamma$ -ліній. Тому загальна похибка співвідношень, розрахованих за форм. (4), знаходилась в межах 11–12%. Функції збудження при напрацюванні активностей  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{55}\text{Fe}$  та  $^{60}\text{Co}$ , які утворюються при роботі реактора, мають вигляд, зображений на рис. 4–6.

На рис. 4–6 внизу вказано бібліотеки програм, за допомогою яких розраховувалися функції збудження. Кількості точок, які використовувались при цьому, вказані у верхньому правому кутку. Експериментальні вимірювання проводились при величинах енергії 0,0253 eВ, 30 keВ та 14,5 MeВ. При найвищій енергії – лише для реакції  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ . В цьому випадку пунктирною ліні-

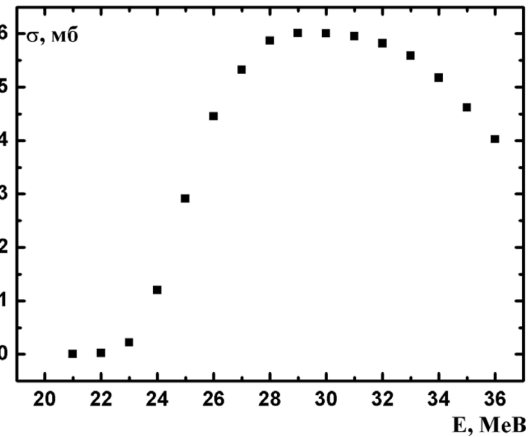


Рис. 2. Модельована функція збудження реакції  $^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$

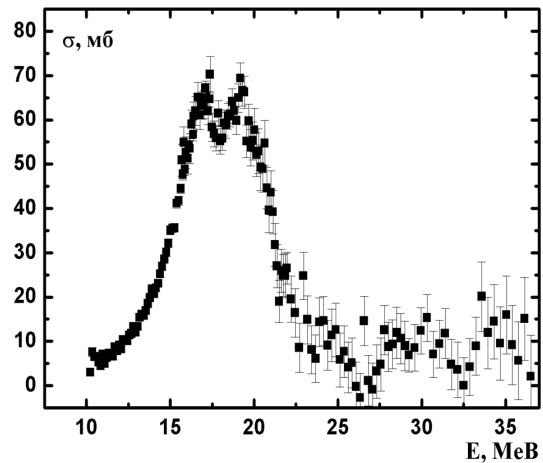


Рис. 3. Функція збудження реакції  $^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$  з роботи [12]

єю також зображено функцію збудження реакції  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}^m$ .

Як видно з рис. 4–6, при активації кобальта, заліза та нікеля основний внесок дають “теплові” нейтрони. Перерізи захоплення цих нейтронів описуються формулою  $\sigma \sim \sigma(E = 0,025 \text{ eВ}) \cdot V(E = 0,025 \text{ eВ}) / V(E)$ , де  $V(E)$  – швидкість нейтронів. Як видно, при відносних вимірюваннях можна використовувати дані для енергії нейтронів 0,025 eВ. Внесками епітеплових і швидких нейтронів можна знехтувати, і тому в подальших розрахунках ми будемо використовувати табличні значення перерізів саме для теплових нейтронів. Будемо оцінювати відношення активностей  $^{59}\text{Ni}$  та  $^{60}\text{Co}$  і  $^{55}\text{Fe}$

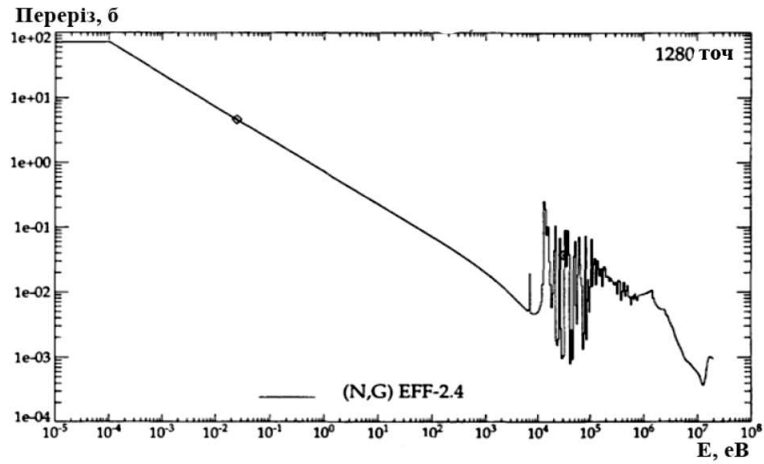


Рис. 4. Функція збудження реакції  $^{58}\text{Ni}(n, \gamma)^{59}\text{Ni}$  [15]

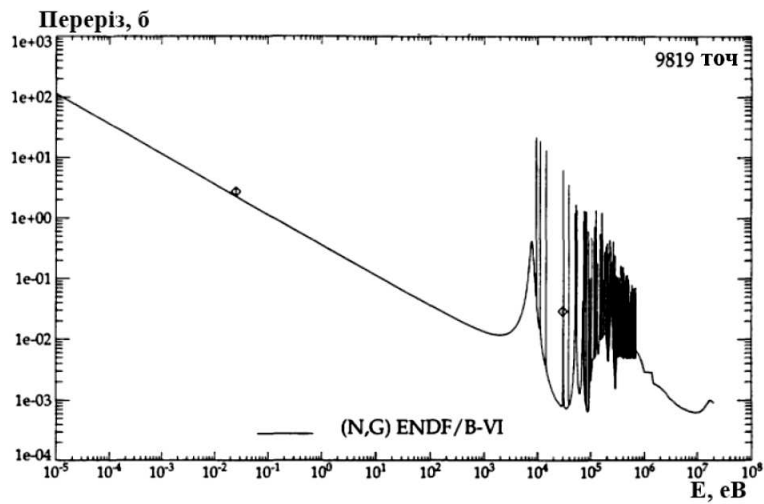


Рис. 5. Функція збудження реакції  $^{54}\text{Fe}(n, \gamma)^{55}\text{Fe}$  [15]

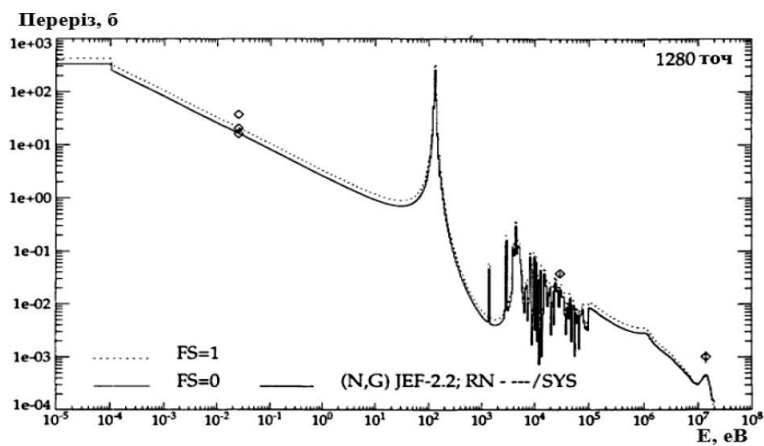


Рис. 6. Функція збудження реакції  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$  [15]

та  $^{60}\text{Co}$  за такими формулами:

$$\frac{A(^{59}\text{Ni})}{A(^{60}\text{Co})} = \frac{(1 - e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{58}\text{Ni}}^n N_{^{58}\text{Ni}}}{(1 - e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}} = \frac{(1 - e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{58}\text{Ni}}^n N_{^{58}\text{Ni}}}{(1 - e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}}, \quad (6a)$$

$$\frac{A(^{55}\text{Fe})}{A(^{60}\text{Co})} = \frac{(1 - e^{-\lambda(^{55}\text{Fe})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{55}\text{Fe})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{54}\text{Fe}}^n N_{^{54}\text{Fe}}}{(1 - e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}} = \frac{(1 - e^{-\lambda(^{55}\text{Fe})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{55}\text{Fe})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{54}\text{Fe}}^n N_{^{54}\text{Fe}}}{(1 - e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}}, \quad (6b)$$

де  $A(^{59}\text{Ni})$ ,  $A(^{55}\text{Fe})$  та  $A(^{60}\text{Co})$  – активності  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{55}\text{Fe}$  та  $^{60}\text{Co}$ , відповідно, Бк.  $\Phi_n$  – потік нейтронів у реакторі, н/с.  $\sigma_{^{58}\text{Ni}}^n$ ,  $\sigma_{^{54}\text{Fe}}^n$  та  $\sigma_{^{59}\text{Co}}^n$  – табличні значення перерізів реакцій  $^{58}\text{Ni}(n, \gamma)^{59}\text{Ni}$ ,  $^{54}\text{Fe}(n, \gamma)^{55}\text{Fe}$  та  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ , відповідно, взяті із [7], б.  $\lambda(^{59}\text{Ni}) = 0,693/T_{1/2}(^{59}\text{Ni})$ ,  $\lambda(^{55}\text{Fe}) = 0,693/T_{1/2}(^{55}\text{Fe})$  та  $\lambda(^{60}\text{Co}) = 0,693/T_{1/2}(^{60}\text{Co})$  – сталі радіоактивного розпаду  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{55}\text{Fe}$  та  $^{60}\text{Co}$ , відповідно,  $\text{с}^{-1}$ .  $T_{1/2}(^{59}\text{Ni})$ ,  $T_{1/2}(^{55}\text{Fe})$  та  $T_{1/2}(^{60}\text{Co})$  – періоди напіврозпаду  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{55}\text{Fe}$  та  $^{60}\text{Co}$ , відповідно, с.  $N_{^{58}\text{Ni}}/N_{^{59}\text{Co}}$  – співвідношення між кількостями атомів  $^{58}\text{Ni}$  та  $^{59}\text{Co}$ .  $N_{^{54}\text{Fe}}/N_{^{59}\text{Co}}$  – співвідношення між кількостями атомів  $^{54}\text{Fe}$  та  $^{59}\text{Co}$ . Воно отримується для даного зразка з формули (4) для співвідношення між кількостями атомів  $^{56}\text{Fe}$  та  $^{59}\text{Co}$  після врахування вмісту  $^{54}\text{Fe}$  в природній суміші.  $t_{\text{опр}}$ ,  $t_{\text{охол}}$ ,  $t_{\text{вим}}$  – тривалості опромінення, охолодження та вимірювання, відповідно.

Розраховані за формулою (6) активності  $^{59}\text{Ni}$  та  $^{55}\text{Fe}$  наведено в табл. 2. Нами також виконано розрахунок активностей досліджуваних зразків за допомогою радіохімічних методів, які також наведено в табл. 2. Як видно, узгодження гарне.

Сумарна похибка активностей отримувалася як корінь квадратний із сум квадратів похибок співвідношень, розрахункових яких описано вище, похибок табульованих перерізів ( $n, \gamma$ )-реакцій та похибок квантових виходів, ефективностей реєстрації та площ піків  $\gamma$ -квантів, які супроводжують розпад ядер  $^{60}\text{Co}$ . Похибка потоку нейтронів не враховувалась, оскільки відповідні нейтронні потоки

Таблиця 2. Активності досліджуваних зразків, отриманих обома методами

№ п/п	$^{59}\text{Ni}$ , Бк/г		$^{55}\text{Fe}$ , Бк/г	
	Фотоактиваційний	Радіохімічний	Фотоактиваційний	Радіохімічний
1(Трубопровід)	0,02(1)	<0,05	0,8(2)	<0,9
2(Трубка)	0,02(1)	<0,05	0,9(2)	1.0
3(Fe, Корпус)	0,02(1)	<0,05	0,6(2)	<0,6
4(ЖЗ)	0,52(8)	0,68(15)	6,5(10)	7.1(9)

скорочуються. Систематична похибка оцінювалась проведенням вимірювань на іншому спектрометрі. Вона знаходилась в межах 1–2%. В табл. 2 величини похибок фото активаційного методу, які значно перевищують 15%, пов'язані із низькою статистичною точністю  $\gamma$ -піків.

### 3. Висновки

Аналіз виходів радіонуклідів показує, що при опроміненні гальмівними гамма-квантами з граничною енергією 37 МеВ зразків масою 10–50 мг працюють активності, достатні для вимірювання спектрів  $\gamma$ -квантів протягом 3–4 годин. Це дозволяє опромінювати одночасно 100–200 зразків.

Розроблений фотоактиваційний метод визначення активностей  $^{59}\text{Ni}$  та  $^{55}\text{Fe}$  дозволяє значно спростити ідентифікацію цих ізотопів, контроль та паспортизацію в сталевих конструкційних матеріалах АЕС та різних видах радіоактивних відходів.

Запропонований метод більш ефективний порівняно з традиційними радіохімічними методами в зв'язку з великою масою опромінених конструкційних матеріалів та радіоактивних відходів, які утворюються на АЕС, та складністю радіохімічних методів.

*Робота виконана за фінансової підтримки бюджетної програми “Підтримка розвитку пріоритетних напрямів наукових досліджень” (КПКВК 6541230) на 2022–2023 рр.*

1. Y. Amano et al. *Design of Instrumentation and Control System for Nuclear Power Plants. Specific Safety Guide* (International Atomic Energy Agency, 2016).
2. Y. Amano et al. *Construction for Nuclear Installations. Specific Safety Guide* (International Atomic Energy Agency, 2015).

3. J.C. Evans *et al.* *Long-Lived Activation Products in Reactor Materials* (Pacific Northwest Laboratory, Richland, 1984).
4. E.A. Zhyrbenko, B.K. Bulkin. The main approaches to determining the activity of the structures of reactor units with VVER during their decommissioning. In: *Proc. of the 6<sup>th</sup> International Scientific and and Technical Conf. "Safety assurance of NPP with VVER"* (OKB "Gidropress", 2009) (Russian).
5. V.A. Zheltonozhsky, D.E. Myznikov, V.I. Slisenko, M.V. Zheltonozhskaya, A.P. Chernyaev. Determination of the long-lived  $^{10}\text{Be}$  in construction materials of nuclear power plants using photoactivation method. *J. Environm. Radioactivity* **227**, 106509 (2021).
6. M.I. Aizatskyi, V.I. Beloglasov, V.N. Boriskin *et. al.* State and prospects of the linac of nuclear-physics complex with energy of electrons up to 100 MeV. *Probl. Atom. Scien. Tech.* **91**, 60 (2014).
7. R.B. Firestone. *Table of Isotops* 8th edn. (Wiley Interscience, 1996).
8. S. Agostinelli *et al.* GEANT4 – a simulation toolkit. *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. A* **506**, 250 (2003).
9. A.J. Koning, D. Rochman. Modern nuclear data evaluation with the TALYS code system. *Nucl. Data Sheets.* **113**, 2841 (2012).
10. В.О. Желтоножський, Д.Є. Мизніков, А.М. Саврасов, В.І. Слісенко. Визначення активності  $^{63}\text{Ni}$  в конструкційних матеріалах АЕС. *Яд. фіз. та атом. енер.* **23**, 207 (2022).
11. Experimental Nuclear Reaction Data. <https://www-nds.iaea.org/exfor/>.
12. R.A. Alvarez, B.L. Berman, D.D. Faul, F.H. Lewis Jr.P. Meyer. Photoneutron cross sections for  $^{55}\text{Mn}$  and  $^{59}\text{Co}$ . *Phys. C* **20**, 128 (1979).
13. R.A. Alvarez, B.L. Berman, P. Meyer. Photonuclear cross sections of  $^{58}\text{Ni}$  and  $^{60}\text{Ni}$ . *Phys. Rev. C* **10**, 608 (1974).
14. R.L. Bramblett, J.T. Caldwell, N.E. Hansen, C.P. Jupite. Photoneutron cross-sections for  $^{51}\text{V}$  and  $^{59}\text{Co}$ . *Phys. Rev.* **128**, 2345 (1962).
15. J. Kopecky. *Atlas of Neutron Capture Cross Sections* (JUKO Research, 1997).

Received 17.09.22

V.O. Zheltonozhsky, D.E. Myznikov,  
A.M. Savrasov, V.I. Slisenko

#### DETERMINATION OF $^{59}\text{Ni}$ AND $^{55}\text{Fe}$ CONTENT IN NPP STRUCTURAL ELEMENTS

The structural materials from the 2nd unit of the Chornobyl NPP were irradiated by bremsstrahlung photons with an endpoint energy of 37 MeV. From the measured  $\gamma$ -spectra, using the ratios among the  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ , and  $^{58}\text{Co}$  activities, the concentrations of  $^{58}\text{Ni}$  and  $^{56}\text{Fe}$  isotopes were determined in compare with the concentrations of  $^{59}\text{Co}$ . Using the obtained data and the measured  $^{60}\text{Co}$  activity in the studied samples, we developed a method for determining the  $^{59}\text{Ni}$  and  $^{55}\text{Fe}$  activities. Radiochemical validation of the created method was performed, and good quantitative agreement of  $^{59}\text{Ni}$  and  $^{55}\text{Fe}$  activities obtained by spectroscopic and radiochemical methods was found.

*Keywords:* flux-weighted average yields, photoactivation method, gamma-spectrometry, nickel, ferrum.