

ІНСТИТУТ ЯДЕРНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ  
НАЦІОНАЛЬНОЇ АКАДЕМІЇ НАУК УКРАЇНИ

Кваліфікаційна наукова праця  
на правах рукопису

МИЗНІКОВ ДМИТРО ЄВГЕНОВИЧ

## ДИСЕРТАЦІЯ

### Нерадіохімічні методи реєстрації радіонуклідів $^{10}\text{Be}$ , $^{36}\text{Cl}$ , $^{59,63}\text{Ni}$ , $^{90}\text{Sr}$ із відходів АЕС

Спеціальність 104 Фізика та астрономія  
Галузь знань 10 «Природничі науки»

Подається на здобуття наукового ступеня доктора філософії у галузі фізики та астрономії

Дисертація містить результати власних досліджень. Використання ідей, результатів і текстів інших авторів мають посилання на відповідне джерело

\_\_\_\_\_ Мизніков Д.Є.

Науковий керівник:

Слісенко Василь Іванович, академик НАН України,  
доктор фізико-математичних наук

Київ 2023

## Анотація

Мизніков Д.Є. Нерадіохімічні методи реєстрації радіонуклідів  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{59,63}\text{Ni}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  із відходів АЕС. - Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук (доктора філософії) за спеціальністю 104 Фізика та астрономія. Інститут ядерних досліджень Національної академії наук України, Київ, 2023.

Дисертаційна робота присвячена розробці нових методів реєстрації довгоживучих радіонуклідів, що розпадаються без випускання гамма-квантів та напрацьовуються в процесі роботи атомних реакторів, а також застосуванню розроблених методів для дослідження поведінки радіонуклідів у 30-км зоні ЧАЕС.

У першому розділі дисертації описано сучасні методи реєстрації таких радіонуклідів і наголошується, що їхнє використання для проведення масових вимірювань технічно складне, вкрай трудомістке і дуже дороге.

У другому розділі описано метод реєстрації  $^{10}\text{Be}$  в конструкційних матеріалах АЕС. Для розв'язання поставленого завдання вперше в широкому діапазоні енергій виміряно виходи  $^7\text{Be}$  на атомах бору та берилію. Проведено теоретичні розрахунки виходу  $^7\text{Be}$  за допомогою програмних кодів TALYS 1.96 і EMPIRE 3.2. Спектри гальмівних гамма-квантів розраховували за допомогою програмного коду GEANT4. Для розрахунку теоретичних інтегральних виходів гальмівні спектри згортали з розрахованими функціями збудження  $(\gamma, 2n)$ - і  $(\gamma, p2n)$ -реакцій. Результати розрахунків демонструють, що зі зростанням енергії гальмівних гамма-квантів домінують статистичний і передрівноважний механізми ядерних реакцій. На підставі проведених досліджень продемонстровано, що в ділянці енергій гальмівного

випромінювання 30-40 MeV вихід ( $\gamma$ , 2n)-реакції на  $^9\text{Be}$  та ( $\gamma$ , p2n)-реакції на  $^{10}\text{B}$  у межах похибки вимірювань набувають одного й того самого значення. З урахуванням того, що переріз (n,  $\gamma$ )-реакції на  $^9\text{Be}$  і (n, p)-реакції на  $^{10}\text{B}$  приблизно однакові, запропоновано метод вимірювань  $^{10}\text{Be}$  за допомогою фотоактиваційного аналізу, в якому визначається кількість атомів  $^9\text{Be}$  і  $^{10}\text{B}$  в опромінених конструкційних матеріалах. Для валідації запропонованого методу проведено опромінення гальмівними гамма-квантами з граничною енергією 36 MeV зразків конструкційних матеріалів з 2-го енергоблоку ЧАЕС. У результаті було визначено активність  $^{10}\text{Be}$  у зразках, яка опинилася в діапазоні (0.01-0.09) Бк/г. Перевірку точності методу здійснювали через розрахунок активності  $^{94}\text{Nb}$  розробленим методом і зі спектрів гамма-променів, супутніх розпаду  $^{94}\text{Nb}$ .

У третьому розділі розглянуті методи реєстрації довгоживучих ізотопів  $^{59,63}\text{Ni}$ ,  $^{55}\text{Fe}$  та  $^{36}\text{Cl}$  відносно активності  $^{60}\text{Co}$ . Металеві конструкційні матеріали АЕС містять значну кількість нікелю (до 30%). Як домішка нікелю в цих матеріалах міститься і кобальт. Для визначення активності  $^{63}\text{Ni}$  був розроблений фотоактиваційний метод, що базується на визначенні кількості атомів  $^{62}\text{Ni}$  і  $^{59}\text{Co}$ . Період напіврозпаду  $^{63}\text{Ni}$  становить 100 років і він розпадається з випусканням електронів з граничною енергією 67 кеВ. Активність  $^{60}\text{Co}$  в перші роки після зупинки реактора є домінуючою в конструкційних матеріалах і легко вимірюється за гамма-променями, що супроводжують його розпад.

Перерізи (n,  $\gamma$ )-реакцій в епітепловій ділянці обернено пропорційні швидкості нейтронів, тому під час розрахунку активності  $^{63}\text{Ni}$  і  $^{60}\text{Co}$  поправка на енергію нейтронів, які опромінюють конструкційні матеріали, буде одна й та сама. З огляду на це в дисертації показано, що перерізи (n,  $\gamma$ )-реакцій для нейтронів з енергією 0.025 eV забезпечують коректну оцінку виходів

активності  $^{63}\text{Ni}$  і  $^{60}\text{Co}$ . Для визначення кількості атомів нікелю та кобальту виміряно та проаналізовано експериментальні дані для  $(\gamma, n)$ - і  $(\gamma, p)$ -реакцій на  $^{58}\text{Ni}$  і  $^{59}\text{Co}$  для гальмівних гамма-квантів з граничною енергією 19 МеВ. Виконано теоретичні розрахунки функції збудження  $(\gamma, n)$ - і  $(\gamma, p)$ -реакцій за допомогою програмного коду TALYS1.96 і проведено згортку розрахункових значень зі спектром гальмівного випромінювання, змодельованого в програмному коді GEANT4. Показано, що з точністю, кращою за 10%, виходи  $(\gamma, n)$ -реакції на  $^{58}\text{Ni}$  і  $^{59}\text{Co}$  збігаються з експериментальними значеннями. Запропонованим методом визначено активність  $^{63}\text{Ni}$  в опромінених конструкційних матеріалах 2-го енергоблоку ЧАЕС, яка в різних зразках становила від  $1.6 \pm 0.16$  Бк/г до  $41.3 \pm 4.1$  Бк/г. Для валідації запропонованого методу було проведено радіохімічні дослідження цих зразків та ідентифіковано активність від  $< 2$  Бк/г до  $42.3 \pm 4.3$  Бк/г, тобто спостерігається хороша згода. Активність  $^{59}\text{Ni}$  в опромінених зразках становила від  $0.02 \pm 0.01$  Бк/г до  $0.52 \pm 0.05$  Бк/г, що підтвердили радіохімічні дослідження від  $< 0.05$  Бк/г до  $0.68 \pm 0.15$  Бк/г.

Для визначення активності  $^{55}\text{Fe}$  і  $^{36}\text{Cl}$  в конструкційних матеріалах АЕС використовувався той же підхід, що і для довгоживучих ізотопів нікелю. Для цього були вивчені середньозважені по потоку гальмівного випромінювання виходи  $(\gamma, n)$ - і  $(\gamma, p)$ -реакцій на природному залізі і хлорі.

У третьому розділі обговорено  $^{90}\text{Sr}$ , один із радіобіологічно небезпечніших радіонуклідів, який розпадається з випусканням двох груп електронів із граничною енергією 0.55 МеВ і 2.5 МеВ. Для реєстрації електронів використовувалися NaI (Tl)-спектрометри з тонким вхідним вікном. Зареєстровані експериментальні спектри порівнювалися зі спектрами електронів фантомів  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  і  $^{40}\text{K}$ . При вимірюванні спектрів електронів у "товстих" зразках ґрунту або в живих об'єктах вихід

електронів з таких зразків фактично обернено пропорційний щільності матеріалів у цих зразках. У роботі проведено дослідження з урахування самопоглинання електронів. Через безперервність спектра електронів, що супроводжують розпад  $^{90}\text{Sr}$ , і з урахуванням того, що в зразках ґрунту з 30-км зони ЧАЕС присутність  $^{90}\text{Sr}$  завжди супроводжується  $^{137}\text{Cs}$ , розроблений метод врахування зміни густини зразків за конверсійним піком електронів, які супроводжують розпад  $^{137}\text{Cs}$ , та показано, що поправка для активності  $^{90}\text{Sr}$  прямо пропорційна різниці енергій конверсійних електронів у досліджуваному зразку і калібрувальному фантомі. Однією з переваг розробленого методу визначення активності  $^{90}\text{Sr}$  є можливість прижиттєвих вимірювань його активності в живих об'єктах. Однак при подібних дослідженнях важливо враховувати геометрію і розмір досліджуваних об'єктів. Було проведено дослідження мишоподібних гризунів і птахів, виловлених у 30-км зоні ЧАЕС різних розмірів, за допомогою запропонованого методу та радіохімічних досліджень. Показано, що через особливості розподілу  $^{90}\text{Sr}$  у кістках мишоподібних гризунів і птахів необхідно вводити постійний поправочний коефіцієнт при дослідженні птахів. Отримано напівемпіричну залежність розрахунку активності  $^{90}\text{Sr}$  залежно від розмірів (маси) мишоподібних гризунів.

При дослідженні активності радіонуклідів, що розпадаються з випусканням характеристичного і низькоенергетичного випромінювання в зразках навколишнього середовища, виникає також необхідність врахування самопоглинання цих гамма-квантів. Були проведені дослідження активності  $^{137}\text{Cs}$  у зразках ґрунту до глибини 30 см, розраховані за виходами характеристичного випромінювання барію з енергією 36 кеВ і за виходом гамма-випромінювання з енергією 661 кеВ. З отриманих результатів було сформульовано вираз для визначення активності  $^{241}\text{Am}$  з урахуванням співвідношення активностей  $^{137}\text{Cs}$ , визначених вищеописаними способами.

Використовуючи розроблені методи було оцінено внесок нових надходжень радіонуклідів у верхні шари ґрунтів 30-км зони ЧАЕС через установку конфаймента і показано значну зміну концентрації радіонуклідів  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{94}\text{Nb}$  і  $^{241}\text{Am}$  поблизу об'єкта "Укриття". Запропоновані репери контролю нових радіоактивних надходжень за активністю  $^{94}\text{Nb}$ .

При дослідженнях вертикальної міграції радіонуклідів на полігонах, що примикають до 30-кілометрової зони ЧАЕС було показано, що міграція радіонуклідів паливних випадіннь відбувається аналогічно, як і поблизу об'єкта "Укриття". Основна компонента  $^{137}\text{Cs}$  пов'язана з аерозольними випадіннями і радіонукліди  $^{137}\text{Cs}$  зв'язуються в поверхневому шарі.

Напівемпіричні формули врахування впливу неоднорідностей у досліджуваних зразках на розрахунки активності радіонуклідів підвищать достовірність визначення активності у зразках довкілля.

Розроблені методи визначення активності ізоотопів  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$  і  $^{55}\text{Fe}$  у конструкційних матеріалах АЕС можуть бути використані для вивчення активності в конструкційних матеріалах знятого з експлуатації 2-го енергоблока ЧАЕС і радіоактивних відходів з інших працюючих АЕС України.

**Ключові слова:** фотоядерні реакції, радіологічно небезпечні радіонукліди,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ , зразки опромінених конструкційних матеріалів реактору, ґрунти, живі об'єкти, 30-км зона ЧАЕС

## Summary

Myznikov D.E. Non-radiochemical methods for detecting  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{59,63}\text{Ni}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  radionuclides in nuclear power plant waste. – Manuscript.

Thesis for a scientific degree of Doctor of Philosophy in specialty 104 Physics and Astronomy. Institute for Nuclear Research of the National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, 2023.

The dissertation is devoted to the development of new methods for recording long-lived radionuclides that decay without the release of gamma rays and are generated during the operation of nuclear reactors, as well as the application of the developed methods to study the behavior of radionuclides in the 30-km zone of the Chernobyl NPP.

The first chapter of the dissertation describes modern methods of registration of such radionuclides and emphasizes that their use for mass measurements is technically difficult, extremely laborious and very expensive.

The second section describes the method for registering  $^{10}\text{Be}$  in NPP structural materials. To solve this problem, the yields of  $^7\text{Be}$  on boron and beryllium atoms were measured for the first time in a wide energy range. Theoretical calculations of the  $^7\text{Be}$  yield were performed using the TALYS 1.96 and EMPIRE 3.2 software codes. The spectra of brake gamma-rays were calculated using the GEANT4 program code. To calculate the theoretical integrated outputs, the brake spectra were convolved with the calculated excitation functions of the  $(\gamma, 2n)$ - and  $(\gamma, p2n)$ -reactions. The results of the calculations demonstrate that the statistical and pre-equilibrium mechanisms of nuclear reactions dominate with increasing energy of the braking gamma quanta. Based on the studies, it is demonstrated that in the range of braking radiation energies of 30-40 MeV, the yield of the  $(\gamma, 2n)$ -reaction to  $^9\text{Be}$  and the  $(\gamma, p2n)$ -reaction to  $^{10}\text{Be}$  acquire the same value within the measurement error. Taking into account that the cross section of the  $(n, \gamma)$ -reaction to  $^9\text{Be}$  and the  $(n, p)$ -

reaction to  $^{10}\text{B}$  are approximately the same, a method for measuring  $^{10}\text{Be}$  by photoactivation analysis is proposed, which determines the number of  $^9\text{Be}$  and  $^{10}\text{B}$  atoms in irradiated structural materials. To validate the proposed method, samples of structural materials from ChNPP Unit 2 were irradiated with brake gamma quanta with a limiting energy of 36 MeV. As a result, the  $^{10}\text{Be}$  activity in the samples was determined to be in the range (0.01-0.09) Bq/g. The accuracy of the method was checked by calculating the activity of  $^{94}\text{Nb}$  by the developed method and from the gamma ray spectra accompanying the decay of  $^{94}\text{Nb}$ .

The third section discusses methods for detecting long-lived isotopes  $^{59,63}\text{Ni}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ , and  $^{36}\text{Cl}$  relative to  $^{60}\text{Co}$  activity. Metal structural materials of NPPs contain a significant amount of nickel (up to 30%). These materials also contain cobalt as an impurity of nickel.  $^{63}\text{Ni}$  half-life is 100 years and it decays with the release of electrons with a limiting energy of 67 keV. To determine the activity of  $^{63}\text{Ni}$ , a photoactivation method was developed based on determining the number of  $^{62}\text{Ni}$  and  $^{59}\text{Co}$  atoms.  $^{60}\text{Co}$  activity in the first years after reactor shutdown is dominant in structural materials and is easily measured by gamma rays accompanying its decay.

The cross sections of  $(n, \gamma)$ -reactions in the epithelial region are inversely proportional to the neutron velocity, so the correction for the energy of neutrons irradiating structural materials will be the same when calculating the activity of  $^{63}\text{Ni}$  and  $^{60}\text{Co}$ . In view of this, the thesis shows that the cross sections of  $(n, \gamma)$ -reactions for neutrons with an energy of 0.025 eV provide a correct estimate of the activity yields of  $^{63}\text{Ni}$  and  $^{60}\text{Co}$ . To determine the number of nickel and cobalt atoms, experimental data for  $(\gamma, n)$ - and  $(\gamma, p)$ -reactions to  $^{58}\text{Ni}$  and  $^{59}\text{Co}$  for braking gamma quanta with a boundary energy of 19 MeV were measured and analyzed. Theoretical calculations of the excitation function of the  $(\gamma, n)$ - and  $(\gamma, p)$ -reactions were performed using the TALYS1.96 program code and the calculated values were compared with the spectrum of the brake radiation modeled in the GEANT4 program



code. It is shown that the outputs of the  $(\gamma, n)$ -reaction to  $^{58}\text{Ni}$  and  $^{59}\text{Co}$  coincide with the experimental values with an accuracy better than 10%. The proposed method was used to determine the activity of  $^{63}\text{Ni}$  in the irradiated structural materials of ChNPP Unit 2, which ranged from  $1.6 \pm 0.16$  Bq/g to  $41.3 \pm 4.1$  Bq/g in different samples. To validate the proposed method, radiochemical studies of these samples were performed and activity ranging from  $<2$  Bq/g to  $42.3 \pm 4.3$  Bq/g was identified, i.e., good agreement was observed. The activity of  $^{59}\text{Ni}$  in the irradiated samples ranged from  $0.02 \pm 0.01$  Bq/g to  $0.52 \pm 0.05$  Bq/g, which was confirmed by radiochemical studies from  $<0.05$  Bq/g to  $0.68 \pm 0.15$  Bq/g.

To determine the activity of  $^{55}\text{Fe}$  and  $^{36}\text{Cl}$  in NPP structural materials, the same approach was used as for long-lived nickel isotopes. For this purpose, the outputs of reactions on natural iron and chlorine weighted by the flow of braking radiation were studied.

In the third section, we discuss  $^{90}\text{Sr}$ , one of the radiobiologically dangerous radionuclides, which decays with the release of two groups of electrons with a limiting energy of 0.55 MeV and 2.5 MeV. NaI(Tl)-spectrometers with a thin entrance window were used for electron registration. The recorded experimental spectra were compared with the electron spectra of  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , and  $^{40}\text{K}$  phantoms. When measuring electron spectra in "thick" soil samples or in living objects, the electron yield from such samples is actually inversely proportional to the density of materials in these samples. In this work, we have conducted a study taking into account the self-absorption of electrons. Due to the continuity of the spectrum of electrons accompanying the decay of  $^{90}\text{Sr}$ , and taking into account the fact that in soil samples from the 30-km zone of the Chernobyl NPP, the presence of  $^{90}\text{Sr}$  is always accompanied by  $^{137}\text{Cs}$ , a method was developed to account for changes in the density of samples based on the conversion peak of electrons accompanying the decay of  $^{137}\text{Cs}$ , and it was shown that the correction for  $^{90}\text{Sr}$  activity is directly proportional to the difference in the energies of conversion electrons in the sample

under study and the calibration phantom. One of the advantages of the developed method for determining  $^{90}\text{Sr}$  activity is the possibility of in vivo measurements of its activity in living objects. However, in such studies, it is important to take into account the geometry and size of the objects under study. The study of mouse-like rodents and birds caught in the 30-km zone of the Chernobyl NPP of different sizes was carried out using the proposed method and radiochemical studies. It is shown that due to the peculiarities of  $^{90}\text{Sr}$  distribution in the bones of mouse-like rodents and birds, it is necessary to introduce a constant correction factor in the study of birds. A semi-empirical dependence of the calculation of  $^{90}\text{Sr}$  activity depending on the size (weight) of mouse-like rodents was obtained.

When studying radionuclides that decay with the release of characteristic and low-energy radiation in environmental samples, it is also necessary to take into account the self-absorption of these gamma quanta. The activity of  $^{137}\text{Cs}$  in soil samples up to a depth of 30 cm was studied, calculated from the yields of characteristic barium radiation with an energy of 36 keV and from the yield of gamma radiation with an energy of 661 keV. From the results obtained, an expression was formulated to determine the activity of  $^{241}\text{Am}$ , taking into account the ratio of  $^{137}\text{Cs}$  activities determined by the above methods.

Using the developed methods the contributions of new radionuclide to the upper soil layers of the 30-km ChNPP zone is estimated after the installation of the confinement and a significant change in the concentration of  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{94}\text{Nb}$  and  $^{241}\text{Am}$  radionuclides near the Shelter is shown. The author proposes the control limits for new radioactive arrivals based on  $^{94}\text{Nb}$  activity.

During the study of vertical migration of radionuclides at the landfills adjacent to the 30-km zone of the ChNPP, it was shown that the migration of radionuclides from fuel fallout occurs similarly to that near the Shelter Object. The main component of  $^{137}\text{Cs}$  is associated with aerosol deposition and  $^{137}\text{Cs}$  radionuclides are bound in the surface layer.

Semi-empirical formulas for taking into account the influence of inhomogeneities in the samples under study on the calculations of radionuclide activity will increase the reliability of activity determination in environmental samples.

The developed methods for determining the activity of  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ , and  $^{55}\text{Fe}$  isotopes in NPP structural materials can be used to study the activity in the structural materials of the decommissioned ChNPP Unit 2 and radioactive waste from other operating NPPs in Ukraine.

**Keywords:** photonuclear reactions, radiologically hazardous radionuclides,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{55}\text{Fe}$   $^{90}\text{Sr}$ , samples of irradiated reactor structural materials, soils, living objects, 30-km ChNPP zone

## Список публікацій здобувача

### Праці, в яких опубліковані основні наукові результати дисертації

1. Zheltonozhsky V.O., **Myznikov D.E.**, Savrasov A.M., Slisenko V.I. Determination of  $^{59}\text{Ni}$  and  $^{55}\text{Fe}$  contents in NPP structural elements **Q3** (2023) Ukrainian Journal of Physics. 67(10). pp. 707-714. DOI: 10.15407/ujpe67.10.707 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

2. Zheltonozhsky V.O., **Myznikov D.E.**, Savrasov A.M., Slisenko V.I. Determination of  $^{63}\text{Ni}$  activity in NPP construction materials **Q4** (2022) Nuclear Physics and Atomic Energy, 23, pp. 207-211. DOI: 10.15407/jnpae2022.02.207 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

3. Zheltonozhskiy V.A., Zheltonozhskaya M.V., **Myznikov D.E.**, Bondarkov M.D., Farfán E.B. Investigation of radionuclide migration at sites adjacent to the 30-km exclusion zone of the chernobyl nuclear power plant **Q2** (2022) Health Physics, 122(4), pp. 502–507. DOI: 10.1097/hp.0000000000001529 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

4. Zheltonozhsky V.A., **Myznikov D.E.**, Slisenko V.I., et al. Determination of the long-lived  $^{10}\text{Be}$  in construction materials of nuclear power plants using photoactivation method **Q2** (2021) Journal of Environmental Radioactivity, 227, 106509. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2020.106509. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

5. Zheltonozhsky V.O., **Myznikov D.E.**, Savrasov A.M., Slisenko V.I. Investigation of  $^7\text{Be}$  population in reactions on nuclei of beryllium and boron with bremsstrahlung  $\gamma$ -rays in wide energy range **Q3** (2020) Nuclear Physics and Atomic

Energy, 21 (4), pp. 302-307. DOI: 10.15407/jnpae2020.04.302 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

6. Zheltonozhska M.V., Kulich N.V., **Myznikov D.E.**, Slisenko V.I. Study of the Chernobyl fallout in 30-km zone after construction of the confinement **Q3** (2019) Nuclear Physics and Atomic Energy, 20 (3), pp. 258-264. DOI: 10.15407/jnpae2019.03.258 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

7. Bondarkov D.M., Kulich N.V., **Myznikov D.E.** et al. Non-destructive methods of Sr-90 measurement (2018) Radiation and Applications. Vol. 3, no. 1. P. 41–46. DOI: 10.21175/RadJ.2018.01.008 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

8. Бондарьков Д.М., Бондарьков М.Д., Желтоножська М.В., Желтоножський В.А., **Мизніков Д.Є.** Методи корекції бета-спектроскопічних досліджень у польових умовах (2019) Проблеми Чорнобильської зони відчуження. № 20. P. 82–87. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

9. Куліч Н.В., Желтоножська М.В., **Мизніков Д.Є.** Спосіб розрахунку активності  $^{241}\text{Am}$  в об'ємних слабоактивних пробах ґрунту. Патент на корисну модель №133830. Заявка U201811024 від 08.11.2018. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка заявки на отримання патенту)

### **Опубліковані праці апробаційного характеру:**

1. **Myznikov D.E.**, Zheltonozhsky V.A., Slisenko V.I. New non-destructive method of the beryllium-10 determination in constructional materials of nuclear power plants. Book of Abstracts of VII Terrestrial Radioisotopes in Environment

International Conference on Environmental Protection. 10-13 August 2020. Veszprém, Hungary. P. 62. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка тез до друку)

2. **Мизніков Д.Є.,** Желтоножський В.О., Саврасов А.М., Сліченко В.І. Визначення вмісту  $^{59,63}\text{Ni}$  та  $^{55}\text{Fe}$  в конструкційних елементах АЕС. Збірник тез щорічної конференції Інституту ядерних досліджень НАН України 28 вересня 2022 р. Київ. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка тез до друку)

3. **Мизніков Д.Є.,** Бондарьков Д.М., Желтоножський В.О., Саврасов А.М., Садовніков Л.В. Методи реєстрації радіонуклідів в радіоактивних матеріалах АЕС. Збірник тез щорічної конференції Інституту ядерних досліджень НАН України 28 вересня 2022 р. Київ. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка тез до друку)

#### **Праці, які додатково відображають наукові результати дисертації**

1. Желтоножський В.О., Желтоножська М.В., Куліч Н.В., **Мизніков Д.Є.,** Сліченко В.І. Фотоактиваційний спосіб визначення активності  $^{10}\text{Be}$ . Патент на корисну модель №142159. Заявка U201907143 від 27.06.2019. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка заявки на отримання патенту)

## Зміст

Анотація .....	2
Вступ.....	17
Розділ 1. Огляд літератури .....	22
1.1. Нікель у конструкційних матеріалах реакторів .....	23
1.2. Берилій у конструкційних матеріалах реакторів .....	30
1.3. Радіологічне значення стронцію та способи його виявлення у зразках... 34	
Розділ 2. Фотоактиваційний метод визначення довгоіснуючих ізотопів радіоізотопів в конструкційних матеріалах АЕС .....	44
2.1. Фотоактиваційна методика виявлення активності $^{10}\text{Be}$ у конструкційних матеріалах активної зони реакторів .....	44
2.1.1. Загальний опис запропонованого методу .....	44
2.1.2. Дослідження заселення $^7\text{Be}$ в реакціях із гальмівними $\gamma$ -квантами в широкому діапазоні величин енергій.....	46
2.1.3. Обговорення запропонованого методу та валідація отриманих результатів.....	53
2.2. Визначення активності довгоживучих ізотопів нікелю та заліза в металевих конструкційних матеріалах АЕС .....	55
2.2.1. Загальний опис запропонованого методу.....	55
2.2.2. Експеримент та валідація розробленого методу.....	57
Розділ 3. Спектрометричний метод визначення активності $^{90}\text{Sr}$ .....	69
3.1. Спектроскопія радіостронцію .....	69
3.2. Методи корекції бета-спектроскопічних досліджень .....	78
Розділ 4. Апробація розроблених методів .....	84
4.1. Дослідження концентрації радіонуклідів на полігонах в ближній зоні ЧАЕС .....	84

4.2 Дослідження міграції радіонуклідів на полігонах, що примикають до 30км зони ЧАЕС .....	91
Висновки .....	103
Перелік посилань.....	105
Список публікацій здобувача.....	114
Праці, в яких опубліковані основні наукові результати дисертації .....	<b>Error!</b>
<b>Bookmark not defined.</b>	
Опубліковані праці апробаційного характеру: ..	<b>Error! Bookmark not defined.</b>
Додаток 1 .....	117



## Вступ

**Актуальність теми.** Важливою проблемою радіоекологічного моніторингу є характеристика радіоактивних відходів у галузі атомної енергетики. Число ядерних реакторів, що виводяться з експлуатації, в усьому світі збільшується у зв'язку з тим, що перші покоління реакторів досягли кінця свого розрахункового терміну експлуатації. Станом на початок 2020 року у світі було виведено з експлуатації чи знаходилось на стадії виведення 186 ядерних енергетичних реакторів, 150 установок ядерного паливного циклу та більше 560 дослідницьких реакторів та критичних збірок. Радіоактивні матеріали, які утворюються при штатній експлуатації реакторів мають наступні специфічні властивості: присутність радіонуклідів з дуже тривалими періодами напіврозпаду; існування значної кількості бета- та рентгенівських випромінювачів; присутність сотень тонн матеріалів, які можна повторно використовувати після відповідної переробки. Для переробки загальної маси конструкційних матеріалів необхідна ретельна характеристика стану радіоактивних речовин, їх кількості та місць зосередження після вивантаження активної зони реактору. Для характеристики активності довгоживучих радіонуклідів, які розпадаються без випромінювання супутніх гамма-квантів використовуються радіохімічні методи. У зв'язку із значним об'ємом опромінених конструкційних матеріалів, лише за допомогою радіохімічних методів неможливо отримати дані про радіонуклідний склад активованих конструкційних матеріалів.

Тому розробка нових нерадіохімічних методів є нагальною проблемою сьогодення для забезпечення безпечної роботи діючих АЕС. З цієї причини напрям досліджень щодо систематизації та поводження з опроміненими конструкційними та радіоактивними матеріалами є актуальним. Особливо це

актуально для народного господарства України, у зв'язку з виведеною з експлуатації Чорнобильською АЕС і штатною експлуатацією енергоблоків інших станцій.

**Зв'язок із науковими програмами та темами.** Розробка нових методів реєстрації радіологічно значимих нуклідів в радіоактивних відходах АЕС (2018-2019 рр.). Дослідження фотоядерних реакцій з вильотом заряджених частинок та гамма-квантів в області деформованих ядер (2020-2021 рр.). Нові методи реєстрації довгоживучих радіонуклідів в конструкційних матеріалах АЕС для їх наступної переробки (2022 р.). Нові нерадіохімічні методи реєстрації радіонуклідів в радіоактивних матеріалах АЕС для їх наступної переробки (2023-2024 рр.).

**Мета і завдання дослідження.** Метою роботи було розроблення нових методів реєстрації довгоживучих радіонуклідів, що розпадаються без випускання гамма-квантів нерадіохімічними методами. Для вирішення поставленої мети було виконано такі завдання:

1) Проведено вимірювання виходів фотоядерних реакцій на атомах  ${}^9\text{Be}$  і  ${}^{10}\text{B}$ , що призводять до утворення  ${}^7\text{Be}$ .

2) За допомогою фотоактиваційного аналізу досліджено елементний аналіз зразків опромінених конструкційних матеріалів, відібраних на другому енергоблоці ЧАЕС.

3) Розроблено метод розрахунку активності довгоіснуючого радіоізоотопу  ${}^{10}\text{Be}$  в опромінених конструкційних матеріалах активної зони реакторів, використовуючи дані про перерізи  $(n,\gamma)$ -,  $(n,p)$ - і фотоядерних реакцій на атомах  ${}^9\text{Be}$  і  ${}^{10}\text{B}$ .

4) Досліджено експериментальні й теоретичні (у рамках програмного коду TALYS1.96) перерізи  $(\gamma,n)$  і  $(\gamma,p)$ -реакцій на атомах  ${}^{58}\text{Ni}$  і  ${}^{59}\text{Co}$ .

5) Розроблено фотоактиваційний метод розрахунку активності довгоіснуючих радіоізоотопів  ${}^{58}\text{Ni}$ ,  ${}^{63}\text{Ni}$  і радіоізоотопу  ${}^{55}\text{Fe}$  в опромінених

металевих конструкційних матеріалах АЕС, відносно активності  $^{60}\text{Co}$ , використовуючи дані про перерізи (n,  $\gamma$ )-, (n,p)- і фотоядерних реакцій на атомах  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{59}\text{Co}$  і  $^{56}\text{Fe}$ .

6) Проведено оцінки впливу неоднорідностей у досліджуваних зразках на ефективність реєстрації гамма-квантів і електронів.

7) Досліджено концентрації антропогенних радіонуклідів у ґрунтах, відібраних у ближній 5-км зоні ЧАЕС та поблизу 30-км зони ЧАЕС, після встановлення другого конфайнмента.

**Об'єкт дослідження:** зразки опромінених конструкційних матеріалів АЕС, тверді та рідкі РАВ АЕС, зразки ґрунту з 5-км зони ЧАЕС, дрібні гризуни та птахи, виловлені у Чорнобильській зоні відчуження.

**Предмет досліджень:** фотоядерні реакції на атомах, що входять до складу конструкційних матеріалів, виходи активностей  $^{90}\text{Sr}$  на пізній фазі аварії на ЧАЕС.

**Методи дослідження.** У роботі використано методи фотоактиваційного аналізу, напівпровідникової гамма-спектроскопії та сцинтиляційної спектроскопії електронів, методи математичного моделювання з використанням програмних кодів GEANT4 і TALYS1.96.

**Наукова новизна** отриманих результатів полягає в тому, що в роботі

1) Уперше отримано дані про виходи фотоядерних реакцій на атомах  $^9\text{Be}$  і  $^{10}\text{B}$  в області енергій до 55 МеВ.

2) Розроблено метод розрахунку активності  $^{10}\text{Be}$  на підставі даних про перерізи (n, $\gamma$ )-, (n,p)- і фотоядерних реакцій на атомах  $^9\text{Be}$  і  $^{10}\text{B}$ .

3) Розроблено метод розрахунку активності ізотопів  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$  і  $^{55}\text{Fe}$  на підставі експериментальних і розрахункових даних про перерізи (n,  $\gamma$ )-, (n,p)- і фотоядерних реакцій на атомах  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{59}\text{Co}$  і  $^{56}\text{Fe}$ .

4) Вивчено вплив неоднорідностей у досліджуваних зразках на розрахунки активності радіонуклідів та отримано напівемпіричні формули їх врахування.

5) Досліджено зміни концентрації радіонуклідів у ґрунтах, відібраних у ближній зоні ЧАЕС після встановлення другого конфайнмента.

6) Досліджено концентрації радіонуклідів у ґрунтах, поблизу 30-км зони ЧАЕС після встановлення другого конфайнмента.

**Практичне значення отриманих результатів.** Розроблені методи визначення активності ізотопів  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$  і  $^{55}\text{Fe}$  у конструкційних матеріалах АЕС були використані для вивчення активності в конструкційних матеріалах знятого з експлуатації 2-го енергоблока ЧАЕС і радіоактивних відходів з інших працюючих АЕС України. Ці методи дадуть змогу розв'язувати завдання з виведення атомних станцій з експлуатації та забезпечувати безаварійну роботу діючих АЕС.

Напівемпіричні формули врахування впливу неоднорідностей у досліджуваних зразках на розрахунки активності радіонуклідів підвищать достовірність визначення активності у зразках довкілля.

**Особистий внесок** здобувача полягає в безпосередній участі на всіх етапах робіт: в опроміненні та відборі досліджуваних зразків, вимірі спектрів гамма-променів та електронів, математичному аналізі експериментальних даних та їхньому узагальненні, розробці методів розрахунку активності довгоживучих радіоізотопів у конструкційних матеріалах АЕС.

**Апробація результатів дисертації.** Основні результати дисертаційної роботи доповідались на наступних наукових конференціях:

1. Щорічні конференції Інституту ядерних досліджень НАН України 2019-2022 гг.

2. VII Terrestrial Radioisotopes in Environment International Conference on Environmental Protection. 10-13 August 2020. Veszprém, Hungary.

**Публікації:** За матеріалами дисертаційного дослідження опубліковано 11 наукових праць: 7 статей у виданнях, які індексуються в наукометричній базі даних SCOPUS, 1 стаття в українському науковому журналі та 3 тез доповідей у матеріалах наукових конференцій. Отримано 2 патента на корисну модель.

**Структура дисертації.** Дисертаційна робота складається з вступу, чотирьох розділів (огляд літератури, три розділи з результатами власних досліджень, їх обговоренням та узагальненням результатів), висновків, списку використаних джерел, що містить 86 джерел, та одного додатку. Дисертаційну роботу викладено на 120 сторінках, в ній представлено 28 рисунків та 11 таблиць.

## Розділ 1. Огляд літератури

### Вступ

В режимі нормальної експлуатації АЕС утворюються десятки тон радіоактивних матеріалів (сорбенти, різні металічні конструкції, відходи). Для забезпечення нормальної роботи АЕС необхідно відділити радіоактивні матеріали з активністю певних радіонуклідів, що дозволить перевести ці матеріали у звичайні відходи, які не вимагатимуть контролю спеціальних органів. Для цього необхідно виміряти ультранизькі активності в досліджуваних зразках. При використанні традиційних методів необхідно використовувати високовартісні радіохімічні лабораторії, які, як правило, не забезпечують можливості масового вимірювання окремих радіонуклідів. Тому розробка нових нерадіохімічних методів є нагальною проблемою сьогодення для забезпечення безпечної роботи діючих АЕС.

Станом на початок 2020 року у світі було виведено з експлуатації чи знаходилось на стадії виведення 186 ядерних енергетичних реакторів, 150 установок ядерного паливного циклу та більше 560 дослідницьких реакторів та критичних збірок [1]. При цьому 440 одиниць дослідницьких установок вже повністю виведені з експлуатації. З цієї причини напрям досліджень щодо систематизації та поводження з опроміненими конструкційними та радіоактивними матеріалами є актуальним. Особливо це стосується України після повного виведення з експлуатації ЧАЕС. Загальна кількість відходів різних матеріалів при виводі з експлуатації будь-якого реактора може досягати сотень тисяч тон. Радіоактивні матеріали, які утворюються при штатній експлуатації реакторів мають наступні специфічні властивості: присутність радіонуклідів з дуже тривалими періодами напіврозпаду; існування значної кількості бета- та рентгенівських випромінювачів; присутність величезної кількості матеріалів, які можна повторно використовувати після відповідної

переробки [2]. Для переробки усїєї цієї маси конструкційних матеріалів необхідна ретельна характеристика стану радіоактивних речовин, їх кількості та місць зосередження на блоці після вивантаження активної зони та видалення з майданчику відпрацьованого палива. Для характеристики активності довгоживучих радіонуклідів, які розпадаються без випромінювання супутніх гамма-квантів використовуються радіохімічні методи. У зв'язку із величезним об'ємом опромінених конструкційних матеріалів, лише за допомогою радіохімічних методів неможливо отримати дані про радіонуклідний склад активованих конструкційних матеріалів.

Ціллю даної роботи є використання фотоактиваційних методів з метою нерадіохімічної характеристики опромінених конструкційних та радіоактивних матеріалів для наступної їх переробки. При цьому завданням роботи є проведення досліджень фотоядерних реакцій на ядрах берилія, бора, заліза, нікеля та кобальта, які входять до складу конструкційних матеріалів АЕС.

### **1.1. Нікель у конструкційних матеріалах реакторів**

В процесі роботи реактора АЕС під впливом опромінення нейтронами активуються конструкційні матеріали, теплоізоляційні шахти та внутрішні шари бетону. Нікель та залізо широко використовується в нержавіючих сталях та сплавах конструкційних матеріалів АЕС [3,4]. Вміст нікеля в сталях, які використовуються в конструкційних матеріалах реакторних установок, складає в середньому, не менше 8% від загальної маси, але може досягати й 20-30% [5]. На фоні загальної маси конструкційних матеріалів енергоблока маса нікеля може складати десятки тон. В природній ізотопній суміші нікеля вміст  $^{58}\text{Ni}$  складає 68.1 %. Таким чином при штатній експлуатації реактора в сталевих конструкційних матеріалах напрацьовується довгоживучий радіоізотоп  $^{59}\text{Ni}$  ( $T_{1/2} = 7.6 \times 10^4$  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 ізотопів заліза з  $^{54}\text{Fe}$ , вміст якого у природній суміші – 5.8%, напрацьовується  $^{55}\text{Fe}$  з  $T_{1/2} = 2.73$  років, котрий також розпадається внаслідок електронного захвату, який супроводжується лише характеристичним випромінюванням.

Серії розрахунків, проведені для різних типів реакторів [2] показали, що більша частина накопичених продуктів активації реактора знаходиться в кожусі активної зони, і лише декілька радіоізотопів дають домінуючий внесок в загальний рівень активності. Було встановлено, що  $^{60}\text{Co}$  та  $^{55}\text{Fe}$  домінують в загальній активності в часовому діапазоні від 5 до 20 років після зупинки реактора. В той же час в 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 радіоізотопів кобальта та нікеля.

Методи виділення, виготовлення рахункових зразків і вимірювання довгоживучих радіонуклідів нікелю аналогічні звичайним аналітичним процедурам і використовують ті самі принципи та підходи. З огляду на те, що  $^{63}\text{Ni}$  є чистим бета-випромінювачем, а  $^{59}\text{Ni}$  випромінює низькоенергетичне рентгенівське випромінювання, вимірювання активності приготованого лічильного зразка радіометричним способом проводять як з використанням бета-лічильників/рідких сцинтиляційних спектрометрів для вимірювання бета-випромінювання, так і з використанням напівпровідникових спектрометрів для вимірювання виходу рентгенівського випромінювання [6–9].

Методи, що використовуються для хімічного виділення, включають співосадження, рідинну екстракцію, іонний обмін і екстракційну



хроматографію. У деяких випадках поєднують два або більше з цих методів. Так само, як і для ізотопів плутонію і стронцію, у зразок додають трасер, щоб врахувати неминучу втрату зразка під час розділення.

Проведені аналізи активності РАВ АЕС і опромінених конструкційних матеріалах визначають, крім  $^{59}\text{Ni}$  і  $^{63}\text{Ni}$ , інші продукти ділення й активації, типові для ядерних відходів, включно з альфа-випромінювачами [8,10–13].

Тому для визначення активності радіонуклідів нікелю використовують чутливий метод послідовного аналізу радіонуклідів у пробах радіоактивних відходів, аналітичний протокол якого детально викладено в роботі [10]. Авторами розробленого методу радіонукліди  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{235}\text{U}$  і  $^{238}\text{U}$  визначали методом альфа-спектрометрії, тоді як  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{55}\text{Fe}$  і  $^{63}\text{Ni}$  за допомогою рідкого сцинтиляційного спектрометра, а  $^{59}\text{Ni}$  - методом низькоенергетичної гамма-спектрометрії. Як трасери автори використовували  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{243}\text{Am}$  і  $^{232}\text{U}$ , а як носії - Sr (2 мг/мл), Fe (3 мг/мл) і Ni (2 мг/мл).

Радіохімічна процедура описаного методу складалася з трьох стадій, що виконуються за допомогою аніонообмінної хроматографії, методів осадження та екстракційної хроматографії з використанням смол TRU, Sr Resin і Ni Resin. На першому етапі було проведено виділення  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  і  $^{241}\text{Pu}$  з матриці методом іонообмінної хроматографії на аніонообмінній колонці. Поділ ґрунтується на утворенні аніонних комплексів Pu(IV) з  $\text{NO}_3^-$  або  $\text{Cl}^-$  в концентрованих  $\text{HNO}_3$  або  $\text{HCl}$ . На другому етапі елюат з обмінної колонки використовували для розділення Am і Sr шляхом осадження зі щавлевою кислотою від Fe, U і Ni, що залишилися у фільтраті. Виділення америцію і Sr проводили з використанням комерційно доступних смол, TRU і Sr Resin відповідно. Ці смоли зазвичай використовують і для відокремлення актинідів як групи від матриці, відокремлення Sr від матриці та послідовне розділення окремих актинідів і Sr. На третьому етапі Ni був відокремлений соосадженням

від Fe і U. Після цього Fe і U розділяли іонообмінною хроматографією з використанням аніонообмінної колонки, а Ni виділяли за допомогою колонки для екстракційної хроматографії зі смолою Ni Resin від Eichrom Technologies, Inc.

У роботі [14] запропоновано свій аналітичний метод визначення  $^{63}\text{Ni}$  і  $^{55}\text{Fe}$  у зразках ядерних відходів. Для відокремлення  $^{63}\text{Ni}$  і  $^{55}\text{Fe}$  від радіонуклідів, що заважають, а також один від одного використовували осадження гідроксидом. Виділений  $^{63}\text{Ni}$  додатково очищали екстракційною хроматографією. Виділення Fe і Ni при осадженні гідроксидом з використанням  $\text{NH}_4\text{OH}$  становило близько 99,9% і 21,9% відповідно. Автори [15] розробили методику послідовного розділення для визначення  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{59/63}\text{Ni}$  в різних радіоактивних відходах. Для індивідуального розділення радіонуклідів були використані іонообмінна та екстракційна хроматографія. Однак виділення нікелю на колонці з катіонообмінною смолою було недостатньо селективним, тому подальше очищення нікелю проводили шляхом осадження диметилгліоксимом.

Добре видно, що подібні методи прямих вимірювань, як правило, важко і недоцільно використовувати для характеристики великої кількості опромінених конструкційних матеріалів або для різноманітних за фізико-хімічними формами і радіонуклідним складом радіоактивних відходів АЕС.

Альтернативний підхід, який пропонує використовувати МАГАТЕ [16], полягає у використанні взаємозв'язку між деякими ключовими радіонуклідами, які одночасно генеруються в реакторі, що легко вимірюються, такими як певні гамма-випромінювачі ( $^{60}\text{Co}$  і  $^{137}\text{Cs}$ ), та цільовими радіонуклідами (бета- і рентгенівські випромінювачі), для одержання інформації про їхню концентрацію. Метод кореляційних коефіцієнтів (scaling factor method, SF) є широко використовуваним підходом для оцінки подібних нуклідів. Цей метод ґрунтується на побудові кореляції між радіонуклідами, які

легко виміряти (easy to measure, ETM), та радіонуклідами, які неможливо виміряти методами реєстрації гамма-випромінювання (difficult to measure, DTM), що часто представлені бета- та альфа-випромінюючими нуклідами, наприклад, такими, як  $^{63}\text{Ni}$ , які присутні в цих радіоактивних відходах. Активність нуклідів DTM у відходах оцінюють шляхом вимірювання гамма-випромінювання радіонуклідів ETM і шляхом множення концентрацій ключового нукліда на кореляційні коефіцієнти (SF), розраховані на основі даних, отриманих під час відбору проб і радіохімічного аналізу.

Міжнародний стандарт ISO 21238:2007 [17] містить рекомендації щодо загальної методології емпіричного визначення кореляційних коефіцієнтів для оцінювання радіоактивності цільових радіонуклідів DTM у радіоактивних відходах низького та середнього рівня активності.

Під час розгляду різних чинників, що впливають на співвідношення концентрацій між цільовими радіонуклідами та ключовими радіонуклідами, використовують дані радіохімічного аналізу, отримані під час вивчення реальних радіоактивних відходів та опромінених конструкційних матеріалів кожної конкретної реакторної установки, за допомогою розрахунків з використанням програмних кодів GEANT4/MCNP або за допомогою комбінації обох методів, також використовуються інші радіологічні дані атомної електростанції. Обов'язковими факторами, що впливають на вибір пар ключових і цільових радіонуклідів (ETM і DTM) є:

- схожість у механізмах напрацювання;
- схожість у транспортній (міграційній) поведінці всередині систем станції.

Для цього методу важливим є вибір відповідних кореляційних пар. Для довгоживучого ізотопу  $^{63}\text{Ni}$  ключовим радіонуклідом є  $^{60}\text{Co}$ , який також утворюється в результаті активації, має подібні з ним фізико-хімічні характеристики та шляхи міграції. Якщо ця умова дотримується, розрахунки

дають оцінки, що розумно узгоджуються з виміряними значеннями радіохімічними методами.

На першому етапі, важливо оцінити і дослідити характерні відмінності між різними реакторами і властивості (наприклад, однорідність) радіоактивних відходів тощо. Деякі важливі характеристики реакторів, необхідні для коректного використання методу:

- тип реактора;
- матеріали компонентів реактора;
- історія характеристик завантаженого палива;
- механізм утворення радіонуклідів;
- варіанти поводження з відходами на станції;
- зміни в хімічному складі теплоносія реактора;
- -експлуатаційний стан станції та графік зупинок.

На цьому етапі вивчаються характеристики станції та інші фактори, такі як шляхи транспорту (міграції) відходів, що впливають на співвідношення між цільовими та ключовими радіонуклідами та оцінюються класифікації можливих кореляційних пар на основі їхньої мінливості через ці фактори. Крім того, розробляється план відбору проб, що включає приміщення атомної електростанції, шляхи транспортування (міграції) відходів і діапазон активностей відходів.

На другому етапі здійснюється відповідний відбір зразків відповідно до плану відбору проб, розробленого під час досліджень. Відбирають фрагменти конструкційних матеріалів, зіскрібки з обладнання, аліквоти рідин - усіх типів радіоактивних відходів (репрезентативні проби), і за допомогою радіохімічного аналізу збирають базу даних щодо активності радіонуклідів, що містяться, для подальшого аналізу.

На третьому етапі, використовуючи дані радіонуклідного аналізу, вивчають кореляцію між цільовими радіонуклідами і ключовими радіонуклідами за допомогою логарифмічних діаграм розсіювання. Групи кореляційних пар вивчаються з урахуванням критичних факторів, вивчених на етапі 1. Застосовність цього методу для конкретної пари визначається на підставі того, чи існує спостережувана кореляція між концентраціями цільових нуклідів і обраними ключовими нуклідами.

Оскільки основна передумова полягає в тому, що дані мають логарифмічно нормальний розподіл і найвідповіднішим буде середнє геометричне або середнє логарифмічне значення, то якщо на діаграмах розсіювання немає візуально очевидної кореляції, дані слід розділити за типами відходів (місцем відбору та ін. факторами) та вивчити детальніше. У цьому разі може виявитися необхідним обчислити репрезентативне середнє значення кореляційного фактора для кожного типу відходів. На просте середнє арифметичне або середнє значення сильно впливають максимальні значення активності і через це воно може бути надмірно консервативним [18].

Кореляційні коефіцієнти можуть визначатися, наприклад, із середнього логарифмічного відношення цільового радіонукліда до ключового, з регресійного аналізу парних даних або з інших методів розрахунку. Це призводить до отримання набору конкретних кореляційних коефіцієнтів радіонуклідів для різних категорій відходів або типів відходів реактора.

Далі активність ключових нуклідів у кожній групі відходів, що підлягають аналізу, визначають за допомогою гамма-спектрометрії, а потім активність цільових радіонуклідів розраховують на основі отриманого набору кореляційних коефіцієнтів для кожного типу відходів.

На практиці доступні ключові нукліди, особливо з досить тривалим періодом напіврозпаду, обмежені тільки  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  і  $^{125}\text{Sb}$ . Таким чином, лише деякі з цільових нуклідів можуть бути логічно зіставлені з наявними

ключовими нуклідами за подібністю механізмів їхнього утворення та фізико-хімічними характеристиками.

Для інших чистих бета-випромінювачів методологія кореляційних коефіцієнтів перетворюється на суто емпіричні співвідношення, які можуть бути застосовані лише для певного приміщення/конструкційного матеріалу конкретного реактора.

Для довгоживучого ізотопу  $^{63}\text{Ni}$  ключовим радіонуклідом є  $^{60}\text{Co}$ , який також утворюється в результаті активації і має подібні з ним фізико-хімічні характеристики. Однак з огляду на різний вихідний вміст нікелю та кобальту в конструкційних матеріалах основа методу все одно залишається емпіричною. Тобто встановити надійну кореляцію між  $^{63}\text{Ni}$  і  $^{60}\text{Co}$  можна тільки для конструкційних матеріалів певного типу конкретного реактора.

Добре видно, що подібні методи прямих вимірювань, як правило, важко і недоцільно використовувати для характеристики великої кількості опромінених конструкційних матеріалів або для різноманітних за фізико-хімічними формами і радіонуклідним складом радіоактивних відходів АЕС.

## **1.2. Берилій у конструкційних матеріалах реакторів**

Берилій унікальний своєю легкою вагою, винятковою жорсткістю, гарною теплопровідністю і стійкістю до кислот, що окислюють, тому він широко поширений у низці установок – від аерокосмічних апаратів до ядерних реакторів [19]. Серед легких металів берилій має найвищу температуру плавлення ( $\sim 1290$  °C для металу і  $\sim 2550$  °C для оксиду берилію ( $\text{BeO}$ )), що важливо для його застосування при високих робочих температурах. Берилій є відмінним сповільнювачем нейтронів через малу масу ядра берилію. Крім того, відома ядерна реакція  $^9\text{Be}(n, 2n)^8\text{Be}$  призводить до розмноження нейтронів.

Завдяки цим властивостям і з урахуванням його високої жаростійкості і теплоємності стабільний берилій  $^9\text{Be}$  використовується в конструкційних матеріалах відбивачів і в оболонках ТВЕЛів на атомних електростанціях. Однак, після тривалої експлуатації станцій у конструкційних матеріалах активної зони реактора і прилеглих приміщеннях виявляється  $^{10}\text{Be}$ , з періодом напіврозпаду  $T_{1/2}=1,6\times 10^6$  років. За такого тривалого періоду напіврозпаду, потрапляючи до організму, берилій відкладається або в нирках, або в кістках, де заміщає магній. З огляду на його токсичність, яскраво виражену канцерогенну дію і високу радіобіологічну небезпеку, необхідний ретельний оперативний контроль за його вмістом у відходах, конструкційних матеріалах і приміщеннях атомних станцій. Технологічним матеріалом в атомних реакторах є також борна кислота [20,21]. А при опроміненні тепловими нейтронами бору на  $^{10}\text{B}$  відбувається реакція (n,p) з перерізом, що дорівнює перерізу (n,  $\gamma$ )-реакції на  $^9\text{Be}$ . Цей канал також призводить до утворення  $^{10}\text{Be}$ .

Проводилися тільки окремі якісні оцінки кількості напрацьованого активованого берилію, що потребує захоронення, оскільки детальних подробиць конструкцій багатьох реакторів, у яких використовується берилій, у широкому доступі немає, а частота заміни деталей, що містять берилій, залежить від індивідуальної історії експлуатації кожного окремого реактора.

Зважаючи на високу токсичність берилію, основними методами його визначення є атомно-емісійний метод з індуктивно зв'язаною плазмою (ICP-AES) [22], атомно-абсорбційна спектрометрія з електротермічною атомізацією в графітовій кюветі (GFAAS) і флуориметричний метод [23,24].

Аналітичні методи вимагають підготовку зразків шляхом кислотного розщеплення за участю однієї або декількох кислот у поєднанні з нагріванням. Для цього використовують найрізноманітніші протоколи розщеплення, що ускладнює порівняння аналітичних результатів у різних лабораторіях, навіть якщо використовується один і той самий прилад. Тому було опубліковано

кілька стандартизованих процедур, що описують способи розчинення берилію [25], але міжлабораторних даних щодо ефективності вилучення берилію з вогнетривких матеріалів за допомогою зазначених методів поки що не отримано.

Зразки перед інструментальним аналізом розкладаються з використанням комбінацій соляної, фтористоводневої, азотної та/або сірчаної кислоти і перекису водню за підвищеної температури для переведення оксиду берилію або металевого берилію у водорозчинний стан [26]. Широко рекомендуються методи розкладання на гарячій плиті або в мікрохвильовій печі, але ультразвукова екстракція є варіантом, який можна використовувати з розкладанням плавиковою кислотою. У методі флуоресценції використовується водна 1% екстракція біфториду амонію [23,24].

Для концентрування берилію раніше використовували кілька методів, включно з соосадженням та іонним обміном [27]. Останніми роками було показано, що екстракційна хроматографія є швидким і надійним методом виділення і концентрування низки радіонуклідів та іонів металів із широкого спектра матриць [28]. З кількох екстракційних хроматографічних матеріалів найсприятливіші характеристики для виділення берилію виявив матеріал під назвою Dіrex, що містить рідкий екстрагент дифосфонової кислоти, сорбований на кульках акрилового ефіру [28–30]. Повну характеристику смоли Dіrex Resin для виділення берилію можна знайти в окремій публікації [31].

Нині у світовій практиці найпоширенішим аналітичним методом визначення берилію є атомно-емісійна спектроскопія з індуктивно зв'язаною плазмою [22]. Після проведених процедур виділення берилій визначають за лініями 313,107 і 313,034 нм в атомно-емісійному спектрі берилію. Хоча цей метод є одним із найбільш високочутливих методів виявлення берилію, ціла низка елементів може спричиняти значні спектральні перешкоди.



Метод атомної флуоресценції базується на реакції берилію з флуоресцентним індикатором моріном, унаслідок якої утворюються сполуки, що флуоресціюють при 465 нм. Визначенню берилію заважають іони, що утворюють нерозчинні гідроксиди в лужному середовищі. Проте результати міжлабораторної валідації показали, що цей метод має чутливість, порівнянну з ICP-AES, і на відміну від останнього менш схильний до інтерференційних ефектів [23,24].

Також в окремих роботах для визначення берилію в повітрі рекомендується спектрографічний метод, з межами виявлення 0,0005-0,008 мкг/м<sup>3</sup> і точністю ~25%. Існують і колориметричні методи, засновані на реакції Be<sup>2+</sup> з фосфозано Р з чутливістю 0,1 мкг на зразок [26,32,33]. Однак, крім того, що всі ці методи вирізняються складними радіохімічними маніпуляціями, основна проблема полягає в тому, що в активній зоні реактора <sup>10</sup>Be утворюється в реакції <sup>9</sup>Be(n, γ)<sup>10</sup>Be, і виділити цей радіоізоотоп із матриці стабільного ізоотопу <sup>9</sup>Be для визначення його активності в конструкційних матеріалах вкрай складно. Тому, як і для довгоживучих ізоотопів нікелю, МАГАТЕ рекомендує використовувати непрямий метод вимірювань - метод кореляційних коефіцієнтів, у цьому разі як кореляційну пару використовують <sup>94</sup>Nb [16]. Однак, як уже обговорювалося раніше, цей метод не є універсальним, необхідне проведення ретельних досліджень для встановлення кореляційного зв'язку. Можна підсумувати, що розробка методів, які дають змогу обійти складні радіохімічні процедури, особливо з огляду на величезний обсяг РАВ на АЕС, є актуальним завданням.

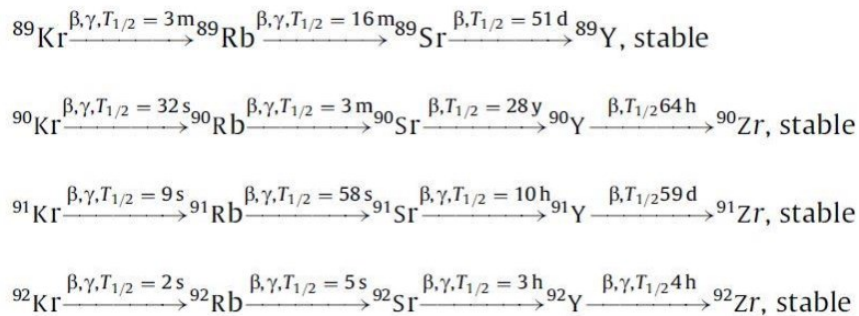
Для розв'язання цієї проблеми розроблено фотоактиваційну методику, що ґрунтується на визначенні концентрації <sup>9</sup>Be і <sup>10</sup>B у конструкційних матеріалах через фотоядерні реакції.

### 1.3. Радіологічне значення стронцію та способи його виявлення у зразках

Ізотопи радіостронцію присутні в навколишньому середовищі в глобальному масштабі від випробувань атмосферної ядерної зброї та в місцевому масштабі від санкціонованих або несанкціонованих викидів від ядерних об'єктів та ядерних аварій.  $^{90}\text{Sr}$  є одним із найнебезпечніших радіонуклідів через його тривалий фізичний та біологічний період напіврозпаду, накопичення в кістковій тканині та високоенергетичні бета-частинки з його дочірнього нукліда  $^{90}\text{Y}$ , що призводить до пошкодження кісткового мозку [34]. Детальні радіоекологічні дослідження, проведені після аварії на Чорнобильській АЕС, виявили несподівано високу рухливість радіостронцію в навколишньому середовищі порівняно з багатьма іншими радіонуклідами, наприклад, до ізотопів Cs, які зазвичай добре утримуються глинистими мінералами [35]. Спостерігаються високі коефіцієнти переходів ґрунт-рослина. Зокрема, у березах "Рудого Лісу", що містять  $^{90}\text{Sr}$  у 15-25 разів більше, ніж  $^{137}\text{Cs}$ , водночас у ґрунтах концентрації  $^{137}\text{Cs}$  у 2-3 рази більші, ніж  $^{90}\text{Sr}$  [36].

Термін "радіостронцій" використовується для двох ізотопів стронцію, тобто  $^{90}\text{Sr}$ , який представляє собою довгоіснуючий нуклід із періодом напіврозпаду 28,8 років, що розпадається завдяки емісії бета-частинок (максимальна енергія бета 545 кеВ) до радіоактивного  $^{90}\text{Y}$ , і  $^{89}\text{Sr}$ , що має період напіврозпаду 50,6 днів і розпадається завдяки емісії бета-частинок (максимальна енергія бета 1495 кеВ) до стабільного  $^{89}\text{Y}$  [37]. Існують інші радіоактивні ізотопи стронцію з короткими періодами напіврозпаду, наприклад.  $^{91}\text{Sr}$ ,  $^{92}\text{Sr}$ , які випускають як бета-частинки, так і гамма-випромінювання. Тому їхня реєстрація проводиться за допомогою гамма-спектроскопії і не викликає особливих проблем. Ізотопи радіостронцію отримують при відносно високих виходах під час поділу ядер, наприклад,

кумулятивний вихід поділу  $^{90}\text{Sr}$  у реакції теплових нейтронів  $^{235}\text{U}$  становить 5,88%, а  $^{239}\text{Pu}$  – 2,10% [38]. Основні процеси виробництва і розпаду підсумовуються в таких ланцюжках:



Зазначимо, що саме найдовгоживучіший ізотоп радіостронцію,  $^{90}\text{Sr}$ , викликає серйозну стурбованість щодо забруднення довкілля, інші ізотопи стронцію та ітрію також утворюються з навколишнім середовищем під час ядерних вибухів або аварій на реакторах. Активність короткоживучих Sr і Y-нуклідів може бути на 1-2 порядки вищою, ніж у  $^{90}\text{Sr}$ . Саме з цієї причини аналітики стикаються з важким завданням точного і швидкого визначення  $^{90}\text{Sr}$  у надзвичайних ситуаціях. Надалі ми будемо використовувати термін "радіостронцій" для  $^{89}\text{Sr}$  і  $^{90}\text{Sr}$ , не беручи до уваги короткоіснуючі ізотопи Sr, які розпадатимуться через кілька днів після сценарію випуску.

Стронцій є лужноземельним металом. Стронцій (Sr) - елемент 2 групи періодичної системи. Природний стронцій належить до мікроелементів і складається із суміші чотирьох стабільних ізотопів  $^{84}\text{Sr}$  (0.56 %),  $^{86}\text{Sr}$  (9.96 %),  $^{87}\text{Sr}$  (7.02 %),  $^{88}\text{Sr}$  (82.0 %). За фізико-хімічними властивостями він є аналогом кальцію і в геохімічних процесах його супутником. Кларковий вміст у земній корі оцінено як 340 - 10<sup>-4</sup> %. Стронцій міститься в усіх рослинних і тваринних організмах у кількості 10<sup>-2</sup> ÷ 10<sup>-3</sup> % сухої маси. В організмі дорослої людини міститься близько 0.3 г стронцію. Майже весь він знаходиться в скелеті. На інші органи припадає лише 3.3 мг. Добове надходження з їжею і водою

становить близько 1.9 мг. Виводиться з організму з фекаліями - 1.5 мг і сечею - 0.34 мг.

Зразки екологічного походження, наприклад, ґрунти, кістки, молоко, часто містять природні Sr і зазвичай інші лужноземельні метали в кількостях, що перевищують кількість радіостронцію на порядки. Основною проблемою радіохімічної обробки є відокремлення Sr від компонентів лужноземельної матриці, лужноземельних радіонуклідів, наприклад,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  та кількох інших можливих перешкод, найбільш важливими з яких є Pb, Y-нукліди. У мас-спектрометрії найбільш важлива ізобарична інтерференція  $^{90}\text{Sr}$  зі стабільним  $^{90}\text{Zr}$ . Стронцій аналогічно до інших лужноземельних елементів утворює двовалентні катіони у водних розчинах і має багато нерозчинних сполук і стабільних хелатних комплексів. Процедури радіохімічного розділення часто ґрунтуються на осадженні та утворенні комплексу. Нітратні солі, осаджені з концентрованої азотної кислоти, зазвичай використовують для відділення Sr від великих кількостей Ca.

З  $^{90}\text{Sr}$  завжди в рівновазі перебуває  $^{90}\text{Y}$ , який під час розпаду також випускає тільки електрони. Ітрій є перехідним металом, що належить до третьої підгрупи періодичної таблиці. Загалом, зразки довкілля містять відносно невелику кількість ітрію та елементів, хімічно подібних до Y, наприклад, La, Sc, тому відокремлення Y зазвичай потребує менше сил, ніж відокремлення Sr від великих кількостей Ca або Ba.

Найпоширенішими способами визначення активності радіостронцію в різних матрицях є радіохімічні методи [34]. У процесі радіохімічних процедур відбувається виділення  $^{89,90}\text{Sr}$  і  $^{90}\text{Y}$ . Зазначимо, що частину таких процедур необхідно виконувати і при спектроскопічних дослідженнях.

У Посібнику з процедури HASL-300 Лабораторії з вимірювань довкілля (1997) описано докладне озолення, повний метод розчинення і вилуговування для визначення радіостронцію в різних матрицях [39].

Існують такі стандартні процедури щодо розкладання зразка [25,40–44]: стандарт ASTM C1342-96 стосується розкладання плавленням твердих матеріалів, стандарт ASTM D1971-95 описує конфорку та конвекційне перетравлення води та твердих зразків азотною та соляною кислотами, ASTM стандарт D4309-91 відноситься до мікрохвильового перетравлення за допомогою гідрохлорної та азотної кислот для визначення металів і ґрунтових вод. А також існує US EPA Method 3052, в якому обговорюється мікрохвильове нагрівання, закриття сушіння, золи, біолокальних тканин, олій, забруднених нафтою ґрунтів, відкладень, шламів і ґрунтів [45,46].

Для ґрунтів, осадів і мінеральних проб попередня обробка означає сушіння, гомогенізацію, просіювання, осідання при помірно високій температурі (500-600 °C) з подальшим вологим хімічним руйнуванням. Більш високі температури можуть спричинити втрати Sr або перетворювати Sr-сполуки, що вилуговуються, на вогнетривкі.

Після аварії на Чорнобильській АЕС, щоб задовольнити численні вимоги до швидких аналітичних процедур, нові процедури були запропоновані в роботах [14-18], що передбачали використання катіонітів у періодичних або колоночних методах для цілей концентрування. Хоча процедура має однозначні переваги щодо швидкості, вона має серйозні недоліки в якості споживання великої кількості смоли. Жир і білок можуть спричинити засмічення колон, запобігти повторному використанню смоли та зменшити відновлення Sr.

Важливим етапом є внесення носіїв і мінералізація проб. Носіями радіоактивних ізотопів зазвичай слугують стабільні ізотопи, які додають у проби у вигляді розчинів тих чи інших солей. Якщо з проби припускають виділити єдиний ізотоп, хімічна сполука елемента-носія не має жодного значення. Так, для виділення  $^{90}\text{Y}$  можна використовувати як носій будь-які

солі ітрію: хлорид, нітрат, сульфат тощо. Однак іноді потрібне виділення з проби двох і більше радіонуклідів. У такому разі аніони солей-носіїв мають бути підібрані так, щоб їх введення в розчин не заважало аналізу. Наприклад, якщо з проби має бути виділено  $^{140}\text{Ba}$ , нерозумно вводити іон  $\text{SO}_4^{2-}$  з будь-яким із носіїв інших нуклідів, оскільки це призведе до передчасного і некілкісного осадження сульфату барію. У такому разі можна змінити схему послідовного виділення нуклідів так, щоб  $^{140}\text{Ba}$  з носієм був виділений першим у вигляді сульфату за допомогою сірчаної кислоти. Однак простіше приготувати розчини всіх носіїв у вигляді нітратів (хлоридів). Нітрат із хлориду часто можна отримати простим випарюванням солі з азотною кислотою. Так, наприклад, із хлориду цезію можна добути нітрат цезію, помістивши сіль у порцелянову чашку, змочивши її невеликою кількістю концентрованої кислоти та випарувавши на киплячій водяній бані насухо  $\text{CsCl} + \text{HNO}_3 = \text{CsNO}_3 + \text{HCl}$ .

Так само можна отримати з нітрату хлорид цезію, якщо випарювання виконати з соляною кислотою. У будь-якому з цих випадків вільна кислота, що виділяється з солі, випаровується під час нагрівання і заміщується кислотою, що додається в надлишку. Таке перетворення неможливе, якщо кислота, сіль якої є в лабораторії, випаровується важче, ніж кислота, якою обробляють сіль. Наприклад, сульфат цезію не можна перетворити на хлорид або нітрат цезію простою обробкою відповідними кислотами.

Використання носіїв значно спрощує аналіз, даючи змогу застосовувати для виділення нуклідів реакції осадження важкорозчинних солей і контролювати повноту виділення.

Кількість введеного носія залежить від прийнятих умов вимірювання радіоактивності препарату. Як правило, слід прагнути до зменшення кількості носія, оскільки це призводить до отримання препарату з вищою питомою

активністю і до відповідного зменшення коефіцієнта зв'язку між швидкістю лічби й активністю препарату. Кількість носія не залежить від величини проби. Наприклад, під час виділення  $^{90}\text{Y}$  із проби води кількість носія має бути однаковою як для проб об'ємом 500 л, так і для проб об'ємом 1 л. Якщо об'єм взятої на аналіз проби занадто великий, можна додати колекторний носій, від якого носій визначуваного ізотопу легко відокремити в наступних хімічних операціях.

Зазвичай кількість носія вибирають такою, що дорівнює 30-60 мг у перерахунку на вагову форму, у вигляді якої носій виділяють із проби і зважують. При вимірюванні активності на стандартних алюмінієвих підкладках площею 2,5 кв. см товщина препарату виявляється при цьому рівною 12-24 мг/кв. см.

Носій має бути введений у пробу до початку її хімічної обробки, тобто до мінералізації, що запобіжить неконтрольованій втраті ізотопу.

Зазвичай аналізовані проби містять у своєму складі органічні речовини, які мають бути зруйновані без втрати радіонукліда на етапі підготовки проби до аналізу з метою отримання вихідного гомогенного розчину. Руйнування органічних речовин проводять, як правило, шляхом сухого або мокрого озолення. Вибір способу мінералізації залежить від маси (об'єму) проби, її фізичного стану (рідина, тверде тіло), складності окиснення, леткості сполуки визначуваного нукліда тощо. Мокре озолення вимагає більших витрат праці та часу, ніж сухе, але в результаті отримують легкорозчинний залишок мінеральних солей. Втрати визначуваної речовини при цьому, як правило, мінімальні.

Розглянемо детальніше основні методики з вимірювання електронів із розпаду радіостронція [38]. Бета-частинки можуть бути виявлені різними ядерними детекторами, включно з детекторами іонізації газу (пропорційні та

лічильники Гейгера Мюллера), твердотільними та рідкими сцинтиляційними детекторами, напівпровідниковими детекторами та черенківськими лічильниками. Тип детектора в основному визначає метод вимірювання і спосіб розрахунку результатів. Для обчислення активності  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{89}\text{Sr}$ , загалом, потрібне вимірювання двох швидкостей рахунку. Активність  $^{90}\text{Y}$  завжди може бути обчислена з активності материнського  $^{90}\text{Sr}$ . Щоб визначити два невідомі параметри, потрібні або два незалежні вимірювання одного й того самого джерела в різні часові інтервали, або після вимірювання джерела Sr, дочірній  $^{90}\text{Y}$  можна виділити і підрахувати. Пара незалежних даних може бути отримана простим вимірюванням Sr-Y-го джерела за бета-спектрометрією, використовуючи щонайменше два вікна.

Якщо  $^{89}\text{Sr}$  відсутній і тільки  $^{90}\text{Sr}$  присутній у зразку, активність  $^{90}\text{Sr}$  визначається такими способами [34]:

1. Sr виділяється радіохімічно і вимірюється відразу ж для відносно короткого часу вимірювання, нехтуючи внеском  $^{90}\text{Y}$ . Це типовий метод швидкого визначення  $^{90}\text{Sr}$ , який має власне джерело помилки.

2. Sr розділяється радіохімічно і після двотижневого періоду розпаду, коли він приходить у рівновагу з  $^{90}\text{Y}$ , проводиться вимірювання. Ефективність рахунку визначається рівноважним стандартом  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$ . Цей метод тривалий, але точний. Це рекомендований метод розрахунку відповідно до стандарту ISO 18589-4: 2009 [47].

3. Y відокремлено, і  $^{90}\text{Y}$  вимірюється відразу ж після його відокремлення від  $^{90}\text{Sr}$ , який перебував у тимчасовій рівновазі з  $^{90}\text{Y}$  під час відокремлення. Це рекомендований метод розрахунку відповідно до стандарту ISO 18589-4:2009.

Якщо  $^{89}\text{Sr}$  і  $^{90}\text{Sr}$  присутні у зразку, то активність визначають різними способами залежно від типу детектора і лічильника. Газові іонізаційні детектори і твердотільні сцинтилятори мають обмежену енергетичну



роздільну здатність, тому бета-спектри ізотопів радіостронцію не можуть бути розділені. Активності можуть бути розраховані такими способами:

1. Sr виділяється радіохімічно, джерело Sr підраховується в два різних рази, як правило, відразу і після двотижневого періоду охолодження. Коефіцієнти підрахунку виражаються у вигляді суми швидкості підрахунку  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Y}$  і  $^{89}\text{Sr}$ , скориговані на паузу і розпад. Це рекомендований метод розрахунку відповідно до стандарту ISO 18589-4:2009.

2. Sr відокремлюють радіохімічно, джерело Sr підраховують негайно для відносно короткого часу підрахунку, і після двотижневого періоду охолодження  $^{90}\text{Y}$  хімічно відокремлюють і підраховують, виміряна швидкість лічби корегується коефіцієнтом розпаду з урахуванням часового інтервалу між відокремленням Y і підрахунком Y-джерела. Перший вимір дає суму швидкостей лічби  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{89}\text{Sr}$ , другий вимір забезпечує швидкість лічби  $^{90}\text{Y}$ . З останнього можна обчислити активність  $^{90}\text{Sr}$ .

3. Sr виділяється радіохімічно, джерело Sr вимірюється двічі один за одним, з абсорбером, який поглинає низькоенергетичне бета-випромінювання, але не поглинає високоенергетичне бета-випромінювання  $^{90}\text{Y}$ , і без нього. Активність  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{89}\text{Sr}$  розраховується на основі калібрування з використанням поглинача.

Черенковські лічильники чутливі тільки до високоенергетичного бета-випромінювання  $^{89}\text{Sr}$  і  $^{90}\text{Y}$ . Активність ізотопів радіостронцію може бути розрахована такими способами:

1. Sr виділяють радіохімічно, джерело Sr вимірюють негайно для відносно короткого часу лічби ( $^{90}\text{Y}$  ігнорують), а після паузи джерело Sr знову вимірюють, перше вимірювання забезпечує швидкість лічби  $^{89}\text{Sr}$ , друге вимірювання дає суму швидкостей лічби  $^{90}\text{Y}$  (з корекцією зростання) і  $^{89}\text{Sr}$  (з корекцією розпаду).

2. Sr відокремлюють радіохімічно, джерело Sr вимірюють негайно для відносно короткого часу вимірювання, і після двотижневого періоду накопичення  $^{90}\text{Y}$  хімічно відокремлюється і вимірюється. Виміряна швидкість лічби коригується коефіцієнтом розпаду з урахуванням часового інтервалу між розділенням Y і підрахунком Y-джерела. Перший вимір забезпечує швидкість рахунку  $^{89}\text{Sr}$ , другий вимір забезпечує швидкість рахунку  $^{90}\text{Y}$ . З останнього можна обчислити активність  $^{90}\text{Sr}$ .

У рідинній сцинтиляційній спектрометрії (LS) представлено інформацію про форму бета-спектрів, які перекриваються у випадку  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Y}$  і  $^{89}\text{Sr}$ , але через великі відмінності в граничних енергіях спектри можуть бути добре інтерпретовані як сума окремих компонентів, особливо якщо інші бета-випромінювальні нукліди відсутні в зразку. Оцінювання даних може бути виконано такими способами:

1. Розділене джерело Sr підраховується в режимі підрахунку повного спектра за допомогою LS-спектрометра, після деякого періоду часу загасання вимір повторюється. Результати обчислюються за допомогою математичного розкладання.

2. Виділене джерело Sr підраховується у двох правильно обраних енергетичних вікнах за допомогою LS-спектрометра, як правило, з чистого енергетичного чистого вікна  $^{90}\text{Y}$  і вибирається вікно з низькою енергією  $^{90}\text{Sr} + ^{89}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ . Результати обчислюються шляхом математичного розкладання.

3. Розділене джерело Sr підраховують у режимі рахунку повного спектра за допомогою LS-спектрометра. Спектральне розкладання виконується за порівнянням виміряного складеного спектра з еталонними спектрами окремих компонентів. Фактори форми також можуть бути розраховані.

4. Черенковську методику вимірювання можна також комбінувати з детектуванням рідкої сцинтиляції, тим самим отримуючи швидкий метод розрахунку. Sr виділяється радіохімічно, черенківське випромінювання

джерела Sr вимірюється негайно для відносно короткого часу вимірювання (розпад  $^{90}\text{Y}$  ігнорується), і після додавання коктейлю зразок повторно вимірюється LS-лічильником. Перший вимір забезпечує швидкість рахунку  $^{89}\text{Sr}$ , другий вимір дає суму швидкостей рахунку  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{89}\text{Sr}$ .

Загалом, можна зазначити, що пропорційний лічильник газу через недорогу вимірювальну апаратуру та високу чутливість, як і раніше, є адекватним методом при рутинному визначенні  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{89}\text{Sr}$ . У рідинній сцинтиляційній спектрометрії надається інформація про енергетичний розподіл бета-випромінювання, тому вона є найбільш надійною аналітичною методикою ідентифікації ізотопів радіостронцію. Черенковські лічильники також можуть бути використані для швидкого визначення  $^{90}\text{Sr}$  через дочірній  $^{90}\text{Y}$ . Як видно, радіохімічні методи, зазвичай, не дають змоги одержувати швидку та численну інформацію про радіостронцій, тому одним із завдань цієї роботи було розроблення спектроскопічних методів реєстрації радіостронцію.

## Розділ 2. Фотоактиваційний метод визначення довгоіснуючих ізотопів радіоізотопів в конструкційних матеріалах АЕС

### 2.1. Фотоактиваційна методика виявлення активності $^{10}\text{Be}$ у конструкційних матеріалах активної зони реакторів

#### 2.1.1. Загальний опис запропонованого методу

Для визначення концентрації  $^9\text{Be}$  і  $^{10}\text{B}$  пропонується використовувати реакції  $(\gamma, 2n)$  і  $(\gamma, 2np)$ , які призводять до утворення  $^7\text{Be}$  з періодом напіврозпаду  $T_{1/2}=53$  дні. Аналіз перерізу фотоядерних реакцій на  $^9\text{Be}$  і  $^{10}\text{B}$  показав, що за граничної енергії гальмування  $\gamma$ -квантів, що дорівнює 37 МеВ, інтегральні перерізи  $(\gamma, 2n)$ -реакції на  $^9\text{Be}$  і  $(\gamma, 2np)$  на  $^{10}\text{Be}$  приблизно однакові. Похибка інтегральних перерізів для  $^{10}\text{Be}$  становить 20-30% і має величину  $16 \text{ бн} \times \text{МеВ}$ , а для  $^9\text{Be}$  –  $22 \pm 8 \text{ бн} \times \text{МеВ}$ . З урахуванням таких похибок для розрахунків використовувався загальний інтегральний переріз  $\sigma_{\text{інт}}=400 \pm 50 \text{ мкбн}$ . Переріз  $^9\text{Be}$   $(n, \gamma)$ -реакції дорівнює  $7,6 \pm 0,8 \text{ мбн}$ , а переріз  $^{10}\text{Be}$   $(n, p)$ -реакції дорівнює  $6,4 \pm 0,5 \text{ мбн}$ , і для розрахунків ми використовували загальний переріз  $\sigma = 7 \pm 1 \text{ мбн}$  [48].

У конструкційних матеріалах важливим хімічним елементом є залізо [5], тому для виключення методичних похибок пропонується проведення відносних вимірювань, порівнюючи вихід  $\gamma$ -ліній  $^7\text{Be}$  і  $^{54}\text{Mn}$  (реакція  $^{56}\text{Fe}$   $(\gamma, pn)$ ). Відношення мас  $\text{Be}$  і  $^{56}\text{Fe}$  дорівнюватиме:

$$\frac{m(\text{Be})}{m(\text{Fe})} = \frac{(1 - e^{-\lambda t_{\text{опр}}}) \cdot (1 - e^{-\lambda t_{\text{вим}}}) \cdot e^{-\lambda t_{\text{охол}}} \cdot \sigma(\text{Mn}) \cdot \lambda(\text{Be})}{(1 - e^{-\lambda t_{\text{опр}}}) \cdot (1 - e^{-\lambda t_{\text{вим}}}) \cdot e^{-\lambda t_{\text{охол}}} \cdot \sigma(\text{Be})} \quad (2.1)$$

Для напрацювання достатньої кількості радіонуклідів необхідно опромінювати 10-15 мкг×год. Таким чином період напіврозпаду нуклідів, що напрацьовуються, значно більше  $T_{1/2} \gg t_{\text{обл}}$ , тому ми можемо розкласти вирази в ряд Тейлора й отримаємо, що  $1 - e^{-\lambda t_{\text{опр}}} \approx \lambda t$ . Підставивши це у вираз для мас, отримаємо:

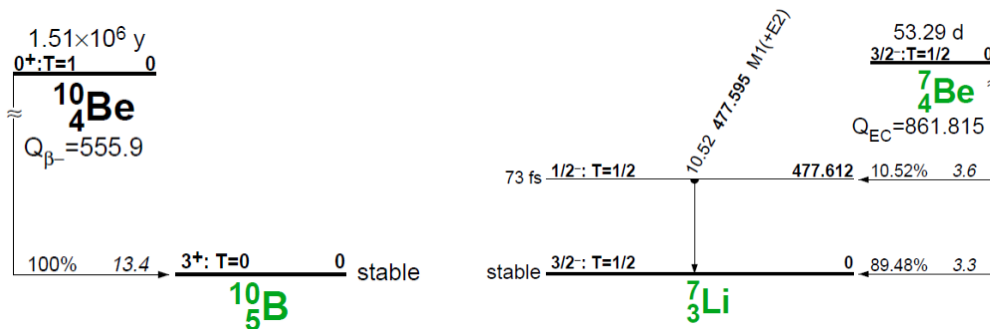
$$\frac{m(Be)}{m(Fe)} = \frac{e^{-\lambda(Mn)t_{\text{охол}}} \cdot \sigma(Fe) \cdot \lambda(Mn) \cdot N_{\gamma}(Mn)}{e^{-\lambda(Be)t_{\text{охол}}} \cdot \sigma(Be) \cdot \lambda(Be) \cdot N_{\gamma}(Be)} \quad (2.2)$$

Переріз ( $\gamma$ , pn)-реакції на Fe дорівнює  $230 \pm 30$  мкбн  $\times$  MeV. Тому для граничних енергій гальмівних  $\gamma$ -квантів 37 MeV:

$$\frac{m(Be)}{m(Fe)} = 0,19 \frac{N_{\gamma}(834) \cdot e^{-\lambda_1 t_0} \cdot \sigma(Fe) \cdot \lambda(Mn) \cdot N_{\gamma}(Mn)}{N_{\gamma}(477) \cdot e^{-\lambda_2 t_0} \cdot \sigma(Be) \cdot \lambda(Be) \cdot N_{\gamma}(Be)} \quad (2.3)$$

де  $N_{\gamma}(834)$  – число відліків у піку з енергією 834 кеВ,  $N_{\gamma}(477)$ - число відліків у піку з енергією 477 кеВ,  $t_{\text{охол}}$  – час витримки опроміненої мішені до початку вимірювань,  $\lambda_1$  – стала розпаду  $^{54}\text{Mn}$ ,  $\text{с}^{-1}$ ,  $\lambda_2$  – стала розпаду  $^7\text{Be}$ ,  $\text{с}^{-1}$ .

Для визначення кількості атомів  $^9\text{Be}$  і  $^{10}\text{Be}$  необхідно знати флюенс нейтронів. Зазвичай максимальний флюенс нейтронів для консервативної оцінки активності обігу радіонуклідів відомий і використовується під час розрахунків дозових навантажень. Однак для більш достовірної оцінки флюенсу нейтронів для конкретних зразків можна використовувати домішку  $^{94}\text{Nb}$  з  $T_{1/2} = 2 \times 10^4$  років. Схему розпаду  $^{94}\text{Nb}$  наведено на рисунку 2.1. Як видно, він розпадається з випусканням двох гамма-квантів і їх можна легко реєструвати на гамма-спектрометрах. Водночас як і  $^{10}\text{Be}$ , за фотоактиваційною методикою, можна визначити  $^{94}\text{Nb}$  через вимір ( $\gamma$ , n)-реакції на  $^{93}\text{Nb}$  з подальшим розрахунком активності  $^{94}\text{Nb}$ .



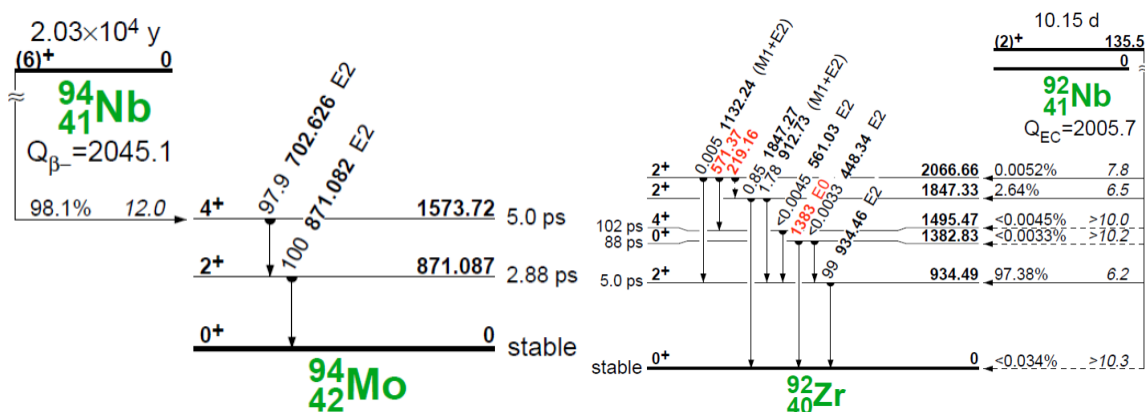


Рис. 2.1. Схеми розпаду  $^{10}\text{Be}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{94}\text{Nb}$  і  $^{94}\text{Nb}$ .

### 2.1.2. Дослідження заселення $^7\text{Be}$ в реакціях із гальмівними $\gamma$ -квантами в широкому діапазоні величин енергій

Оскільки дані про перерізи на нуклідах, що призводять до утворення  $^7\text{Be}$ , необхідні під час активаційного аналізу домішки  $^9\text{Be}$  і  $^{10}\text{B}$  у конструкційних матеріалах АЕС, були проведені дослідження перерізів фотопоглинання на ядрах  $^9\text{Be}$  і  $^{10,11}\text{B}$ . Ці ядра належать до перехідної області з  $A = 6-11$ . У цій області ядер можуть відбуватися як прямі процеси, так і збудження через резонансні стани. Дослідження  $(\gamma, n)$ - і  $(\gamma, 2n)$ -реакцій у легких ядрах показують, що процес фотозбудження йде завдяки прямим процесам [49]. Тому окремий науковий інтерес складають дослідження  $(\gamma, p2n)$ -,  $(\gamma, dn)$ -,  $(\gamma, t)$ -реакції на  $^{10}\text{B}$  через активацію  $^7\text{Be}$ , тому що виліт заряджених часток, як правило, йде через прямий механізм. Експериментальні дані про перерізи  $(\gamma, 2n)$ -,  $(\gamma, p2n)$  отримано до 36 MeV, проте похибка цих вимірювань фактично 50%. Для  $^9\text{Be}$  також відсутні дані про перерізи в області вище 36 MeV [50].

Вимірювання середньозважених перерізів для берилію і бору проводили для гальмівних  $\gamma$ -квантів із граничними величинами енергій 20, 40 і 55 MeV [51]. Опромінювалися збірки, що складаються з природних берилію, бору і

танталу. Мішені з природного танталу опромінювалися з метою моніторингу пучка  $\gamma$ -квантів.

Після опромінення вимірювали  $\gamma$ -спектри в низькофоновій лабораторії на HPGe-спектрометрах фірм Canberra і Ortec з ефективністю реєстрації (15-40)% порівняно з NaI(Tl)-детектором розмірами 3' 3". Енергетична роздільна здатність спектрометрів становила 1.2 кеВ на  $\gamma$ -лінії 343 кеВ  $^{175}\text{Hf}$  і 1.8-2.0 кеВ на  $\gamma$ -лініях 1173,1332 кеВ  $^{60}\text{Co}$ .

Моніторингу пучка  $\gamma$ -квантів проводилося через  $(\gamma, n)$ -реакцію на  $^{181}\text{Ta}$ . При цьому утворюється  $^{180}\text{Ta}$ , що розпадається з  $T_{1/2} = 8$  год. (див. рис. 2.3 для  $E_{\text{тр}} = 55$  МеВ). Для отримання потоку визначалися площі фотопіків  $\gamma$ -ліній 93.3 і 103.6 кеВ з розпаду  $^{180}\text{Ta}$  (див. рис. 2.2) і середньозважений переріз реакції  $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$ .

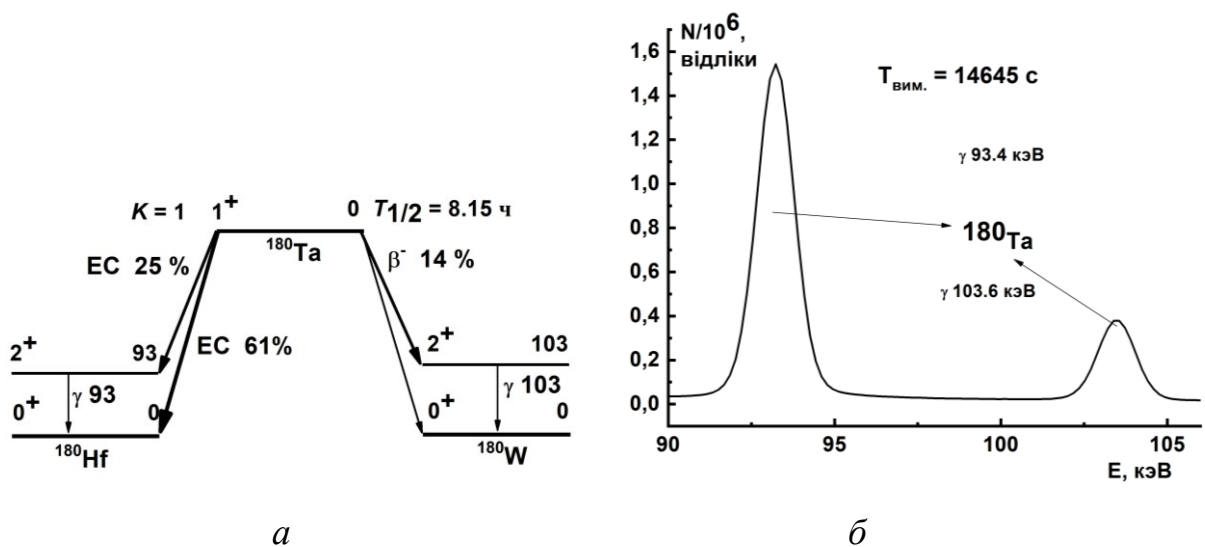
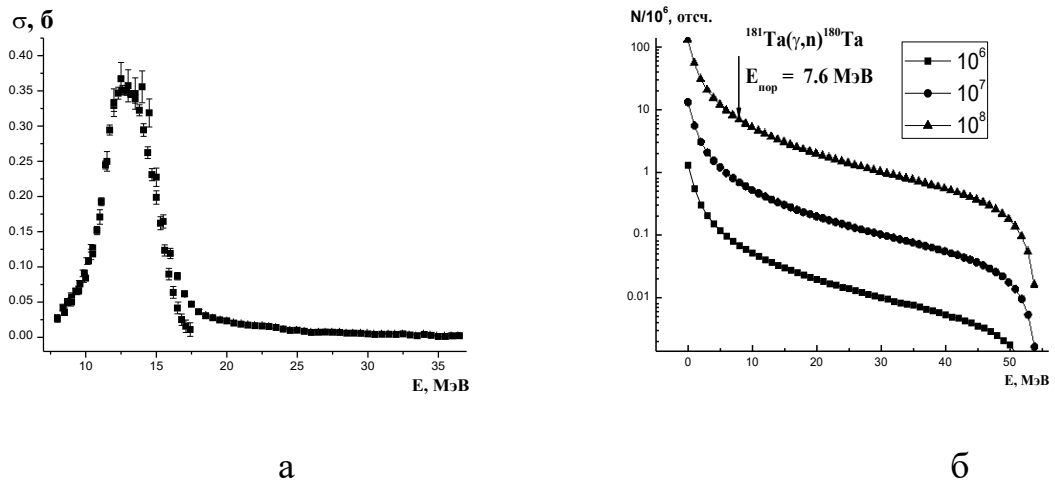


Рис. 2.2 – Фрагменти схеми розпаду  $^{180}\text{Ta}$  (а) і  $\gamma$ -спектра танталу (б), опроміненого гальмівними  $\gamma$ -квантами.

Цей переріз визначали в результаті згортання з кроком 1 МеВ за формулою, бн:

$$\sigma^{\text{сєр}} = \frac{\sum_{i=1}^N \sigma_i \varphi_i}{\sum_{i=1}^N \varphi_i} \quad (2.4)$$

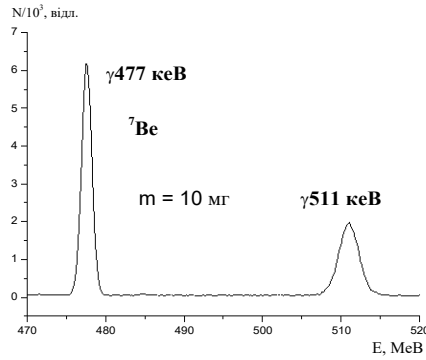
де  $\sigma_i$  – табличні значення перерізу реакції  $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$  для монохроматичних  $\gamma$ -квантів [52] (див. рис. 2.3а);  $\varphi_i$  – відносні величини потоку, змодельованого в GEANT4 [52] спектра гальмівних  $\gamma$ -квантів (див. рис. 2.3б), приведені до порогової величини реакції  $E_{\text{пор}}$ .



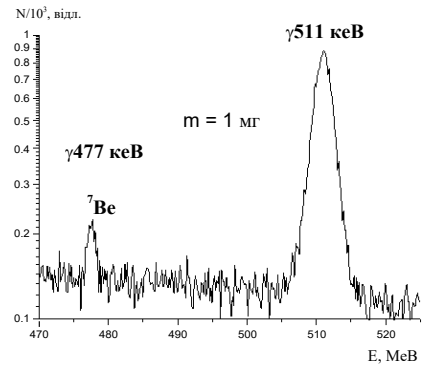
**Рис. 2.3 – Експериментальні перерізи реакції  $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$  (а) і гальмівний спектр для різної кількості подій (б),  $E_{\text{гр}} = 55$  МеВ.**

За енергії гальмівних гамма-квантів 55 МеВ у реакціях  $(\gamma, 2n)$  на  $^9\text{Be}$  і в реакціях  $(\gamma, p2n)$ -,  $(\gamma, dn)$ -,  $(\gamma, t)$  на  $^{10}\text{B}$ ,  $(\gamma, p3n)$ -,  $(\gamma, d2n)$ -,  $(\gamma, tn)$  на  $^{11}\text{B}$  утворюється  $^7\text{Be}$  (див. рис. 2.4).





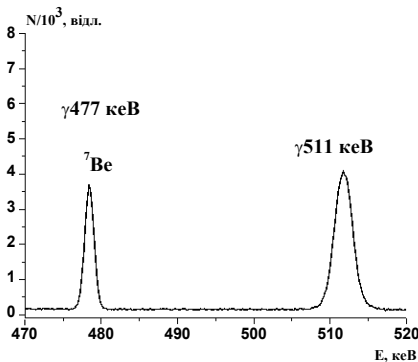
*a*



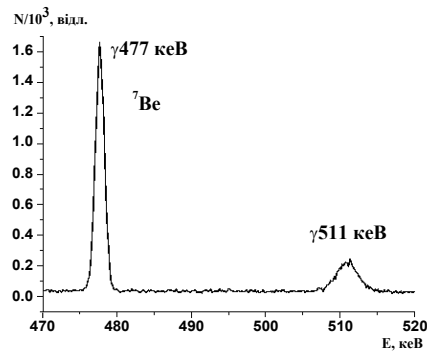
*б*

**Рис. 2.4 – Фрагменти  $\gamma$ -спектрів опроміненних мішеней  $^{nat}\text{B}$  (*a*) і  $^{nat}\text{Be}$  (*б*) при  $E_{\text{гр}} = 55$  MeB.**

За  $E_{\text{гр}} = 40$  MeB утворення  $^7\text{Be}$  можливе тільки в реакціях  $(\gamma, p2n)$ -,  $(\gamma, dn)$ -,  $(\gamma, t)$  на  $^{10}\text{B}$ , і  $(\gamma, tn)$  на  $^{11}\text{B}$  (див. рис. 2.5).



(*a*)



**Рис. 2.5 – Фрагменти  $\gamma$ -спектрів опроміненних мішеней  $^{nat}\text{B}$  (*a*) і  $^{nat}\text{Be}$  (*б*) за  $E_{\text{гр}} = 40$  MeB.**

За  $E_{\text{гр}} = 20$  MeB збудження  $^7\text{Be}$  можливе лише в реакції  $^{10}\text{B}(\gamma, t)^7\text{Be}$ , енергетичний поріг якої становить 18,7 MeB (див. рис. 2.6), а кулонівський бар'єр  $\sim 1,5$  MeB. Таким чином, ця реакція можлива тільки через прямий канал, тому що час протікання прямої реакції  $\sim 10^{-21}$  с, а час формування кулонівського бар'єру ( $\sim 10^{-18} - 10^{-19}$  с). З точністю 15-20 % нами реєструється

активація  ${}^7\text{Be}$ . Водночас енергетичний поріг реакції  ${}^9\text{Be}(\gamma, 2n){}^7\text{Be}$  дорівнює 20.6 MeV і вона не йде на атомах берилію.

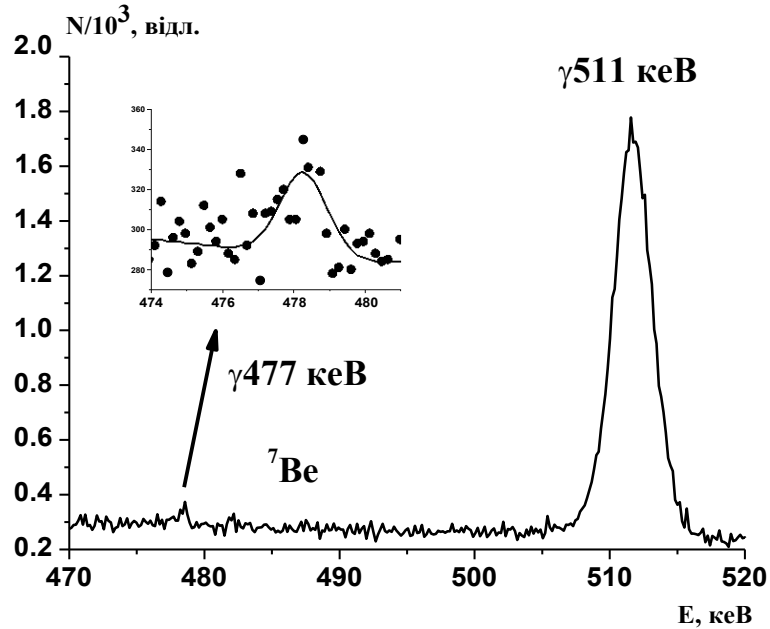


Рис. 2.6 – Фрагменти  $\gamma$ -спектра опроміненої мішені  ${}^{\text{nat}}\text{B}$  за  $E_{\text{гр}} = 20$  MeV.

Потоки гальмівних  $\gamma$ -квантів розраховували за формулою,  $n_{\gamma}/(\text{см}^2 \times \text{с} \times \text{МэВ})$  [53]:

$$F = \frac{S \lambda A}{(1 - e^{-\lambda t_{\text{обл}}}) e^{-\lambda t_{\text{охол}}} (1 - e^{-\lambda t_{\text{вим}}}) \xi k \eta \sigma^{\text{сеп}} N_A m p} \quad (2.5)$$

де  $S$  – площі фотопіків, що відповідають розпаду  ${}^{180}\text{Ta}$ ;  $\eta$  – квантові виходи  $\gamma$ -квантів під час розпаду  ${}^{180}\text{Ta}$ ;  $\xi$  – ефективності реєстрації  $\gamma$ -квантів, що супроводжують розпад ядер продуктів реакції  ${}^{181}\text{Ta}(\gamma, n){}^{180}\text{Ta}$ ;  $t_{\text{обл}}$ ,  $t_{\text{охол}}$ ,  $t_{\text{вим}}$  – часи опромінення, охолодження і вимірювання, відповідно (с);  $k$  – коефіцієнти самопоглинання  $\gamma$ -квантів розпаду. Вони розраховуються після моделювання реальних опромінюваних мішеней у програмному коді MCNP [54]. Розраховується ефективність реєстрації потрібних  $\gamma$ -ліній для точкової ( $\epsilon_T$ ) і реальної ( $\epsilon_p$ ) мішеней і вводиться поправка на самопоглинання  $k = \epsilon_p / \epsilon_T$ . При

цьому ефективність реєстрації для точкової мішені збігається з експериментальною, отриманою за допомогою калібрувальних точкових джерел;  $p$  – абсолютний вміст  $^{181}\text{Ta}$  в природній суміші;  $N_A = 6.02 \times 10^{23}$  – число Авогадро (кількість ядер / г  $\times$  моль);  $\sigma^{\text{сєр}}$  – середньозважений переріз реакції  $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$ , розрахований згідно з (2.4) (бн);  $m$  – маси мішеней танталу на одиницю площі (г/см<sup>2</sup>);  $A = 181$  – масове число атомів танталу (а.о.м.);  $\lambda$  – постійна розпаду  $^{180}\text{Ta}$  (с<sup>-1</sup>).

Величини  $\lambda$ ,  $\alpha$ ,  $A$ ,  $p$  беруться з [37];  $S$  – з експериментальних  $\gamma$ -спектрів, а  $\xi$  – з калібрувальних кривих, додатково перевірених за допомогою моделювання з використанням програмного коду GEANT4.

Далі за формулою (2.5), використовуючи ці дані та поправки на різницю енергетичних порогів і кулонівських бар'єрів досліджуваних реакцій і реакцій на моніторах, розраховували  $\sigma^{\text{сєр}}$  реакцій  $^9\text{Be}(\gamma, 2n)^7\text{Be}$  за  $E_{\text{гр}} = 40$  і  $55$  МеВ,  $^{10}\text{B}(\gamma, t)^7\text{Be}$  за  $E_{\text{гр}} = 20$  МеВ і  $^{\text{nat}}\text{B}(\gamma, x)^7\text{Be}$  за  $E_{\text{гр}} = 40$  і  $55$  МеВ. Результати наведено в таблиці 2.1.

**Таблиця 2.1**  
**Середньозважені експериментальні та теоретичні перерізи реакції заселення  $^7\text{Be}$  за різних граничних енергій гальмівних  $\gamma$ -квантів**

$E$ , МєВ	20	40	40	55	55
$\Sigma^{\text{сєр}}$ , мкб	<b>11(2)</b>	<b>390(40)</b>	<b>423(40)</b>	<b>675(90)</b>	<b>920(90)</b>
Ядерні реакції/ Енергетичні порогови, МеВ	$^{10}\text{B}(\gamma, t)/18.7$	$^{11}\text{B}((\gamma, tn)/30.1$ $^{10}\text{B}((\gamma, dn)/24.9$ $^{10}\text{B}((\gamma, p2n)/27.2$	$^9\text{Be}(\gamma, 2n)^7\text{Be}/20.6$	$^9\text{Be}(\gamma, 2n)^7\text{Be}/20.6$	$^{11}\text{B}((\gamma, tn)/30.1$ $^{10}\text{B}((\gamma, dn)/24.9$ $^{10}\text{B}((\gamma, p2n)/27.2$ $^{11}\text{B}((\gamma, d2n)/36.4$ $^{11}\text{B}((\gamma, p3n)/38.6$
Talys1-9	0.09	<b>556</b>	-	<b>0.3</b>	<b>491</b>
Empire3.2	-	<b>58</b>	<b>134</b>	<b>155</b>	<b>99</b>

Для оцінки механізмів протікання досліджуваних ядерних реакцій нами проведено моделювання цих процесів з використанням програмних кодів TALYS-1.9 і EMPIRE-3.2. Більш детально про моделювання за допомогою цих кодів викладено в [55,56], у них домінують статистичні та передрівноважні процеси.

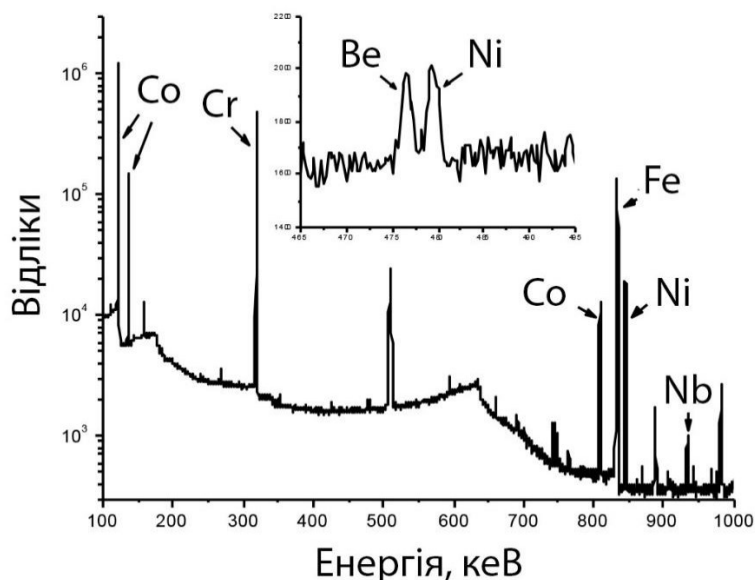
Під час теоретичних розрахунків визначають перерізи досліджуваних реакцій, починаючи від порога з кроком 1 MeV для монохроматичних  $\gamma$ -квантів і далі за формулою (2.4) розраховують середньозважені перерізи.

Як видно, код TALYS-1.9 непогано описує середньозважені перерізи на natВ за величин енергії 40 і 55 MeV, і водночас  $(\gamma, 2n)$ -реакція практично не відтворюється. Це може бути пояснено тим, що  $(\gamma, 2n)$ -реакція в  ${}^9\text{Be}$  протікає, в основному, через прямий канал. Однак у коді EMPIRE-3.2 середньозважені перерізи, хоча б якісно, але описуються. Ми поки що не можемо зрозуміти таку велику різницю між даними обох кодів під час моделювання реакції  ${}^9\text{Be}(\gamma, 2n){}^7\text{Be}$  за  $E_{\text{гр}} = 40$  і 55 MeV. Можливо, це пов'язано з різною параметризацією щільностей рівнів залишкового ядра в обох кодах. Значне заниження можна якісно пояснити внеском прямого каналу. Розрахунки середньозважених перерізів  $(\gamma, t)$ -реакції за 20 MeV навіть якісно не можуть пояснити експериментальні дані. Це вказує на прямий механізм реакції, як і обговорювалося вище. Загалом така поведінка характерна для перехідної області з  $A = 6-11$ . У цій ділянці співвідношення прямого і статистичного каналу може змінюватися в межах  $1 \div 10$  [57,58].

Важливим результатом цих досліджень є й те, що в ділянці 30-40 MeV співвідношення середньозважених перерізів реакцій  $(\gamma, 2n)$  і  $(\gamma, p2n)$  приблизно одне й те саме. Це дає змогу розробляти методи визначення  ${}^{10}\text{Be}$ , що активується в  $(n, \gamma)$  і  $(n, p)$ -реакціях в єдиному підході.

### 2.1.3. Обговорення запропонованого методу та валідація отриманих результатів

Для визначення активності  $^{10}\text{Be}$  і  $^{94}\text{Nb}$  нами було проведено опромінення чотирьох зразків конструкційних матеріалів, масою 50 мг, відібраних у різних місцях 2-го енергоблоку ЧАЕС. Опромінення потоком гальмівних  $\gamma$ -квантів із граничною енергією 37 МеВ проводилося на лінійному прискорювачі електронів. Опромінювалися всі зразки одночасно протягом 3,5 годин із середнім струмом електронів 5 мкА. Вимірювання опромінених зразків на HPGe-спектрометрі проводили після місячної витримки. У спектрі надійно виділені гамма-переходи, що супроводжують розпад  $^7\text{Be}$ ,  $^{92\text{m}}\text{Nb}$  і  $^{94}\text{Nb}$  (див. рис. 2.7). З отриманих даних про активність  $^{94}\text{Nb}$  було отримано, що флюенс нейтронів становив  $7,5 \times 10^{20}$ . Максимальна домішка  $^9\text{Be}$  і  $^{10}\text{Be}$  становила  $5 \times 10^{-4}$  від повної маси. З урахуванням усього вищевикладеного було розраховано активність  $^{10}\text{Be}$  у досліджуваних зразках (див. Таблицю 2.2). Оцінена похибка цих даних становить 30%.



**Рис. 2.7 – Фрагмент гамма-спектра зразка (Ж), опроміненого гальмівними гамма-квантами з граничною енергією 37 МеВ.**

Таблиця 2.2

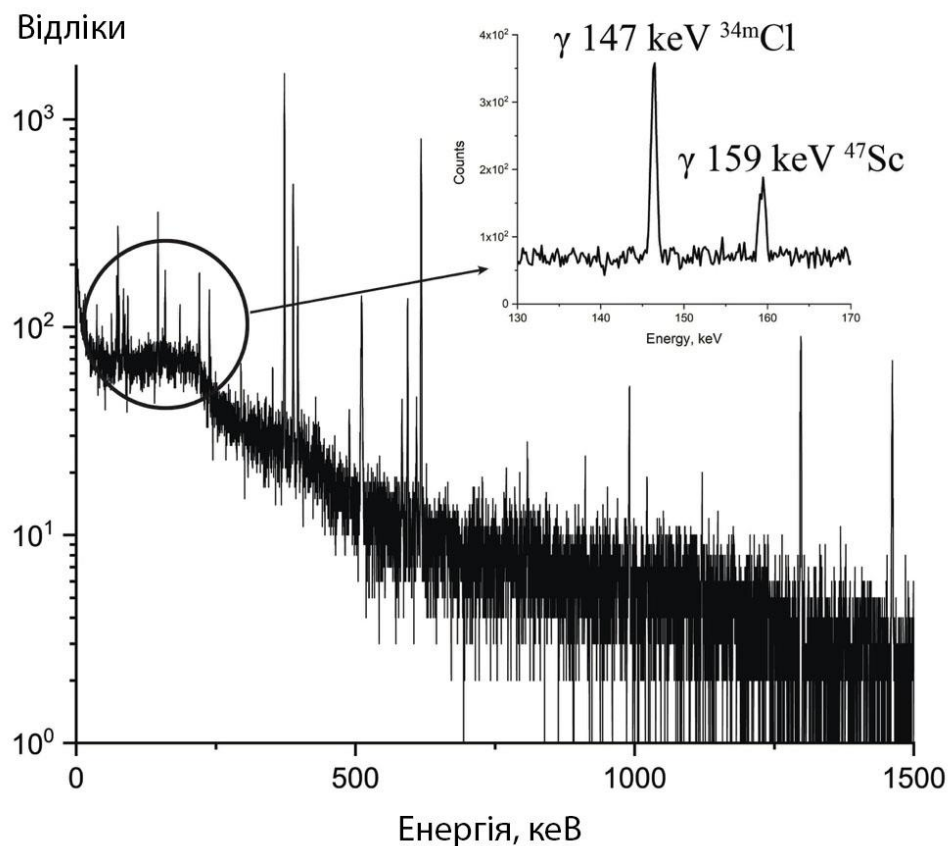
**Активності  $^{10}\text{Be}$  (Бк/г) у зразках конструкційних матеріалах 2-го енергоблоку ЧАЕС**

Ж	К	MN	Т
0,09	0,03	<0,01	0,04

Похибка – Ж 10%, решта 20 %.

Цей самий метод дає змогу оцінювати активність  $^{36}\text{Cl}$  з  $T_{1/2}=3\times 10^5$  років, що розпадається з випусканням тільки електронів з граничною енергією 709 кеВ. Для досліджень за допомогою фотоактиваційного аналізу в цьому випадку використовується реакція  $^{35}\text{Cl}(\gamma, n)^{34}\text{Cl}$  ( $T_{1/2}=32$  хв). Для вимірювання виходу цієї реакції ми опромінювали зразки  $\text{CaCl}_2$  гальмівними гамма-квантами з граничною енергією 19 МеВ (див. рис. 2.8).

Було отримано інтегральний переріз  $\sigma^{\text{інт}}=2.1\pm 0.2$  мбн. Розрахунки за допомогою програмного коду TALYS1.96 дають величину  $\sigma=2.0\pm 0.1$  мбн. Тобто спостерігається гарна згода, це дає змогу використовувати програмний код TALYS1.96 для розрахунків з іншими граничними енергіями гальмівних гамма-квантів при визначенні активності  $^{36}\text{Cl}$ .



**Рис. 2.8 – Фрагмент гамма-спектра  $\text{CaCl}_2$ , опроміненого гальмівними гамма-квантами з граничною енергією 19 МеВ.**

## **2.2. Визначення активності довгоживучих ізотопів нікелю та заліза в металевих конструкційних матеріалах АЕС**

### *2.2.1. Загальний опис запропонованого методу*

В розробленій методиці пропонується визначати активності напрацьованих радіоізотопів заліза та нікеля в конструкційних матеріалах АЕС за активністю  $^{60}\text{Co}$  з періодом напіврозпаду 5.27 роки [59]. Природній кобальт складається лише з  $^{59}\text{Co}$  та нерозривно пов'язаний з нікелем, оскільки є домішкою нікелевих руд. Для сталей, які використовуються в конструкційних матеріалах АЕС, домішка кобальта не повинна перевищувати 0.5%. Проте внаслідок дуже великого перерізу захвату теплових нейтронів

ядрами  $^{59}\text{Co}$  напрацьовується  $^{60}\text{Co}$ , активність якого легко ідентифікується за гамма-лініями 1173 та 1333 кеВ в усіх опромінених конструкційних матеріалах.

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

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

$$A = N\sigma\phi(1 - \exp(-\lambda t_{\text{опр}})) \exp(-\lambda t_{\text{охол}}) \quad (2.6)$$

де  $N$  – число відповідних атомів в конструкційних матеріалах АЕС;  $\sigma$  – переріз активації тепловими нейтронами;  $\phi$  – 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 якості  $t_{\text{опр}}$  використовуються значення тривалості роботи в ефективних добах, визначені по відомим значенням енергогенерації  $E$  (МВт $\times$ доб).

В якості 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 перерозсіання 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 біля 2 еВ (див рис. спектра нейтронів для РБМК-1000) [60].

Все це приводить до того, що розраховані за формулою (2.6) активності розходяться з експериментальними значеннями на 1-2 порядки. Для розв'язання цієї проблеми була розроблена методика визначення активності досліджуваного нукліду 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.

### 2.2.2. Експеримент та валідація розробленого методу

Для розробки методу проводились дослідження елементного складу зразків, відібраних на 2-му блоці ЧАЕС. За допомогою фотоактиваційної методики проведені вимірювання величини домішки кобальта порівняно з нікелем та залізом [59]. В конструкційних матеріалах АЕС нікель та залізо завжди йдуть в парі з кобальтом, тому для усунення методичних похибок проводяться відносні вимірювання, порівнюючи вихід  $\gamma$ -ліній  $^{57,58}\text{Co}$  та  $^{54}\text{Mn}$ . Для цього на прискорювачі ЛУЕ-40 Харківського фізико-технологічного інституту НАН України [61] пучком гальмівних  $\gamma$ -квантів з граничною енергією 37 МеВ опромінювались зразки відібрані на цьому блоці як в області підвищеного нейтронного фону (ЖЗ), так і з корпусу реактора. Гамма-спектр опроміненого зразку заліза приведений на рис. 2.9. 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) [37].  $^{57}\text{Co}$  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.

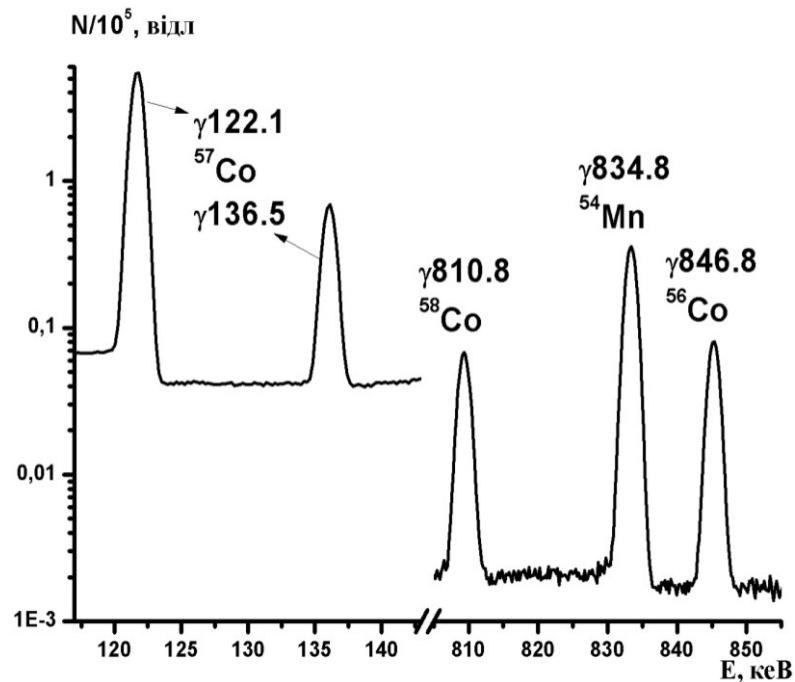


Рис. 2.9 – Фрагмент  $\gamma$ -спектру активованої мішені заліза.

З відомих формул активаційного аналізу (2.6) відношення числа атомів  $^{58}\text{Ni}$  та  $^{59}\text{Co}$  і  $^{56}\text{Fe}$  та  $^{59}\text{Co}$  буде рівне:

$$\frac{m(\text{Ni})}{m(\text{Co})} = \frac{N(\text{Ni})(1-e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{опр}}})(1-e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{вим}}})e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}}Y(\text{Co})\lambda(\text{Ni})}{N(\text{Co})(1-e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{опр}}})(1-e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{вим}}})e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{охол}}}Y(\text{Ni})\lambda(\text{Co})} \quad (2.7)$$

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

де  $m(\text{Ni})$ ,  $m(\text{Co})$ ,  $m(\text{Fe})$  – кількість 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 внаслідок електронного захвату на ядра  $^{57}\text{Co}$ .

Періоди напіврозпаду  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$  та  $^{54}\text{Mn}$  рівні 271.8, 70.8 дня та 312.1 дні, відповідно [37]. 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  $t_{\text{вим}}$ :  $1 - e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{вим}}} \approx \lambda(\text{Co})t_{\text{вим}}$ ,  $1 - e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{вим}}} \approx \lambda(\text{Ni})t_{\text{вим}}$  та  $1 - e^{-\lambda(\text{Mn})t_{\text{вим}}} \approx \lambda(\text{Mn})t_{\text{вим}}$ . Підставивши це у вираз (2.7) отримаємо:

$$\frac{m(\text{Ni})}{m(\text{Co})} = \frac{N(\text{Ni})\lambda(\text{Co})e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}} Y(\text{Co})}{N(\text{Co})\lambda(\text{Ni})e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{охол}}} Y(\text{Ni})}, \quad (2.8)$$

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

Таким чином для АЕС, працюючих в 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 наступний вигляд:

$$\frac{m(\text{Ni})}{m(\text{Co})} = 9.3 \frac{N_{\gamma}(136 \text{ кеВ})\lambda(\text{Co})e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}} Y(\text{Co})}{N_{\gamma}(811 \text{ кеВ})\lambda(\text{Ni})e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{охол}}} Y(\text{Ni})}, \quad (2.9)$$

$$\frac{m(\text{Fe})}{m(\text{Co})} = 9.4 \frac{N_{\gamma}(136 \text{ кеВ})\lambda(\text{Co})e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}} Y(\text{Co})}{N_{\gamma}(835 \text{ кеВ})\lambda(\text{Mn})e^{-\lambda(\text{Mn})t_{\text{охол}}} Y(\text{Mn})},$$

де 9.3 та 9.4 – відношення квантових виходів гамма-ліній 811 кеВ та 136 кеВ і 835 кеВ та 136 кеВ;  $N_{\gamma}(136 \text{ кеВ})$  – число відліків в піку з енергією 136 кеВ з урахуванням ефективності реєстрації спектрометра (в даному випадку –

18.4%);  $N_{\gamma}(811 \text{ keV})$  – число відліків в піку повного поглинання з енергією 811 кеВ з урахуванням ефективності реєстрації спектрометра (в даному випадку – 5.2%).  $N_{\gamma}(835 \text{ keV})$  – число відліків в піку з енергією 835 кеВ з урахуванням ефективності реєстрації спектрометра (в даному випадку – 5%).

Оскільки мішені тонкі то самопоглинанням даних  $\gamma$ -квантів можна знехтувати.

З літературних даних відомо [62,63], що нержавіюча сталь в конструкційних матеріалах містить як правило 70% Fe, 10% Ni та не більше 0.5% Co. З цих даних можна оцінити, що активності  $^{55}\text{Fe}$  не будуть перевищувати  $0.5 A(^{60}\text{Co})$ , а активність  $^{59}\text{Ni}$  буде нижчою  $10^{-2} A(^{60}\text{Co})$  при нормальній роботі АЕС.

Природньо, в таких матеріалах як наплавки, 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:

$$Y = \frac{\sum_{i=1}^N \sigma_i \varphi_i}{\sum_{i=1}^N \varphi_i} \quad (2.10)$$

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 [64] 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 [55]. Якщо між ними існували розбіжності, які виходили за межі експериментальних похибок то використовувались експериментальні дані. Зокрема, описання 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 [65]. 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. Еспериментальні перерізи першої реакції відсутні в базі даних EXFOR[50] і тому вони були взяті із теоретичного моделювання в кодї Talys-1.96 (див. рис. 2.10).

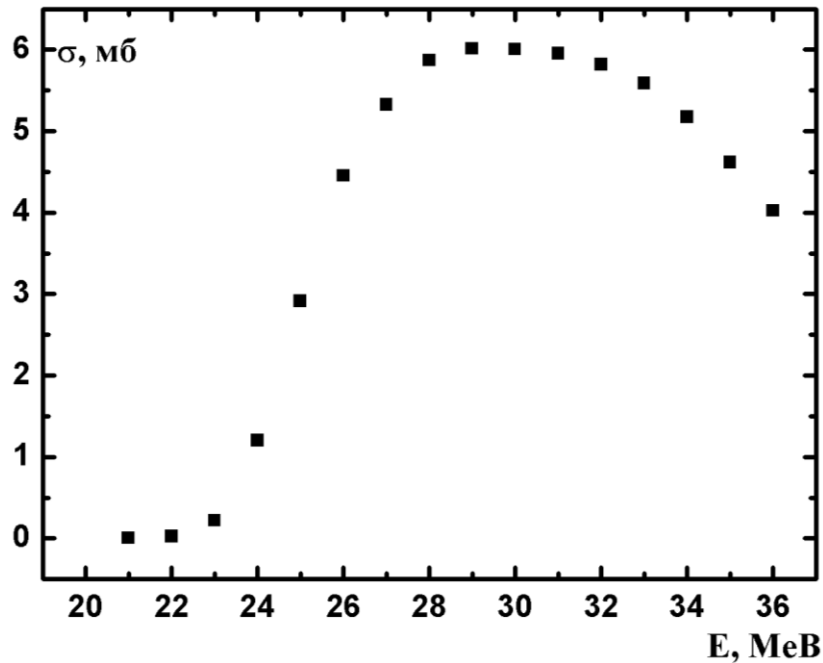


Рис.2.10 – Модельована функція збудження реакції  $^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$ .

Для реакції  $^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$  перерізи для розрахунку середньозваженого виходу за формулою (2.10) бралися з експериментальної роботи [66], дивись рисунок 2.11.

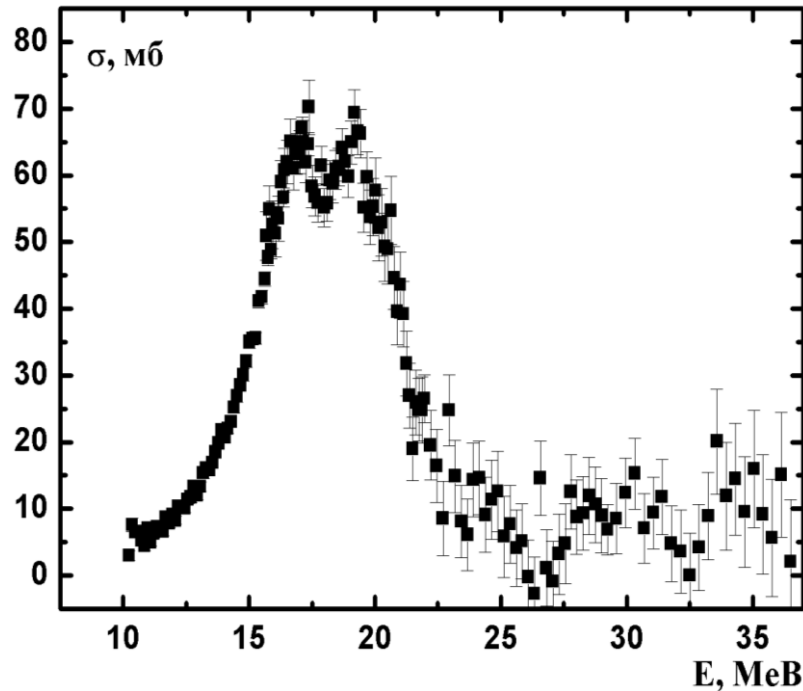


Рис.2.11 – Функція збудження реакції  $^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$  з роботи [66]

Цими способами за формулою (2.10) були розраховані величини середньозважених виходів для різних елементів, які містяться в опромінених зразках. Отримані виходи наведені в таблиці 2.3.

Таблиця 2.3

Середньозважені виходи досліджуваних реакцій

Елемент	$^{58}\text{Ni}_{(\text{Talys})}$	$^{58}\text{Ni}$ [67]	$^{59}\text{Co}_{(\text{Talys})}$	$^{59}\text{Co}$ [68]	$^{55}\text{Mn}_{(\text{Talys})}$	$^{55}\text{Mn}$ [66]
$Y(\gamma, n), \text{мб}$	10,1(7)	13,4(13)	24,2(17)	24,4(24)	22,0(16)	25,0(26)

Як видно з табл. 1.1 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.

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. 2.12-2.14.

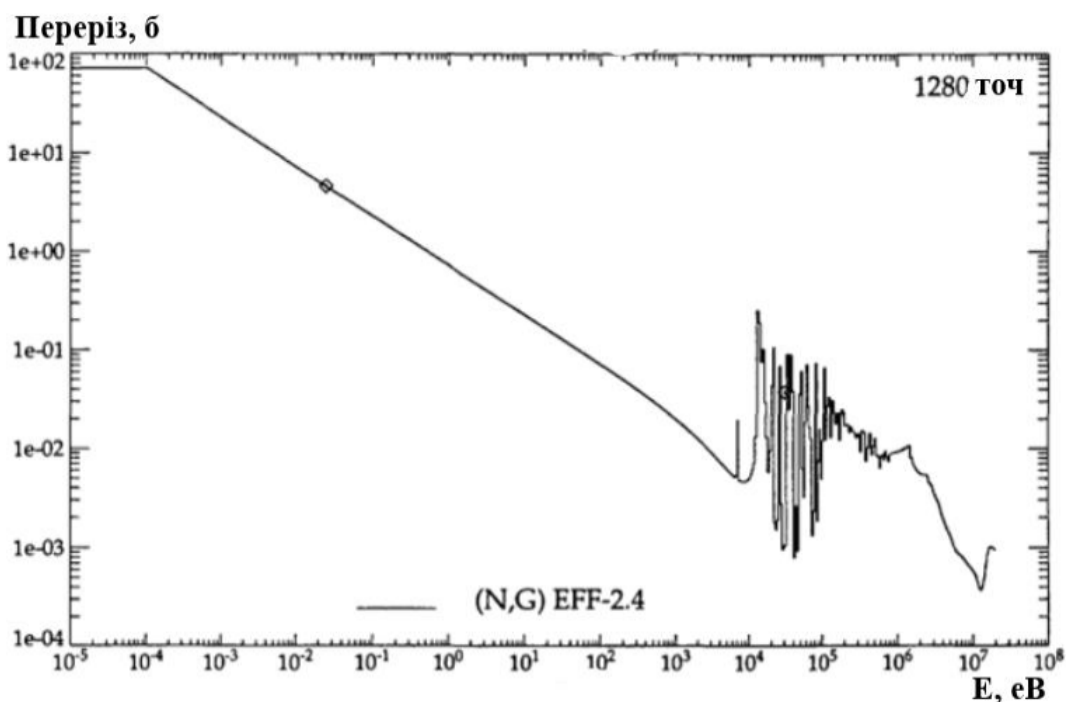


Рис. 2.12 – Функція збудження реакції  $^{58}\text{Ni}(n,\gamma)^{59}\text{Ni}$  [69].

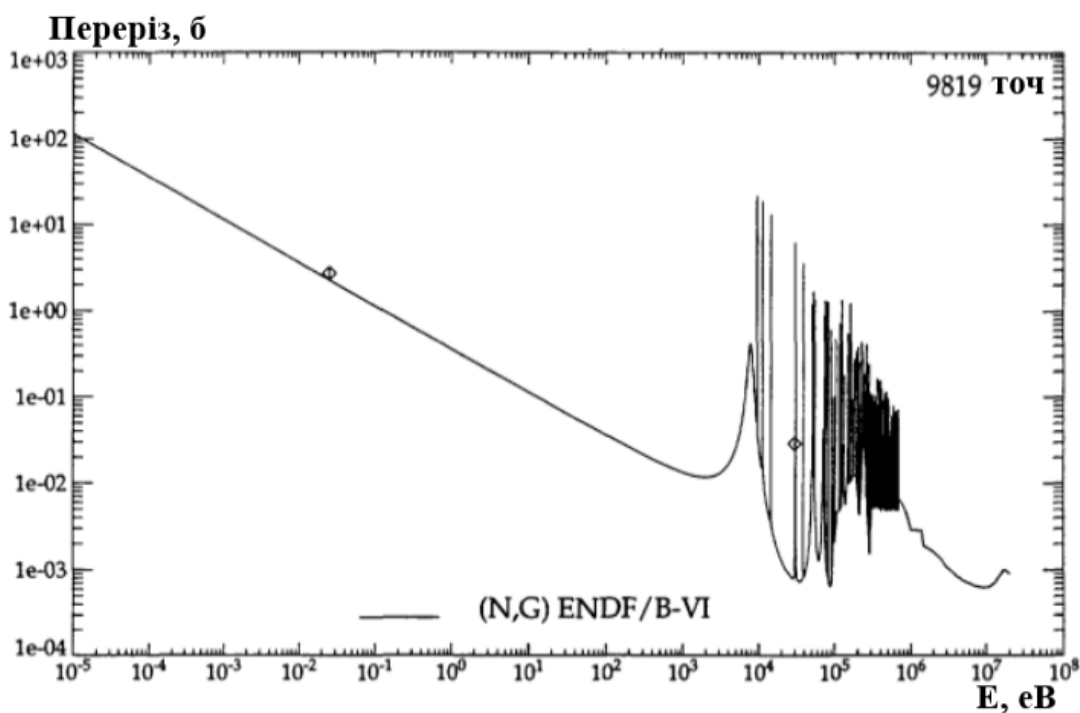


Рис. 2.13 – Функція збудження реакції  $^{54}\text{Fe}(n,\gamma)^{55}\text{Fe}$  [69].

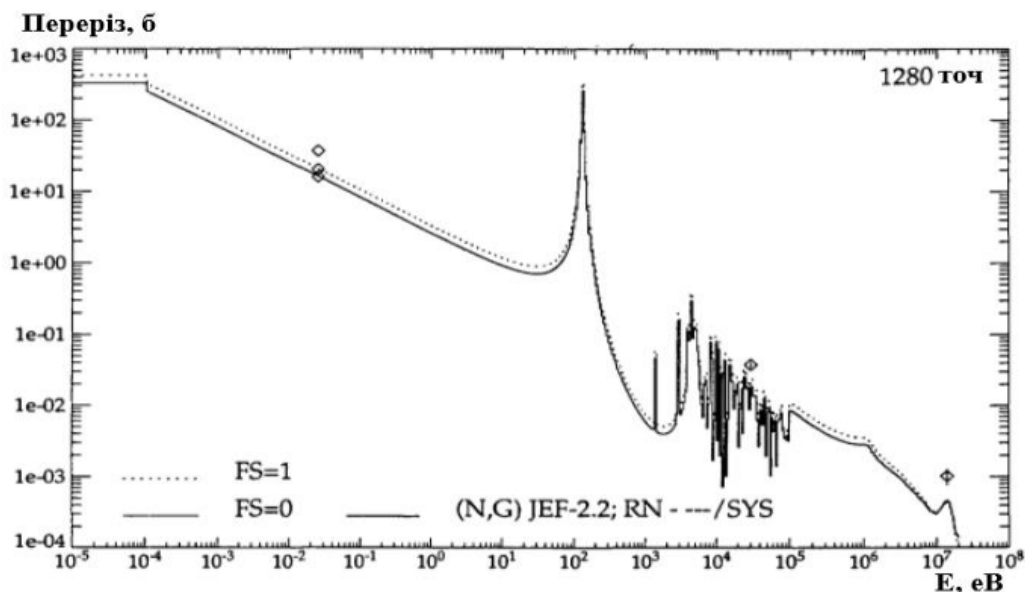


Рис. 2.14 – Функція збудження реакції  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$  [69].

На рисунках 2.12-2.14 внизу вказані бібліотеки, 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 eV, 30 keV та 14.5 MeV. При найвищій енергії лише для реакції  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$ . В цьому випадку пунктирною лінією також зображена функція збудження реакції  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}^m$ .

Як видно з рисунків 2.12-2.14 при активації кобальта, заліза та нікеля основний внесок дають «теплові» нейтрони. Перерізи захвата цих нейтронів описуються формулою  $\sigma \sim \sigma(E=0.025\text{eV}) \times V(E=0.025\text{eV})/V(E)$  де  $V(E)$  – швидкість нейтронів. Як видно, при відносних вимірюваннях можна використовувати дані для енергії нейтронів 0.025 eV. 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  $^{55}\text{Fe}$  та  $^{60}\text{Co}$  за наступними формулами:



$$\begin{aligned} \frac{A(^{59}\text{Ni})}{A(^{60}\text{Co})} &= \frac{(1-e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{58}\text{Ni}}^n N_{^{58}\text{Ni}}}{(1-e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}} = \\ &= \frac{(1-e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{58}\text{Ni}}^n N_{^{58}\text{Ni}}}{(1-e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}} \end{aligned} \quad (2.11)$$

$$\begin{aligned} \frac{A(^{55}\text{Fe})}{A(^{60}\text{Co})} &= \frac{(1-e^{-\lambda(^{55}\text{Fe})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{55}\text{Fe})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{54}\text{Fe}}^n N_{^{54}\text{Fe}}}{(1-e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}} = \\ &= \frac{(1-e^{-\lambda(^{55}\text{Fe})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{55}\text{Fe})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{54}\text{Fe}}^n N_{^{54}\text{Fe}}}{(1-e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}} \end{aligned}$$

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 в 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].  $\lambda(^{59}\text{Ni})$ ,  $\lambda(^{55}\text{Fe})$  та  $\lambda(^{60}\text{Co})$  – сталі радіоактивного розпаду  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{55}\text{Fe}$  та  $^{60}\text{Co}$ , відповідно,  $\text{с}^{-1}$ .  $N_{^{58}\text{Ni}}/N_{^{59}\text{Co}}$  – 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 (1.4) 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, с.

Розраховані активності  $^{59}\text{Ni}$  та  $^{55}\text{Fe}$  наведені в таблиці 2.4. також були виконані виміри активностей досліджуваних зразків за допомогою радіохімічних методів, які також наведені в цій таблиці. Як видно, узгодження гарне.

Таблиця 2.4

## Активності досліджуваних зразків, отриманих обома методами

№п/п	<sup>59</sup> Ni, Бк/г		<sup>55</sup> Fe, Бк/г	
	Фотоактиваційний	Радіохімічний	Фотоактиваційний	Радіохімічний
1	0.02(1)	<0.05	0.8(2)	<0.9
2	0.02(1)	<0.05	0.9(2)	1.0
3	0.02(1)	<0.05	0.6(2)	<0.6
4	0.52(5)	0.68(15)	6.5(7)	7.1(9)

Також важливим радіонуклідом, який утворюється в конструкційних матеріалах на ізотопах нікелю є <sup>63</sup>Ni, який має період напіврозпаду  $T_{1/2} = 100.1$  років. Він розпадається з випромінюванням лише електронів з граничною енергією 67 кеВ. Для їх вимірювання необхідно радіохімічними методами виділити <sup>63</sup>Ni та виміряти низькоенергетичні електрони. Це є доволі складним завданням, тому нами для розв'язання даної проблеми пропонується фотоактиваційна методика, яка ґрунтується на визначенні концентрацій Ni та Co з наступним розрахунком активності <sup>63</sup>Ni, який утворюється в (n,γ)-реакції.

В конструкційних матеріалах основною гамма-активністю після зупинки реактора і протягом наступних 50 років є активність <sup>60</sup>Co. Вона легко вимірюється гамма-спектрометрами, зібраними на базі напівпровідникових детекторів, оскільки при розпаді <sup>60</sup>Co випромінюються γ-кванти високої енергії (1173 та 1333 кеВ). Знаючи активність <sup>60</sup>Co та співвідношення досліджуваних матеріалів порівняно з домішками кобальта можна розрахувати активності, які напрацьовуються в (n,γ)-реакції. Для визначення співвідношення різних елементів в конструкційних матеріалах пропонується використовувати запропоновану вище фотоактиваційну методику [59].

При розрахунку активності <sup>59</sup>Ni, слід мати на увазі, що при роботі реактора має місце опромінення конструкційних матеріалів, які його оточують, потоком нейтронів, в якому найбільша доля припадає на теплові

нейтрони. А при активації кобальта та нікеля основний внесок дають теплові нейтрони, тоді як внесками епітеплових і швидких нейтронів можна знехтувати. Тому в подальших розрахунках ми будемо використовувати табличні значення перерізів саме для теплових нейтронів. Будемо оцінювати відношення активностей  $^{63}\text{Ni}$  та  $^{60}\text{Co}$  за наступною формулою:

$$\frac{A(^{59}\text{Ni})}{A(^{60}\text{Co})} = \frac{(1-e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{58}\text{Ni}}^n N_{^{58}\text{Ni}}}{(1-e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\Phi_n\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}} = \frac{(1-e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{59}\text{Ni})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{58}\text{Ni}}^n N_{^{58}\text{Ni}}}{(1-e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}})e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}\sigma_{^{59}\text{Co}}^n N_{^{59}\text{Co}}} \quad (2.12)$$

де  $A(^{59}\text{Ni})$  та  $A(^{60}\text{Co})$  – активності  $^{63}\text{Ni}$  та  $^{60}\text{Co}$ , відповідно, Бк.  $\Phi_n$  – потік нейтронів в реакторі, н/с.  $\sigma_{^{58}\text{Ni}}^n$  та  $\sigma_{^{59}\text{Co}}^n$  – табличні значення перерізів реакцій  $^{58}\text{Ni}(n,\gamma)^{59}\text{Ni}$  та  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$ , відповідно, взяті із [1], б.  $\lambda(^{63}\text{Ni})=0.693/T_{1/2}(^{63}\text{Ni})$  та  $\lambda(^{60}\text{Co})=0.693/T_{1/2}(^{60}\text{Co})$  – сталі радіоактивного розпаду  $^{59}\text{Ni}$  та  $^{60}\text{Co}$ , відповідно,  $\text{с}^{-1}$ .  $T_{1/2}(^{63}\text{Ni})$  та  $T_{1/2}(^{60}\text{Co})$  – періоди напіврозпаду  $^{59}\text{Ni}$  та  $^{60}\text{Co}$ , відповідно, с.  $N_{^{58}\text{Ni}}/N_{^{59}\text{Co}}$  – співвідношення між кількостями атомів  $^{58}\text{Ni}$  та  $^{59}\text{Co}$ , отримане для даного зразка з формули (3).  $t_{\text{опр}}$ ,  $t_{\text{охол}}$ ,  $t_{\text{вим}}$  – тривалості опромінення, охолодження та вимірювання, відповідно.

В підсумковій формулі (2.12) для активності  $^{63}\text{Ni}$  фігурують експериментально виміряні значення активності  $^{60}\text{Co}$  та співвідношення між кількостями атомів  $^{58}\text{Ni}$  та  $^{59}\text{Co}$ , яке виміряне експериментально через активності  $^{57}\text{Co}$  та  $^{58}\text{Co}$ . З цих даних було отримано, з врахуванням вмісту  $^{62}\text{Ni}$  в природній суміші, що активність  $^{63}\text{Ni}$  в корпусі реактора рівна  $1.60\pm 0.16$  Бк/г, а в матеріалах (жалюзі) вона рівна  $41.3\pm 4.1$  Бк/г. Нами були також проведені радіохімічні дослідження цих зразків і було отримано, що активність  $^{63}\text{Ni}$  в корпусі  $< 2$  Бк/г, а в жалюзі –  $43.2\pm 4.3$  Бк/г. Як видно, узгодження гарне.

Аналіз виходів радіонуклідів показує, що при опроміненні гальмівними гамма-квантами з граничною енергією 37 МеВ зразків масою 10-50 мг

напрацьовуються активності достатні для вимірюванні спектрів  $\gamma$ -квантів протягом 3-4 годин. Це дозволяє опромінювати одночасно 100-200 зразків.

Таким чином розроблений фотоактиваційний метод визначення активностей  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$  та  $^{55}\text{Fe}$  дозволяє значно спростити їх ідентифікацію, 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.

## Розділ 3. Спектрометричний метод визначення активності $^{90}\text{Sr}$

### 3.1. Спектроскопія радіостронцію

Один з перших спектроскопічних методів заснований на вимірюванні  $\beta$ -частинок  $^{90}\text{Y}$  при відсіканні низькоенергетичних електронів за допомогою фільтрів. Вимірювання проводяться аналогічно вимірюванню виходу електронів згідно радіохімічних процедур (див. вище). Однак, в зразках, як правило, присутні фонові радіонукліди з рядів торію і урану, які можуть вносити великі похибки. Тому цей метод необхідно об'єднувати з спектроскопічними вимірами гамма-спектрів досліджуваних зразків і оцінювати внесок в  $\beta$ -спектри фонових радіонуклідів. Крім того в багатьох зразках одночасно з  $^{90}\text{Sr}$  присутній  $^{137}\text{Cs}$ .  $\beta$ -спектр  $^{90}\text{Sr}$  аналогічний  $\beta$ -спектру  $^{137}\text{Cs}$ , однак при розпаді  $^{137}\text{Cs}$  присутні електрони з граничною енергією 1175 кеВ з виходом 5,6 %, конверсійні електрони з енергією 630 кеВ з виходом 10 % і характеристичне випромінювання з енергіями 32 і 36 кеВ і сумарним виходом 7 %. Відзначимо, що проникна здатність Кх Ва відповідає проникній здатності електронів з енергією 3-4 МеВ. Все це привносить значні помилки при вимірюванні виходу електронів за допомогою фільтрів.

Останнім часом значний розвиток отримали спектроскопічні методи, засновані на вимірі спектра електронів на різних сцинтиляційних спектрометрах з тонким вхідним вікном [70]. Це пов'язано з тим, що в даний час внаслідок Чорнобильської аварії в навколишнє середовище потрапила велика кількість радіонуклідів-продуктів поділу. Тому необхідно проводити численні вимірювання проб навколишнього середовища.

Аналіз гамма-спектрів показує, що в основному радіонуклідами, супутніми  $^{90}\text{Sr}$  є  $^{137}\text{Cs}$  та  $^{154}\text{Eu}$ .

Внесок  $^{154}\text{Eu}$  становить 0,3-0,4 % в порівнянні з  $^{137}\text{Cs}$ , при цьому тільки дві групи електронів з граничними енергіями 0,8 МеВ (вихід 20 %) і 1,8 МеВ (вихід 10 %) дають внесок в спектр електронів, який збігається зі спектром електронів  $^{90}\text{Y}$ .

Таким чином при співвідношенні  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr} = 100/1$  похибка за рахунок  $^{154}\text{Eu}$  при оцінці активності  $^{90}\text{Sr}$  не перевищуватиме 10 % і її можна не враховувати.

В цілому, основними радіонуклідами, що формують дози опромінення, за винятком трансуранових нуклідів, є  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{137}\text{Cs}$ . Тому в перших роботах [71] для визначення активності використовувалися тільки калібрувальні джерела  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{137}\text{Cs}$ . Однак при роботі зі зразками з підвищеним вмістом калію значний внесок у спектр електронів вносить  $^{40}\text{K}$ , який входить в суміш ізотопів калію (0,0117%). Тому для успішного опису бета-спектрів необхідно використовувати три калібрувальних джерела (фантома)  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{137}\text{Cs}$ . Крім того, фантом  $^{40}\text{K}$  може імітувати  $^{89}\text{Sr}$  якщо зміщувати розподіл на 150 кеВ. Схеми розпаду  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{137}\text{Cs}$  наведені на рисунку 3.1.

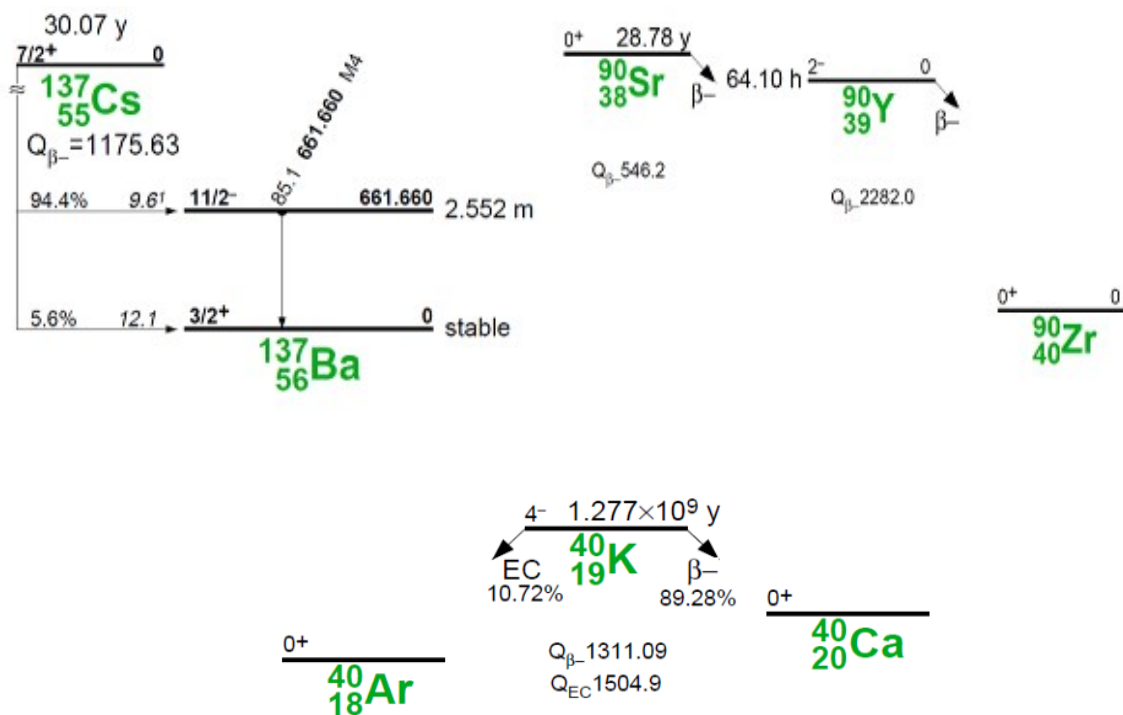


Рис. 3.1 – Схеми розпаду  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  та  $^{40}\text{K}$ .

Спектроскопічний метод ґрунтується на вимірі енергетичного спектра електронів, які супроводжують розпад  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  та  $^{137}\text{Cs}$  [70]. При розпаді  $^{90}\text{Sr}$  випромінюються дві групи електронів з граничними енергіями 0,55 і 2,3 МеВ, а при

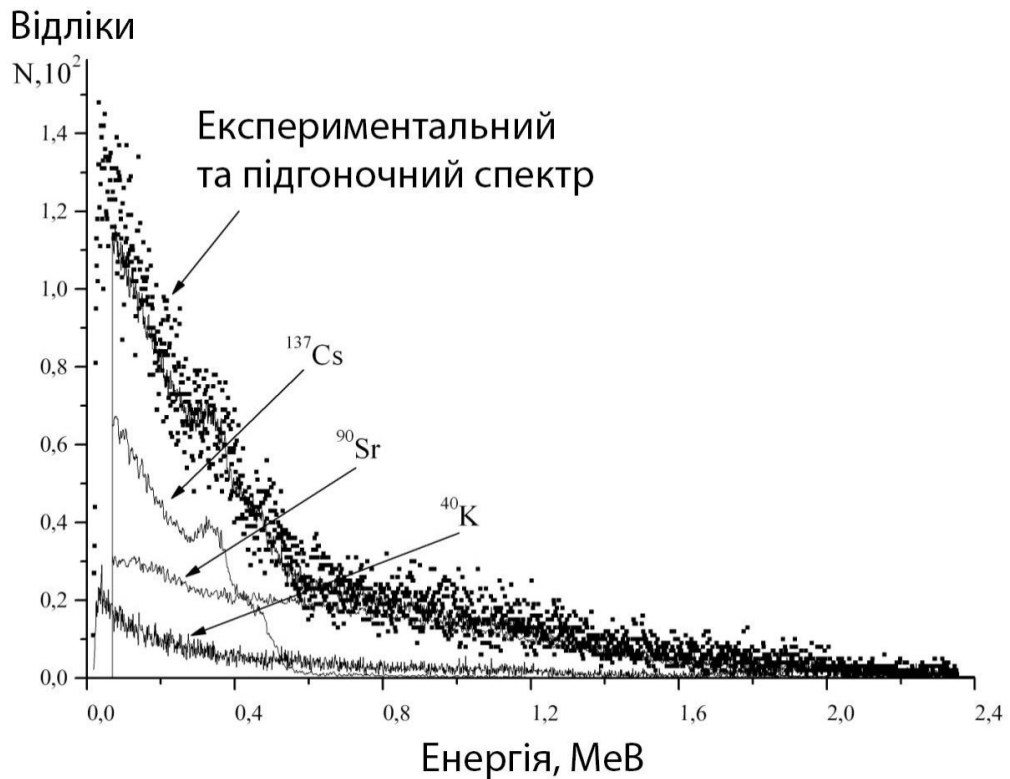
розпаді  $^{137}\text{Cs}$  випромінюються електрони з граничною енергією 0,5 MeV і конверсійні електрони від  $\gamma$  661 кеВ (дивись рисунок 3.1).

Технічні проблеми при вимірюванні  $^{90}\text{Sr}$  зумовлені пробігом електронів в речовині і тим, що електрони з радіоактивного розпаду мають неперервний розподіл від граничної енергії ( $E_{\text{гр}}$ ).

Чим товстіший шар реєстрації електронів в  $\beta$ -детекторі, тим вище його ефективність (а з нею і оперативність оцінки  $^{90}\text{Sr}$ ). Однак через присутність в зразках великих активностей  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  і підвищеного зовнішнього радіаційного фону збільшується ймовірність реєстрації  $\gamma$ -квантів ( $\gamma$ 661 кеВ), комптонівських  $\gamma$ -квантів і, особливо рентгенівського випромінювання  $K_{\alpha}$  Ва, що ускладнює аналіз  $\beta$ -спектра. Відзначимо, що проникна здатність  $K_{\alpha}$  – випромінювання Ва відповідає проникній здатності електронів з енергією 3 MeV. Крім значної домішки  $^{137}\text{Cs}$ , в зразках, відібраних в зонах з щільністю забруднення 1 – 5 Ки/км<sup>2</sup> значний внесок в повний  $\beta$ -спектр починають вносити електрони  $^{40}\text{K}$  ( $E_{\text{гр}} = 1,3$  MeV), особливо якщо вносяться калійні добрива. В таких умовах слід використовувати більш тонкий детектор, товщина шару реєстрації в якому дорівнювала б пробігу  $\beta$ -електронів  $^{90}\text{Y}$ . Стандартні дослідження проводяться з використанням сцинтиляційного детектора, товщина якого становить близько 1 мм і діаметр 76 мм. В запропонованому методі використовується сцинтиляційний детектор з тонким вхідним вікном, що забезпечує проходження електронів з енергією в діапазоні 100-1500 кеВ. Проводиться реєстрація спектрів електронів і ці спектри порівнюються з спектрами калібрувальних джерел (фантомів). Для калібрування по ефективності експериментальних  $\beta$ -спектрів виготовляються стандартні джерела  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{137}\text{Cs}$ , які мають об'єм і щільність близькі до експериментальних зразків.

Обробка експериментальних спектрів проводиться методом їх порівняння з калібрувальним спектром, тобто в даному випадку – зі спектрами, отриманими на цьому ж спектрометрі з використанням стандартних джерел  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  та  $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$

(фантомів). На рисунку 3.2 представлені  $\beta$ -спектри досліджуваних зразків, виміряні на такому спектрометрі.



**Рис. 3.2 –  $\beta$ -спектр ґрунту та фантомів.**

Існують різні методи обробки таких спектрів, на наш погляд найбільш ефективним способом є метод, при якому спектри калібрувальних джерел і фону описуються кубічними сплайнами і надалі використовуються для опису експериментальних спектрів. Реалізація цього процесу відбувається наступним чином.

У загальному випадку, при апроксимації експериментальних даних  $\{y_i\}$ ,  $1 \leq i \leq i_0$ , за допомогою функції  $f(i, X)$ , де  $X$  – вектор підгоночних параметрів  $\{X_j\}$ ,  $0 \leq j \leq j_0$  ( $j_0$  – кількість підгоночних параметрів), необхідно методом найменших квадратів мінімізувати функціонал  $S(X)$  :



$$S(\mathbf{X}) = \sum_{i=1}^{i_0} w_i [f(i, \mathbf{X}) - y_i]^2, \quad (3.1)$$

де  $w_i$  – вагові коефіцієнти, які зазвичай вибираються рівними зворотному квадрату експериментальної похибки.

Для визначення мінімуму функціоналу похідні  $\partial S / \partial X_j$  прирівнюються до

нуля, і отримана система рівнянь вирішується щодо шуканих параметрів  $X_j$ .

Отриманому рішенню  $X_0$  відповідає мінімальне значення функціоналу

$S(X) = S_0$ . Для визначення похибок параметрів для кожного з них по черзі знаходиться рішення рівняння  $S(X_{0j} + \delta X_j, X_{0j}) = S_0 + 1$  відносно  $\delta X_j$ ,

тобто визначається, при якому відхиленні  $j$ -го параметра від оптимальної величини (при фіксованих інших параметрах) значення функціоналу  $S$  збільшується на 1 у порівнянні з мінімальним. При цьому похибка параметрів буде дорівнювати:

$$\Delta X_j = \delta X_j \cdot R, \quad (3.2)$$

де  $R$  – параметр, що враховує якість підгонки, так зване « $\chi^2$  на ступінь свободи».

Процедура обробки  $\beta$ -спектрів представлена нижче.

Перш за все, з оброблюваного спектра і спектрів калібрувальних джерел, кожен з яких складається з  $i_0$  каналів з числом відліків  $N_i$  в  $i$ -му каналі,  $1 \leq i \leq i_0$ , виміряних протягом живого часу  $t_j$ ,

віднімається спектр фону (з урахуванням живих часів). Індекс  $j$  відповідає: 0 – оброблюваному спектру, 1 – калібрувальному спектру  $^{137}\text{Cs}$ , 2 – калібрувальному спектру  $^{90}\text{Sr}$ , 3 –  $^{40}\text{K}$ :

$$y_{j,i} = N_{j,i} - (t_j / t_{\text{фон}}) N_{\text{фон},i},$$

(3.3) де  $1 \leq i \leq i_0$ ,  $0 \leq j \leq 3$ .

В результаті віднімання отримуємо «чисті» калібрувальні спектри  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , і спектр аналізованого зразка. Останній містить невідомі активності  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{137}\text{Cs}$ , а також невелику домішку інших активностей, наприклад  $\gamma$ -нукліди рядів Th і U.

Для компенсації цієї домішки додається квадратичний фон:

$$a = \sum_{k=0}^2 a_k i^k . \quad (3.4)$$

Ще одна поправка вводиться в зв'язку з тим, що при досить тривалій роботі обладнання через зміни живлення ФЕП, підсилення спектрометра може трохи «поплисти» і калібрування по енергії в спектрах проб і калібрувальних спектрах може відрізнятись, тобто  $i$ -му каналу в калібрувальному спектрі буде відповідати енергія  $E_0$ , а в оброблюваному спектрі –  $(1+c)E_0$ , де « $c$ » – мала поправка. Для врахування цього ефекту калібрувальні спектри модифікуються наступним чином. У відповідність  $i$ -му каналу оброблюваного спектра ставиться  $\hat{i}$ -й канал калібрувальних спектрів,  $\hat{i} = (1+c)i$ . Очевидно, в загальному випадку  $\hat{i}$  не є цілим. Тому число відліків калібрувального спектра в  $\hat{i}$ -му каналі визначається методом лінійної інтерполяції:

$$y_{\hat{i}} \approx y_{i_0} + (y_{i_0+1} - y_{i_0}) \cdot (\hat{i} - i_0) \quad (3.5)$$

де  $i_0$  – ціла частина від  $\hat{i}$ .

При виділенні в оброблюваному спектрі області каналів від  $i_1$  до  $i_2$  функціонал набуває вигляду:

$$S(\mathbf{a}, \mathbf{b}, c) = \sum_{i=i_1}^{i_2} w_i \left[ \sum_{j=1}^3 b_j \cdot (y_{j,i} + (y_{j,i+1} - y_{j,i}) \cdot c \cdot i) + \sum_{k=0}^2 a_k i^k - y_i \right]^2 . \quad (3.6)$$

В результаті його мінімізації визначаються параметри, які нас цікавлять  $b_j$  – відносні активності  $^{137}\text{Cs}$  та  $^{90}\text{Sr}$ . Для отримання абсолютної активності  $A$  потрібно

помножити їх на активність калібрувальних джерел і врахувати співвідношення живих часів:

$$A_j = b_j \beta_j t_0 / t_j,$$

(3.7) де  $\beta_j$ - активність відповідного фантома.

Щодо неживих об'єктів (грунт, рослинність), попередньо ретельно гомогенізованих,  $\beta$ -спектрометрія  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  можлива незалежно від розміру зразка. Але тут існує задача коректного обліку самопоглинання  $\beta$ -електронів в залежності від маси та щільності зразка. У лабораторних умовах це завдання вирішується вимірюванням  $\gamma$ - і  $\text{K}_x$ -спектрів  $^{137}\text{Cs}$  в зразку на  $\gamma$ -спектрометрі з детектором з надчистого германію з берилієвим вікном. Завдяки великій різниці в енергіях (32 кеВ і 661 кеВ), процес самопоглинання електронів можна контролювати по самопоглинанню характеристичного випромінювання  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ .

Однак не у всіх лабораторіях є такі спектрометри, тим більше неможливо це робити в польових умовах. Тому при роботі в польових умовах для оцінки самопоглинання електронів, були розроблені методи засновані на вимірі зміщення піку конверсійних електронів від гамма-квантів з енергією 661 кеВ. Цей пік має, на відміну від електронів з радіоактивного розпаду, резонансну форму. Це значно підвищує чутливість до зміни положення піку конверсійних електронів в залежності від щільності зразка. Середня енергія цих електронів  $E = 630$  кеВ. Залежно від втрат на іонізацію відбувається зміщення цього піку за формулою [72]:

$$\frac{d}{\rho} = 0.407 E^{1.38} \quad (3.8)$$

де  $d$  – пробіг електронів в  $\text{г}/\text{см}^2$ ;  $\rho$  – густина в  $\text{г}/\text{см}^3$ ;  $E$  – енергія електронів в МеВ.

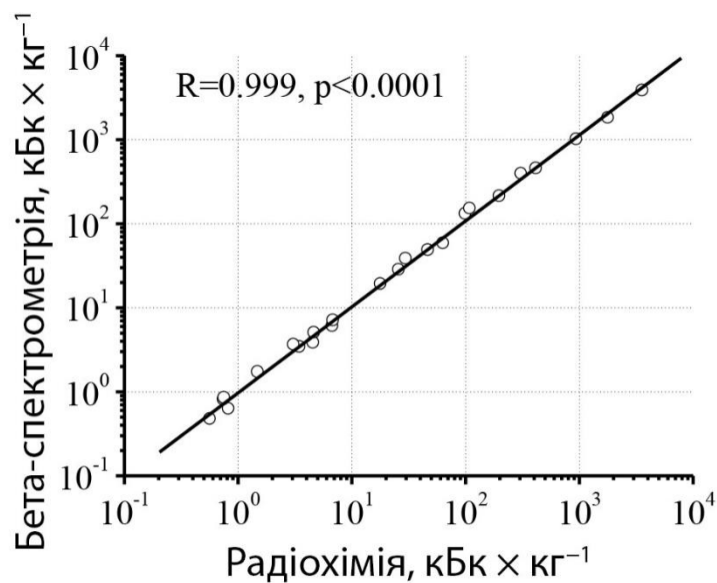
Вимірявши енергію цих електронів в фантомі Cs і порівнявши її з реальним станом в досліджуваному зразку, визначається поправка на самопоглинання в реальному зразку від фантома. Природно, що ця поправка буде різною для різних

типів детекторів і матеріалу фантома. Тому бажано, щоб густини ( $\rho$ ) фантома і реальних зразків не сильно відрізнялися, тобто для зразків рослин і тварин необхідно використовувати фантом з щільністю близькою до 1, а для проб ґрунту з щільностями, близькими до густини досліджуваного типу ґрунтів. Проведені дослідження показали, що поправка на самопоглинання визначається формулою:

$$\Delta A = 0,16(E_{\phi} - E) \cdot A, \quad (3.9)$$

де  $\Delta A$  в %,  $A$  – активність  $^{137}\text{Cs}$ ;  $E_{\phi}$  – енергія конверсійного піку в фантомі (кеВ);  
 $E$  – енергія конверсійного піку в реальному спектрі (кеВ).

Була проведена верифікація цього методу в порівнянні з радіохімічними вимірюваннями. Порівняння результатів вимірювань  $^{90}\text{Sr}$  в зразках ґрунту показало повне узгодження в межах 10-15 %, при зміні активності в зразках на чотири порядки (дивись рисунок 3.3 і таблицю 3.1).



**Рис. 3.3 – Порівняння результатів визначення активності  $^{90}\text{Sr}$  в зразках ґрунту (n = 24) методами бета-спектрометрії і радіохімії, кБк кг $^{-1}$ .**

Таблиця 3.1

Питома активність  $^{90}\text{Sr}$  в зразках ґрунту, визначена різними способами

Точка відбору та глибина, см	Питома активність, Бк/кг		Відхилення Dev.
	Радіохімія	Спектрометрія	
0 – 2	$9.50 \cdot 10^5$	$1.01 \cdot 10^6$	- 0.06
2 – 4	$3.10 \cdot 10^5$	$3.88 \cdot 10^5$	- 0.20
4 – 7	$1.10 \cdot 10^5$	$1.48 \cdot 10^5$	- 0.26
7 – 10	$4.70 \cdot 10^4$	$4.75 \cdot 10^4$	- 0.01
10 – 15	$3.00 \cdot 10^4$	$3.79 \cdot 10^4$	- 0.21
15 – 20	$6.90 \cdot 10^3$	$7.02 \cdot 10^3$	- 0.02
20 – 25	$7.50 \cdot 10^2$	$8.04 \cdot 10^2$	- 0.07
25 – 30	$7.60 \cdot 10^2$	$8.36 \cdot 10^2$	- 0.09
0 – 2	$1.80 \cdot 10^6$	$1.80 \cdot 10^6$	0.00
2 – 4	$4.20 \cdot 10^5$	$4.50 \cdot 10^5$	- 0.07
4 – 7	$1.00 \cdot 10^5$	$1.33 \cdot 10^5$	- 0.25
7 – 10	$2.60 \cdot 10^4$	$2.80 \cdot 10^4$	- 0.07
10 – 15	$4.70 \cdot 10^3$	$4.96 \cdot 10^3$	- 0.05
15 – 20	$3.10 \cdot 10^3$	$3.62 \cdot 10^3$	- 0.14
20 – 25	$3.50 \cdot 10^3$	$3.41 \cdot 10^3$	0.03
25 – 30	$4.60 \cdot 10^3$	$3.84 \cdot 10^3$	0.20
0 – 2	$3.60 \cdot 10^6$	$3.83 \cdot 10^6$	- 0.06
2 – 4	$2.00 \cdot 10^5$	$2.14 \cdot 10^5$	- 0.07
4 – 7	$6.40 \cdot 10^4$	$5.84 \cdot 10^4$	0.10
7 – 10	$1.80 \cdot 10^4$	$1.85 \cdot 10^4$	- 0.03
10 – 15	$6.80 \cdot 10^3$	$6.03 \cdot 10^3$	0.13
15 – 20	$1.50 \cdot 10^3$	$1.68 \cdot 10^3$	- 0.11
20 – 25	$5.70 \cdot 10^2$	$4.73 \cdot 10^2$	0.21
25 – 30	$8.30 \cdot 10^2$	$6.16 \cdot 10^2$	0.35

Таким чином, спектроскопічний метод, заснований на вимірюванні спектрів електронів, враховує фізико-хімічний стан досліджуваних об'єктів і нестабільність роботи електронних систем в польових умовах. Це забезпечує підвищення точності вимірювань і надійність роботи спектрометрів. Цей метод дозволяє проводити дослідження концентрації  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{137}\text{Cs}$  в різних об'єктах при зміні співвідношення  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  від 1 до 100 з похибкою кращою 20 %.

### 3.2. Методи корекції бета-спектроскопічних досліджень

Як відомо, в пробах навколишнього середовища з  $^{90}\text{Sr}$  завжди присутній  $^{137}\text{Cs}$ .  $^{137}\text{Cs}$  розпадається з випусканням характеристичного випромінювання Ва з виходом 7 % і гамма-випромінювання з енергією 662 кеВ і виходом 85%.

У лабораторних умовах для неживих об'єктів (грунт, рослинність), попередньо і ретельно гомогенізованих, завдання коректного обліку самопоглинання  $\beta$ -електронів в залежності від маси та густини зразка вирішується вимірюванням  $\gamma$ - і  $K_x$ -спектрів зразка на  $\gamma$ -спектрометрі з детектором з надчистого германію з берилієвим вікном. Нами досліджені  $\gamma$ - і  $K_x$ -спектри таких зразків [73]. Гамма-спектри радіонуклідів вивчалися з використання антикомptonівського спектрометра з HPGe-детектором, що має вхідне берилієве вікно.

У польових умовах вимірювання проводилися на переносному спектрометрі з HPGe-детектором з тонким вхідним вікном. Для калібрування були виготовлені об'ємні калібрувальні джерела з радіонуклідами  $^{137}\text{Cs}$  і  $^{241}\text{Am}$  з густиною  $\rho=1.1$  г/см<sup>3</sup>. З отриманих даних були визначені активності  $^{137}\text{Cs}$  по виходу  $K_\beta$ -випромінювання Ва (36 кеВ) і  $\gamma$ -променів з енергією 661 кеВ. Результати досліджень наведені в таблиці 3.2.

Для розробки методики були також розраховані величини:

$$d_{1/2} = \frac{\ln 2}{N} \sum_i \frac{A_i}{p_i \sigma_i(E)} \quad (3.10)$$

де  $d_{1/2}$  – шар половинного поглинання (г/см<sup>2</sup>);  $N$  – число Авогадро;  $A_i$  – середня маса ;  $p_i$  – доля маси даного елемента;  $\sigma_i(E)$ - переріз з роботи [74].

**Таблиця 3.2**  
**Співвідношення активностей  $^{137}\text{Cs}$  для різних глибин**

Глибина відбору, см	$A_{661}/A_{36}$	$K$	$A_{661}/A_{36}$	$K$	$A_{661}/A_{36}$	$K$
---------------------	------------------	-----	------------------	-----	------------------	-----

1	1,39 3	1,33	1,32	1,27	1,47	1,39
	1,41 5.5	1,34	1,52	1,42	1,47	1,39
	1,33 8.5	1,29	1,22	1,20	1,30	1,26
	1,19 12.5	1,17	1,02	1,02	1,23	1,21
	1,27 17.5	1,24	1,09	1,08	1,11	1,11
	1,08 22.5	1,07	0,82	0,80	1,10	1,09
	0,61 27.5	0,51	1,06	1,06	1,09	1,08
	1,37	1,31	0,90	0,90	1,11	1,11

Аналіз співвідношення різних елементів в ґрунтах показав, що з точністю 5 % співвідношення слабо змінюється для різних типів ґрунтів.

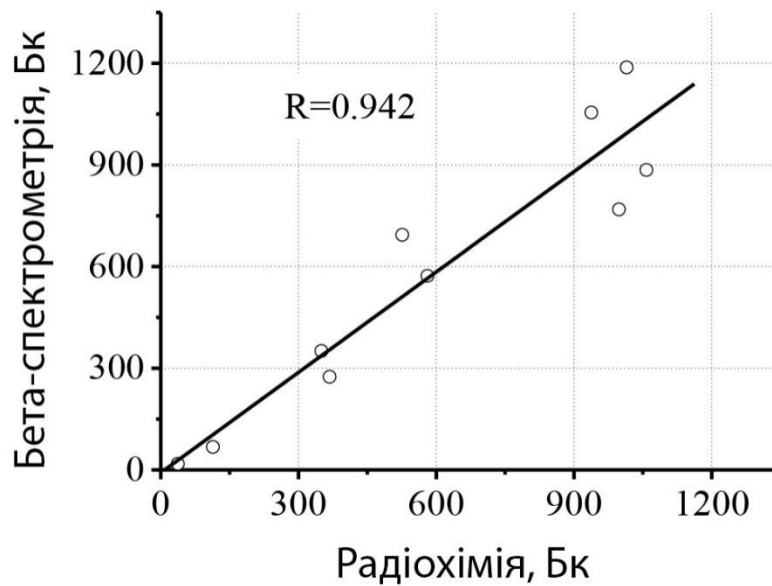
Аналіз отриманих результатів показав, що густина в польових умовах змінюється на величину, рівну  $K = 1 + \ln(A_{661} / A_{36})$ .

Перевірка цього співвідношення для зразків з вимірною масою і об'ємом показала, що ця зміна збігається з прямим вимірюванням густини досліджуваного зразка з похибкою 5-10 %. Причому розбіжність зменшується, якщо густина досліджуваного зразка близька до густини калібрувальних джерел.

Однією з переваг неруйнівної спектроскопії  $^{90}\text{Sr}$  є можливість прижиттєвих досліджень його поведінки в живих об'єктів. Тут вже немає проблем з щільністю, але виникають методичні складнощі при врахуванні розміру досліджуваних об'єктів. Нами проведені дослідження на дрібних мишоподібних гризунах і птахах.

Порівняльний аналіз, виконаний на дрібних мишоподібних гризунах масою тіла від 14,1 до 45,1 г з питомою активністю  $^{137}\text{Cs}$  від 0,7 до 393 Бк/г, показав, що результати бета-спектрометрії відрізняються від результатів радіохімії в середньому на 24 %, без систематичного відхилення (рисунок 3.4). Зауважимо, що коефіцієнт кореляції дуже високий  $R = 0,942$



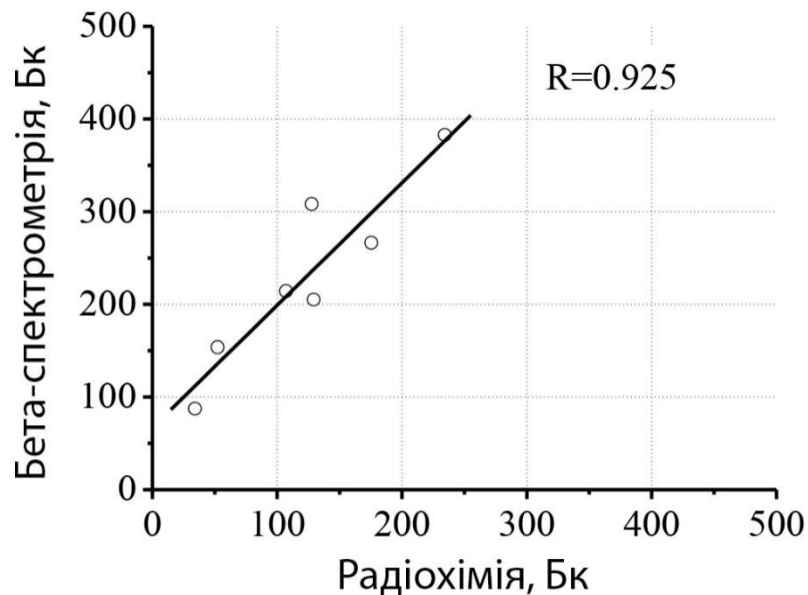


**Рис. 3.4 – Порівняння результатів визначення активності  $^{90}\text{Sr}$  в мишах ( $n = 10$ ), отриманих методом бета-спектрометрії і радіохімії, Бк на зразок.**

Тому ймовірно необхідно ввести поправочний коефіцієнт, пов'язаний з неможливістю виготовлення фантома, що враховує те, що стронцій знаходиться в скелеті.

Аналогічне порівняння було проведено і для вибірки птахів масою від 10,2 до 23,2 г, які мають питому активність  $^{137}\text{Cs}$  в тілі від 1,1 до 8,9 Бк/г. Послідовна оцінка загального вмісту  $^{90}\text{Sr}$ , виконана методами бета-спектрометрії і радіохімії, показала, що між результатами двох методів тут теж існує хороша кореляція,  $R = 0,925$  (рисунок 3.5). Однак, на відміну від результатів, отриманих для мишоподібних гризунів, результати радіохімії  $^{90}\text{Sr}$  у птахів виявилися систематично нижче результатів бета-спектрометрії, склавши лише  $51 \pm 5\%$ . Вочевидь, існуюча відмінність є наслідком впливу специфічного для птахів просторового розподілу в тілі стронційвмісних структур (кісток), що відрізняється від ссавців. Так, кістки кінцівок птахів складають значно більшу частину від загальної маси скелета, ніж це має місце у мишоподібних гризунів. Крім того, якщо

розглядати тварин як геометричне джерело у формі еліпсоїда, то у птахів кістки передніх кінцівок винесені до верхньої поверхні еліпсоїда, ближче до бета-детектору, і в меншій мірі прикриті (екрановані) тканинами, ніж це має місце у гризунів. Це, безсумнівно, повинно підвищувати ефективність реєстрації бета-частинок. Надалі, коефіцієнт, що відображає систематичне відхилення результатів бета-спектрометрії від радіохімії, був введений в розрахунки при оцінці вмісту  $^{90}\text{Sr}$  у птахів на польовому бета-спектрометрі. Після його введення для даного набору зразків середнє відхилення результатів бета-спектрометрії від результатів радіохімії набуває несистематичний характер і становить близько 20%.

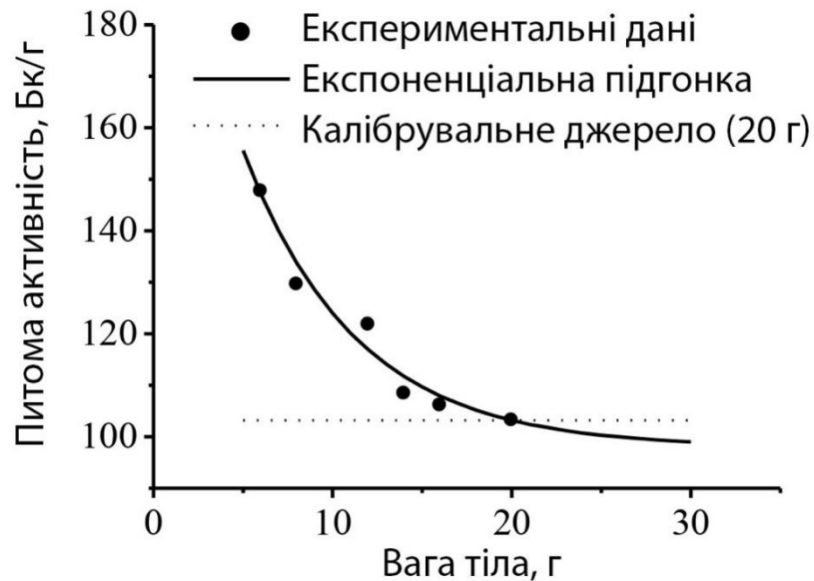


**Рис. 3.5 – Порівняння результатів бета-спектрометричного і радіохімічного визначення загального вмісту  $^{90}\text{Sr}$  в тілі птахів ( $n = 7$ ).**

Крім того, що тварини різних систематичних груп можуть мати різну топографію скелета, яка впливає на результати прижиттєвої бета-спектрометрії  $^{90}\text{Sr}$ , в польових дослідженнях доводиться мати справу з особинами різного розміру. Очевидно, що ступінь самопоглинання електронів  $^{90}\text{Y}$  в тілі дрібних особин буде відрізнятися від такої у великих. Ретельні вимірювання зразків з відомим вмістом  $^{90}\text{Sr}$  показали, що виліт бета електронів і, відповідно, ймовірність

їх реєстрації різко зростає зі зменшенням розмірів тіла (рисунок 3.6). Для розрахунку активності  $^{90}\text{Sr}$  у тварин різних розмірів необхідно вводити поправку  $k$  на масу тіла ( $m$ ), виражену через параметри експоненціального рівняння:

$k = 0.949 + 1.24e^{-\frac{m}{6.28}}$ . Для цього вихідну величину активності зразка ділили на коефіцієнт  $k$ .



**Рис. 3.6 – Залежність результату оцінки питомої активності  $^{90}\text{Sr}$  від розмірів тіла (маси) тварини.**

Таким чином, дані методики корекції активності  $^{90}\text{Sr}$  задовільно працюють для тварин дрібних розмірів і при проведенні досліджень в польових умовах.

Отримані результати дають змогу розробити прижиттєві методи вимірювання  $^{90}\text{Sr}$ .

Прижиттєвий метод можна використовувати не тільки в стаціонарній лабораторії, а й у польовій лабораторії, організованій на базі автобуса, Проведення досліджень на базі мобільної лабораторії дає змогу розширити можливості проведених вимірювань, тому що немає необхідності транспортувати радіоактивні

об'єкти в стаціонарну лабораторію, а також уможлиблює вимірювання вмісту радіонуклідів у особливо чутливих до транспортування видів (птахи, кажани).

Метод прижиттєвої оцінки вмісту радіонуклідів у тілі дрібних тварин дає змогу використовувати його в радіоекологічних дослідженнях у районах із техногенним забрудненням і лабораторних експериментах із вивчення хронічної дії чинників фізичної природи на біоту, він вирізняється оперативністю і зберігає життя тварині.

## Розділ 4. Апробація розроблених методів

### 4.1. Дослідження концентрації радіонуклідів на полігонах в ближній зоні ЧАЕС

Внаслідок аварії на Чорнобильській АЕС відбулося руйнування реактора РБМК-1000. Це призвело до викиду значної кількості радіоактивних речовин в навколишнє середовище. Радіоактивні речовини виділялись з реактора в атмосферу протягом перших десяти днів з моменту аварії, перед тим, як вдалось зупинити викиди.

В таблиці 4.1. наведений склад викидів деяких радіонуклідів до 6 травня 1986 року та викиди протягом першого дня аварії (викид до 6 травня перерахований з врахуванням розпаду на 6 травня).

Таблиця 4.1

Викид деяких ізотопів протягом 1-го дня аварії і до 6 травня 1986 р.

Нуклід	Активність викиду, МКи		% від загальної кількості в реакторі
	26.04.86 р.	до 06.05. 86 р.	
$^{137}\text{Cs}$	0,3	1,0	13
$^{90}\text{Sr}$	0,015	0,22	4,0
$^{238}\text{Pu}$	$0,1 \cdot 10^{-3}$	$0,8 \cdot 10^{-3}$	3,0
$^{239}\text{Pu}$	$0,1 \cdot 10^{-3}$	$0,7 \cdot 10^{-3}$	3,0
$^{241}\text{Pu}$	0,02	0,14	3,0
$^{242}\text{Pu}$	$0,3 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-6}$	2,0
$^{242}\text{Cm}$	$0,3 \cdot 10^{-2}$	$2,1 \cdot 10^{-2}$	3,0
$^{239}\text{Np}$	2,7	1,2	3,2

Радіаційні вимірювання та аналіз зразків, відібраних в радіусі 30 км від станції та по усій території СРСР, дозволили зробити висновок, що при аварії з палива були викинуті матеріали з активністю порядку  $(1-2) \times 10^{18}$  Бк ( $25-50 \times 10^6$  Ки) [75,76].

Згідно розрахунків відсотковий склад продуктів ділення активної зони, які випали на різних відстанях від станції, склав:

на майданчику: 0,3-0,5%;

в радіусі 20 км: 1,5-2,0%;

за межами 20 км: 1,0-1,5%.

В пробах повітря та випадінь радіонукліди знаходились як у складі частинок («гарячі» частинки), так і у вигляді радіоактивних аерозолей (в основному, легких). Були виявлені «гарячі» частинки з підвищеним вмістом окремих радіонуклідів, «цезієві», «рутенієві», котрі могли утворитись в результаті міграції продуктів ділення в паливній матриці, в матеріалах конструкцій та засипки (на реактор було скинуто з гелікоптерів 5000 т з'єднань бора, доломіта, піска, глини та свинцю). Внаслідок цього Чорнобильська зона є унікальним об'єктом для досліджень у галузі радіоекології та радіобіології. У зоні знаходяться полігони різного ступеня забрудненості радіонуклідами і важкими елементами. На цих полігонах проводяться систематичні дослідження процесів міграції радіонуклідів. В даний час основна увага приділяється вивченню поведінки трансуранових нуклідів Am і Pu [35,36,77]. Активність цих нуклідів у багатьох дослідженнях вимірюється спектроскопічним методом за  $L_x$ -випромінюванням U, Np і  $\gamma$ 59 кеВ  $^{241}\text{Am}$  [78].

Після встановлення другого конфайнмента радіаційна обстановка поблизу об'єкта "Укриття" змінилася [79]. Тому нами проведені дослідження концентрації радіонуклідів на полігонах в ближній зоні ЧАЕС [80]. Для цього в 2017-2019 р. після виконання робіт по установці конфайменту, були відібрані проби в двох шарах (0-3 см; 4-7 см) для визначення можливого впливу робіт по перекриттю саркофага.

Гамма-спектри радіонуклідів вивчали з використанням антикомptonівського спектрометра з Ge-детектором, що має вхідне берилієве вікно і енергетичну роздільну здатність 1,9 кеВ на  $\gamma$ -лініях 603 кеВ.

Ефективність спектрометра становить 15 % в порівнянні з NaI (Tl) -детектором розмірами 3"×3". Послаблення комптонівського фону в низькоенергетичної області було не менше ніж в 8 разів. Це дозволило нам надійно ідентифікувати такі радіонукліди як  $^{241}\text{Am}$  навіть в найглибших шарах.

Для калібрування були виготовлені об'ємні калібрувальні джерела з радіонуклідами  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  і  $^{241}\text{Am}$ .

При використанні слабоактивних проб із зони аварії на ЧАЕС виникають проблеми з калібруванням спектрометра по ефективності реєстрації гамма-квантів в області низьких енергій через різні густини досліджуваних зразків. Для вирішення цього завдання були проведені методичні дослідження зміни ефективності реєстрації гамма-променів в пробах великого об'єму. Для цього було відібрано по 8 проб до глибини 30 см в різних розрізах. В отриманих даних порівнювалася активність  $^{137}\text{Cs}$ , розрахована по виходу  $K_{\beta}$ -випромінювання Ва (36 кеВ) і  $\gamma$ -променів з енергією 661 кеВ. Результати дослідження наведені в таблиці 4.2. Різниця в активностях пов'язувалося зі зміною густини в досліджуваних зразках. З цих даних були отримані вирази для визначення поправки при вимірюванні активності  $^{241}\text{Am}$  (59 кеВ):

$$A(^{241}\text{Am})^* = A(^{241}\text{Am}) \cdot (1,6 - 0,6 A(661 \text{ кеВ}) / A(K_{\beta} \text{ Ва})), \quad (4.9)$$

де  $A(^{241}\text{Am})$  – активність  $^{241}\text{Am}$  виміряна зі стандартною калібруванням по ефективності реєстрації  $\gamma$ -квантів;  $A(K_{\beta}\text{Ва})$  – активність  $^{137}\text{Cs}$ , виміряна по виходу  $K_{\beta}$ -випромінювання Ва (36 кеВ);  $A(661 \text{ кеВ})$  – активність  $^{137}\text{Cs}$ , виміряна по  $\gamma 661 \text{ кеВ}$ .

**Таблиця 4.2**

**Активності та співвідношення активностей в зразках ґрунту в залежності від глибини**

№	Глибина відбору, см	Активність Бк/г	Відношення активностей
---	---------------------	-----------------	------------------------

		A(Am) <sub>зр</sub>	A(Am)*	Am/Am*	A <sub>661</sub> /A <sub>36</sub>
	розріз 1				
1	0-2	209	244	0,86	0,72
2	2-4	583	685	0,85	0,71
3	4-7	286	330	0,87	0,75
4	7-10	24,9	27,4	0,91	0,84
5	10-15	5,61	6,31	0,89	0,79
6	15-20	2,88	3,00	0,96	0,93
7	20-25	5,85	3,64	1,61	1,63
8	25-30	8,27	9,61	0,86	0,73
	розріз 2				
9	0-2	217	248	0,88	0,76
10	2-4	240	289	0,83	0,66
11	4-7	327	363	0,90	0,82
12	7-10	215	217	0,99	0,98
13	10-15	187	196	0,95	0,92
14	15-20	63,0	55,3	1,14	1,20
15	20-25	4,16	4,32	0,96	0,94
16	25-30	0,76	0,71	1,07	1,11
	розріз 3				
17	0-2	384	458	0,84	0,68
18	2-4	465	555	0,84	0,68
19	4-7	374	425	0,88	0,77
20	7-10	83,9	93,5	0,90	0,81
21	10-15	13,3	14,1	0,94	0,90
22	15-20	6,43	6,78	0,95	0,91
23	20-25	3,72	3,90	0,95	0,92
24	25-30	2,12	2,25	0,94	0,90

Для перевірки цього виразу з вимірних зразків були відібрані навіски і приготовлені зразки з товщиною, яка слабо впливає на вихід  $K_{\beta}Va$ . Отримано співпадання активностей з точністю  $(4 \div 6)\%$ . Статистична похибка вимірювань не перевищувала 5 %.

Результати вимірювань відібраних проб за описаними методиками наведені в таблиці 4.3 а характерний  $\gamma$ -спектр на рисунках 4.1, 4.2. На рисунку

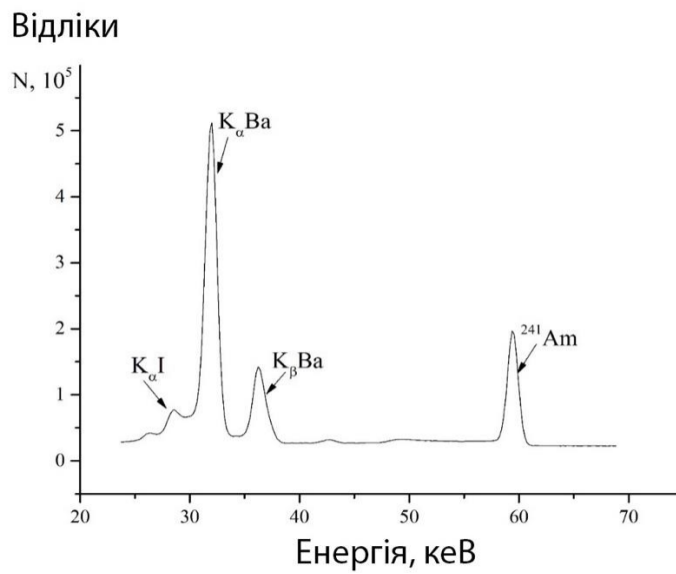


4.3 наведена карта відбору проб, проба -1, відбиралася на глибині 0-3 см, проба -2, відбиралася на глибині 3 -7см.

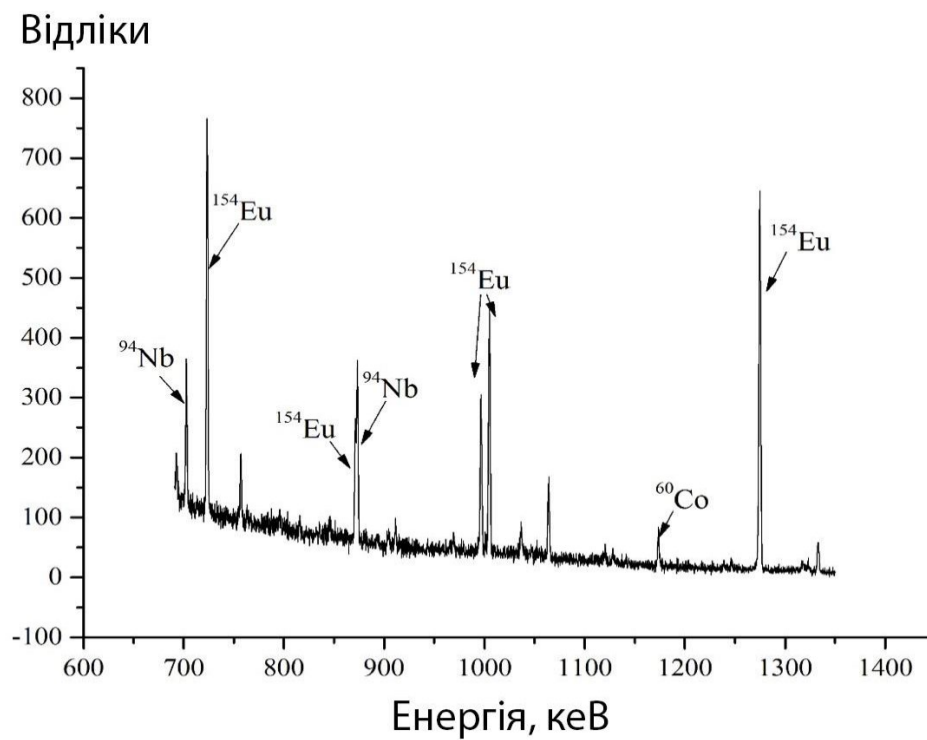
**Таблиця 4.3**

**Активності та місця відбору проб**

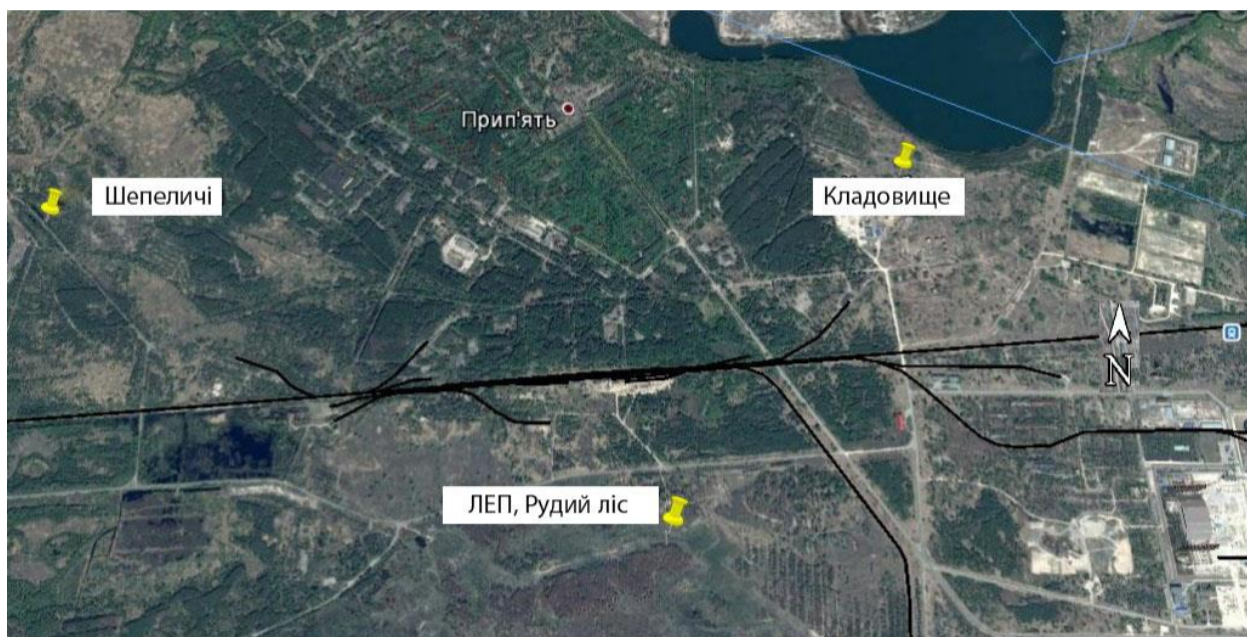
Місце відбору	Активність Бк/зразок						
	<sup>137</sup> Cs	<sup>90</sup> Sr	<sup>241</sup> Am	<sup>94</sup> Nb	<sup>60</sup> Co	Am/Sr	Am/Cs
ЛЕП1-1	12834	2180	483	4,04	0,82	0.22	0,04
ЛЕП1-2	806	95	29	0	0	0.30	0,04
лес1-1	643	291	2,64	0	0	0.01	0,004
Лес1-2	185	148	7,19	0	0	0.04	0,039
Ново-Шепеличі1-1	262	13,7	15,2	0	0,70	1.11	0,058
Ново-Шепеличі1-2	39,6	7,8	8,53	0	0	1.10	0,21
Ново-Шепеличі2-1	375	3,4	7,71	0	0	2.29	0,02
Ново-Шепеличі2-2	257	8,3	17,2	0	0	2.08	0,067
Чистогалівка1-1	7623	1760	874	3,71	7,24	0.49	0,115
Чистогалівка1-2	2244	18	73,5			4.08	0,033
Чистогалівка2-1	46253	6429	1148	3,75	8,23	0.17	0,025
Чистогалівка2-2	5936	867	211	0	0	0.24	0,036
Прип'ять1-1	28003	2436	1012	9,8	1,49	0.41	0,036
Прип'ять1-2	10506	200	392	2,4	0,79	1.96	0,037
Прип'ять2-1	15123	2450	670	3,7	1,1	0.27	0,044
Прип'ять2-2	2322	453	190	0,2	0,059	0.42	0,082
рудий ліс1-1	15587	212	476	1,4	1,0	2.24	0,030
рудий ліс1-2	1387	427	54	0,10		0.12	0,038
рудий ліс2-1	5164	961	271	0,94	0,40	0.28	0,052



**Рис. 4.1 – Гамма-спектр зразка ґрунту в низькоенергетичній області.**



**Рис. 4.2 – Гамма-спектр зразка ґрунту у високоенергетичній області.**



**Рис. 4.3 – Карта відбору зразків.**

У результаті проведених досліджень спостерігається аномальне співвідношення  $A(^{241}\text{Am})/A(^{137}\text{Cs})$ , величина змінюється від 0,004 до 0,215. Зазначимо, що ця величина з раніше проведених досліджень очікувалася рівною 0,025. Крім традиційних нуклідів, у гамма-спектрах спостерігаються  $\gamma$ -кванти з розпаду  $^{94}\text{Nb}$  ( $T_{1/2}=2\times 10^4$  років) і гамма-переходи  $^{60}\text{Co}$  ( $T_{1/2}=5,3$  г). Зазначимо, що активність  $^{60}\text{Co}$  зменшилася до теперішнього часу в 75 разів. Причому ці радіонукліди спостерігаються, в основному, у верхніх шарах. Тому зроблено висновок, що спостережувані активності  $^{60}\text{Co}$  і  $^{94}\text{Nb}$ , найімовірніше, пов'язані з потраплянням фрагментів конструкційних матеріалів з об'єкта Укриття. Ці результати показують, що  $^{94}\text{Nb}$  можна використовувати як репер для оцінки внеску "нових" випадіннь.

В цілому можна відзначити, що на полігони поблизу об'єкта "Укриття" надійшли нові випадіння, пов'язані як з паливовмісними матеріалами, так і з конструкційними. Тому потрібно обережно проводити порівняння нових даних з раніше отриманими. Оцінено внесок нових надходжень радіонуклідів

через установку конфаймента і показано значну зміну концентрації радіонуклідів  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{94}\text{Nb}$  і  $^{241}\text{Am}$  поблизу об'єкта "Укриття". Пропонуються репери контролю нових надходжень за активністю  $^{94}\text{Nb}$ .

#### **4.2 Дослідження міграції радіонуклідів на полігонах, що примикають до 30км зони ЧАЕС**

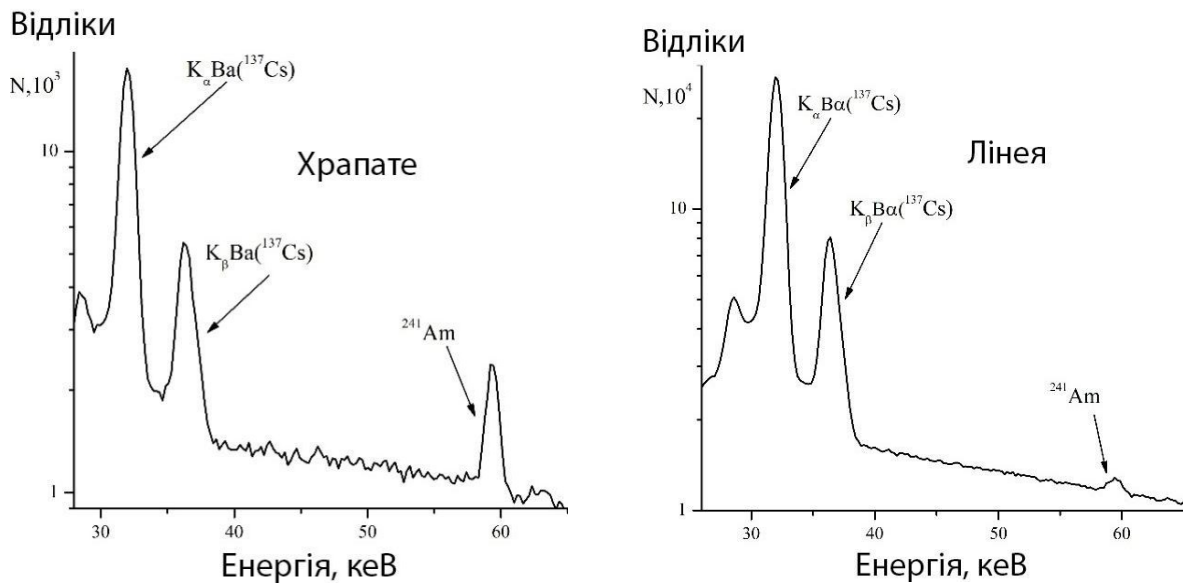
З 90-х років у 30-км зоні ЧАЕС проводяться дослідження на полігонах поблизу об'єкта Укриття [35,80–82]. У низці цих досліджень спостерігалася прискорена вертикальна міграція  $^{241}\text{Am}$ . Як відомо, це один із радіологічно небезпечних радіонуклідів, тому дослідження поведінки  $^{241}\text{Am}$  у навколишньому середовищі - одне з актуальних завдань.

При моделюванні процесів міграції передбачається, що радіонукліди потрапили в навколишнє середовище в одиничному викиді, і надалі переміщення активностей відбувається, в основному, за рахунок дифузії та конвективного перенесення. Раніше дослідження проводилося, в основному, в 30-км зоні ЧАЕС, тому представляє певний інтерес вивчення поведінки радіонуклідів за межами 30-км зони ЧАЕС для оцінки дозових навантажень на населення і порівняння їхньої поведінки з міграцією радіонуклідів у 30-км зоні ЧАЕС.

Тут необхідно зазначити, що 2016-2017 рр. у 30-км зоні ЧАЕС проходили роботи зі встановлення конфаймента. При цьому проводилися роботи з розкриття ґрунту поблизу об'єкта "Укриття", що призвело до потрапляння радіонуклідів у навколишнє середовище. Це значно ускладнює моделювання процесів міграції, тому що порушується умова одноразового викиду. Нами в цій роботі проведено дослідження вертикальної міграції радіонуклідів на полігонах поблизу м. Славутич у селах Лінея, Храпате, Центральне, які розташовані поза 30-км зоною поблизу м. Славутича. На

полігонах поза 30-км зоною ЧАЕС відбирали проби до глибини 30 см (8 шарів). Проби відбирали методом конверта (4 проби) з кроком 2 м.

Гамма-спектри радіонуклідів вивчали з використанням антикомptonівського спектрометра з Ge-детектором, що має вхідне берилієве вікно та енергетичну роздільну здатність 1,9 кеВ на  $\gamma$ -лініях  $^{60}\text{Co}$  та 350 еВ на  $\gamma$ 59 кеВ  $^{241}\text{Am}$ . Ефективність спектрометра становить 15 % порівняно з  $\text{NaI(Tl)}$ -детектором розмірами  $3'' \times 3'$ . Придушення комptonівського фону в низькоенергетичній ділянці було не менше ніж у 8 разів. Це дало нам змогу надійно ідентифікувати такі радіонукліди, як  $^{241}\text{Am}$  за гамма-лінією 59 кеВ навіть у найглибших шарах. Фрагменти гамма-спектрів наведено на рис.4.4.



**Рис. 4.4 - Фрагменти гамма-спектрів верхнього шару ґрунтів у низькоенергетичній області.**

Для калібрування були виготовлені об'ємні калібрувальні джерела з радіонуклідами  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  і  $^{241}\text{Am}$ . У таблиці 4.4 наведено дані вимірювань до глибини 30 см для одного з розрізів.

**Таблиця 4.4**

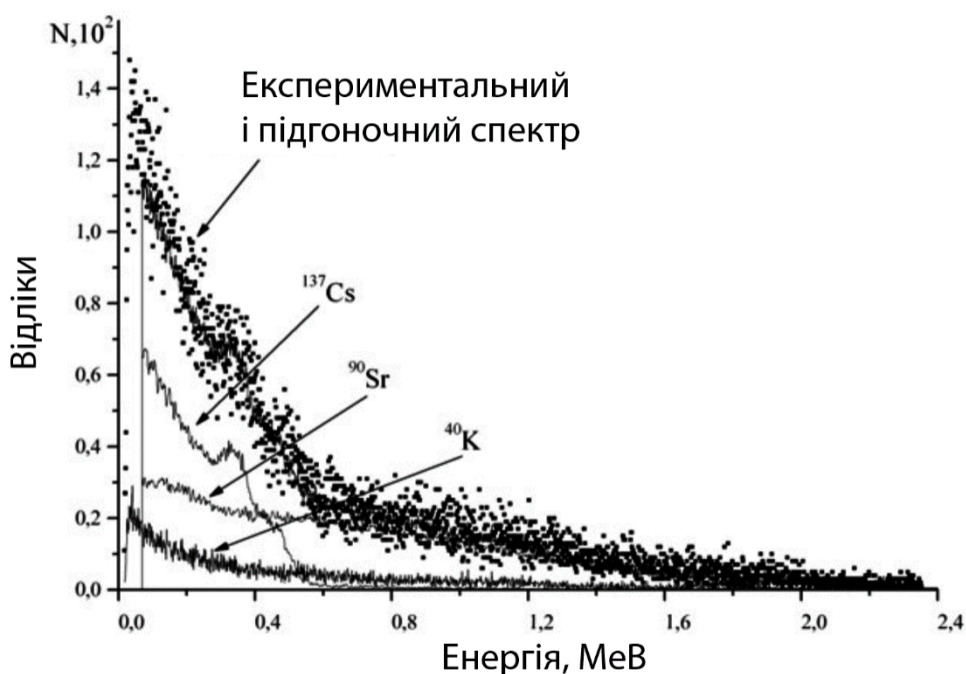
**Активність  $^{137}\text{Cs}$  і  $^{241}\text{Am}$  у розрізі ґрунтів, відібраних біля села Храпате**

Глибина відбору/Активність (Бк/г)	$A_{661}/A_{36}$	$A(\text{Am})_{\text{обр}}$	$A(\text{Am})^*$	$\text{Am}/\text{Am}^*$
1	0,72	209	244	0,86
5,5	0,75	286	330	0,87
8,5	0,84	24,9	27,4	0,91
12,5	0,79	5,61	6,31	0,89
17,5	0,93	2,88	3,00	0,96
22,5	1,63	5,85	3,64	1,61
27,5	0,73	8,27	9,61	0,86

Вимірювання концентрації  $^{90}\text{Sr}$  проводили за допомогою нерадіохімічної методики [70]. Запропонований метод ґрунтується на вимірюванні енергетичного спектра електронів, що супроводжують розпад  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{137}\text{Cs}$ . Під час розпаду  $^{90}\text{Sr}$  випускаються дві групи електронів з граничною енергією 0,55 і 2,3 МеВ, а під час розпаду  $^{137}\text{Cs}$  випускаються електрони з граничною енергією 0,5 і 1,175 МеВ і конверсійними електронами від  $\gamma$  661 кеВ. Технічні проблеми при вимірюванні  $^{90}\text{Sr}$  зумовлені пробігом електронів у речовині. Крім того, через присутність у зразку на порядок більшої активності  $^{137}\text{Cs}$ , електронів  $^{40}\text{K}$  і підвищеного зовнішнього радіаційного фону збільшується ймовірність реєстрації  $\gamma$ -квантів ( $\gamma$  661 кеВ), комптонівських  $\gamma$ -квантів і, особливо рентгенівського випромінювання  $\text{K}\alpha$ , що ускладнює аналіз  $\beta$ -спектрів. Крім  $^{137}\text{Cs}$ , у зразках, відібраних у зонах із щільністю забруднення  $1 \text{ Ки}/\text{км}^2$  значний внесок у повний  $\beta$ -спектр починають вносити електрони  $^{40}\text{K}$  ( $E_{\text{гр}}=1,3 \text{ МеВ}$ ). У таких умовах слід використовувати більш тонкий детектор, товщина шару реєстрації в якому дорівнювала б пробігу  $\beta$ -електронів  $^{90}\text{Y}$ . Нами дослідження проводилися з використанням сцинтиляційного детектора, товщина якого становила близько 1 мм і діаметром 76 мм. Для калібрування за ефективністю експериментальних  $\beta$ -

спектрів було виготовлено стандартні джерела  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{137}\text{Cs}$  з характеристиками за об'ємом і густиною близькими до експериментальних зразків.

Обробку експериментальних спектрів проводили методом їхнього порівняння з калібрувальним спектром, тобто в даному випадку - зі спектрами, отриманими на цьому ж спектрометрі з використанням стандартних джерел  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  і  $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$  (фантомів). На рис. 4.5 представлені  $\beta$ -спектри досліджуваних зразків.



**Рис. 4.5.  $\beta$ -спектр ґрунту, відібраного біля села Храпате та фантомів.**

Спектри калібрувальних джерел і фону описувалися кубічними сплайнами і надалі використовувалися для опису експериментальних спектрів. Реалізацію цього методу здійснено в програмі Betafit [70].

Однак, як і для  $^{241}\text{Am}$ , існує завдання коректного врахування самопоглинання  $\beta$ -електронів залежно від маси та густини зразка. У

лабораторних умовах це завдання розв'язується вимірюванням  $\gamma$ - і  $K_x$ -спектрів зразка на  $\gamma$ -спектрометрі з детектором із надчистого германію з берилієвим вікном. Завдяки спектрам, отриманим на такому детекторі, процес самопоглинання електронів можна контролювати за самопоглинанням характеристичного випромінювання  $^{137m}\text{Ba}$ .

Однак не у всіх лабораторіях є такі спектрометри, тим більше неможливо це робити в польових умовах. Тому під час роботи в польових умовах для оцінки самопоглинання електронів, нами розроблено метод [73], що ґрунтується на вимірюванні зсуву піку конверсійних електронів  $\gamma$  661 кеВ (див. п. 3.3 цієї дисертації). Цей метод дає змогу проводити дослідження концентрації  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{137}\text{Cs}$  у різних об'єктах у разі зміни співвідношення  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  від 1 до 100 з похибкою не гірше 20.

Основні вимірювання трансуранових нуклідів проводилися через вимірювання  $L_x$ -випромінювання U, Np і  $\gamma$ 59 кеВ  $^{241}\text{Am}$  [78]. Для перевірки цих вимірювань були проведені радіохімічні дослідження  $\alpha$ -спектрів трансуранових нуклідів. Метод визначення активності ізотопів  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  ґрунтувався на їхньому відокремленні від групи супутніх ізотопів із використанням іонообмінної смоли BioRad AG 1x8 з наступним вимірюванням активності приготовленої мішені  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  на альфа-спектрометрі, а активності ізотопу  $^{241}\text{Pu}$  на рідинноцинтіляційному лічильнику. Розрахунок хімічного виходу та ефективності реєстрації ізотопів  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  виконується за радіоактивною міткою  $^{242}\text{Pu}$ .

Метод визначення активності  $^{241}\text{Am}$  був заснований на його відокремленні від лантаноїдів за допомогою іонного обміну на смолі BioRad AG 1x4 з подальшим приготуванням лічильного зразка і вимірювання його активності на альфа-спектрометрі. Для розрахунку ефективності реєстрації ізотопу альфа-спектрометром і хімічного виходу америцію, використовується радіоактивна мітка ізотопу  $^{243}\text{Am}$ .



Лічильні зразки Pu і Am готували методом електролізу, вимірювання проводили на альфа-спектрометрі AlphaAnalyst. Альфа-спектри америцію та ізотопів Pu після радіохімічного розділення представлені на малюнках 4.6 і 4.7. Як добре видно, на представлених малюнках нами впевнено фіксуються всі перераховані вище альфа-нукліди. Такі дослідження були виконані для всіх полігонів до глибини 20-25 см.

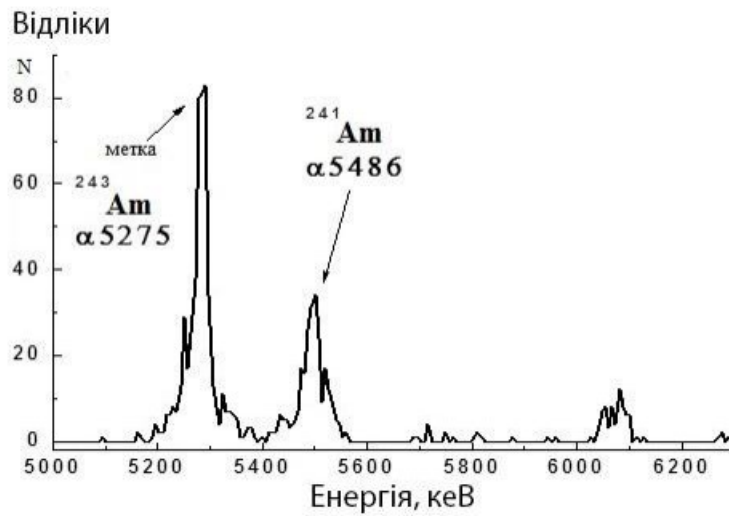
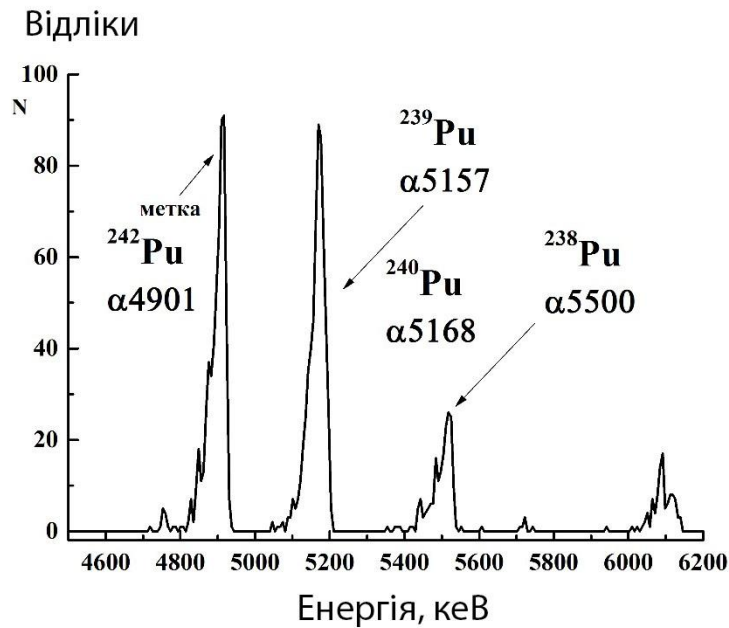


Рис. 4.6 - Фрагмент  $\alpha$ -спектра ґрунту з виділеним Am.

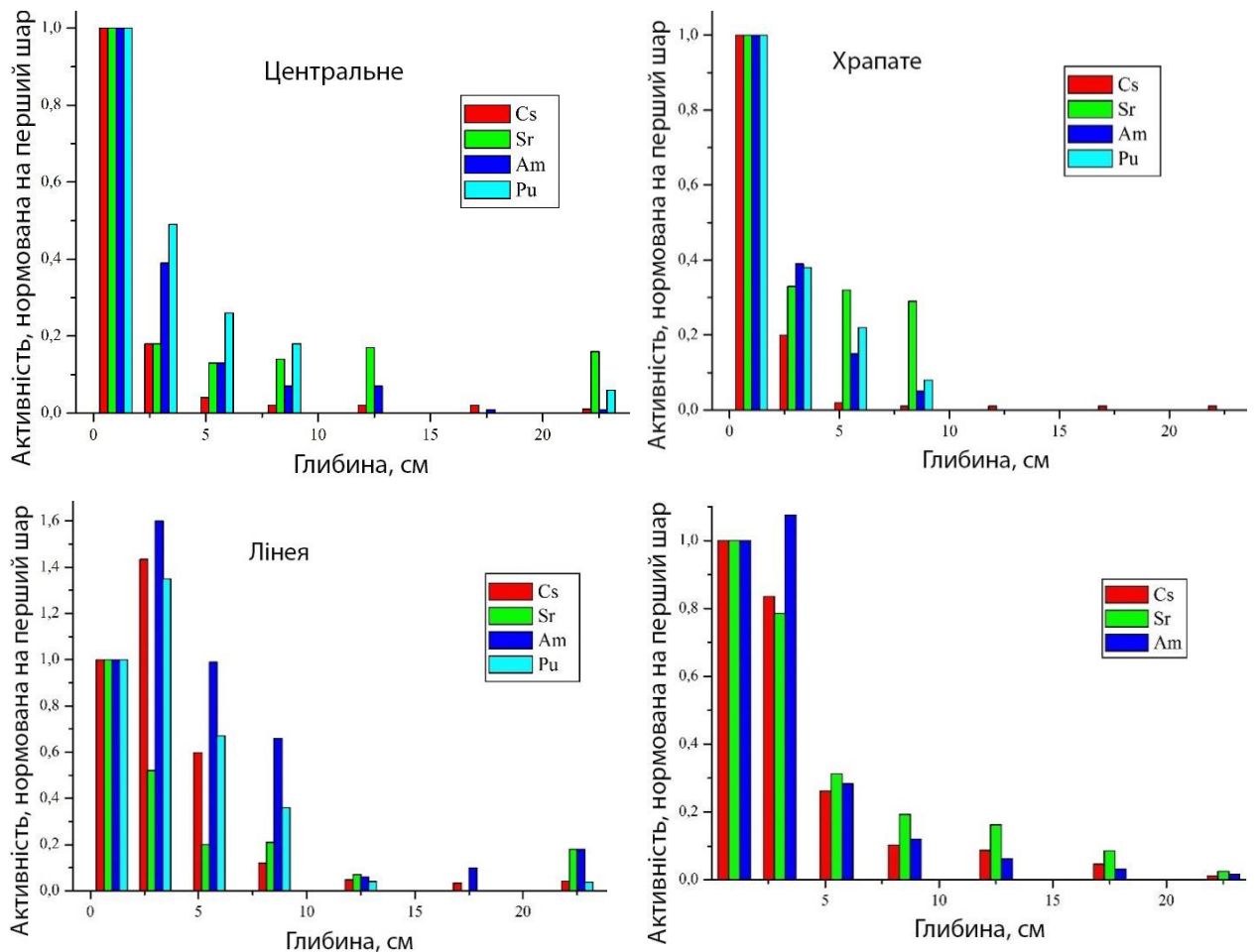


**Рис. 4.7 - Фрагмент  $\alpha$ -спектра ґрунту з виділеними ізотопами Pu.**

Результати досліджень концентрації радіонуклідів у ґрунтах і динаміка їхньої рухомості у вивчених розрізах ґрунтів наведені в таблиці 4.5 і на рис. 4.8.

**Таблиця 4.5**  
**Активність радіонуклідів у верхньому шарі вивчених розрізів**

Місце відбору	Cs	Am	Pu	Sr	Sr/Am	Cs/Sr
Линяя	3283	5,8	8,0	86	15,0	37,8
Храпатове	1113	10,3	6,7	81	8,0	13,6
Центральное	1185	17,5	4,7	90	5,1	13,1



**Рис. 4.8 - Гістограми відносного розподілу радіонуклідів у вертикальних розрізах ґрунту.**

Для порівняння на рис. 4.8 (з) також наведено результати досліджень на полігоні поблизу об'єкта "Укриття", де випадання аналогічні до полігонів, що вивчаються. Отримані дані вказують, що  $^{137}\text{Cs}$  сильно зв'язується у верхньому 0-4 см шарі. Аналіз показує, що  $^{137}\text{Cs}$  випав у вигляді аерозольних випадіння, а  $^{90}\text{Sr}$  і трансуранові нукліди обумовлені паливною компонентою. Результати досліджень було проаналізовано в рамках конвективно-дифузійної моделі міграції радіонуклідів. У рамках цієї моделі, якщо початкова умова - одноразовий викид:  $C(x, 0) = 2C_0\delta(x)$ , де  $C_0$  - поверхнева концентрація, розподіл радіонуклідів описується виразом:

$$C(x,t) = C_0 \frac{1}{\sqrt{p \times D t}} \exp\left\{-\frac{(x - Vt)^2}{4Dt}\right\} - \frac{Vx}{2D} \exp\left\{-\frac{Vx}{D}\right\} - \operatorname{erf}\left\{\frac{x + Vt}{2\sqrt{Dt}}\right\} \quad (4.9)$$

де:  $C_0$ ,  $C(x, t)$  - вміст радіонукліда в ґрунтовому шарі  $x$  у початковий момент часу та час  $t$ ,  $D$  - коефіцієнт дифузії радіонукліда,  $\text{см}^2 \text{ год}^{-1}$ ,  $V$  - швидкість спрямованого перенесення радіонукліда зі струмом вологи,  $\text{см рік}^{-1}$ .

Використовуючи цей вираз, було отримано величини  $D$  і  $V$ , які виявилися близькими до даних про міграцію  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{241}\text{Am}$  на полігонах 30-км зони ЧАЕС, а також розраховано періоди напівочищення 5см шару ґрунту від цих радіонуклідів, що дорівнювали 30-40 рокам. Це є підтвердженням того, що ці нукліди обумовлені паливними випадіннями. У той же час, міграція  $^{137}\text{Cs}$  сповільнена в 2-3 рази порівняно з  $^{90}\text{Sr}$ . Загалом можна зробити висновок, що  $^{137}\text{Cs}$ , зумовлений аерозольними випадіннями, сильно зв'язується в ґрунті, а "гарячі частинки" в паливних випадіннях руйнуються, що призводить до прискорення процесів міграції, переважно за рахунок конвективного перенесення.

У раніше проведених дослідженнях вертикальної міграції радіонуклідів у ближній зоні ЧАЕС [81–84] з аналізу профілів розподілу радіонуклідів у ґрунті на різних ділянках експериментального полігону, а також значень

ізотопних відношень  $^{90}\text{Sr}/^{154}\text{Eu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}/^{154}\text{Eu}$ ,  $^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$  і  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ , з урахуванням того, що маркером паливних часток може служити  $^{154}\text{Eu}$ , показано, що відмінності в характері та інтенсивності перерозподілу розглядуваних радіонуклідів у профілі ґрунтів зумовлені низкою причин. В автоморфних мінеральних ґрунтах із нормальним водним режимом радіонукліди можна розташувати в такий ряд відповідно до їхньої міграційної рухливості:  $^{90}\text{Sr} > ^{137}\text{Cs} > ^{241}\text{Am} > ^{239,240}\text{Pu}$ . У гідроморфних органогенних ґрунтах міграційна рухливість  $^{137}\text{Cs}$  порівнянна з рухливістю  $^{90}\text{Sr}$ . У разі малої інтенсивності деструкції паливних частинок і переходу радіонуклідів з їхньої матриці в ґрунтовий розчин спостерігається близька інтенсивність перенесення всіх радіонуклідів. Зрозуміло, що в разі механічного перемішування ґрунту, наприклад, унаслідок ріючої діяльності тварин, спостерігаються хаотичні профілі розподілу радіонуклідів у ґрунті.

Таким чином, неоднорідність просторового розподілу випадінь на території, множинність фізико-хімічних форм радіоактивних випадінь і різна динаміка їхньої трансформації в ґрунті, складний радіонуклідний склад випадінь, гетерогенність ґрунтового покриву, рійна діяльність диких тварин зумовлюють суттєво різну інтенсивність перерозподілу радіонуклідів у профілі ґрунтів.

Відмінності в розподілі основних дозоутворювальних радіонуклідів у профілі ґрунтів, так само як і відмінності в густині органогенних і мінеральних ґрунтів, істотно позначаються на формуванні як потужності експозиційної дози  $\gamma$ -полів на різних ділянках експериментального полігону, так і її динаміки. Гетерогенність просторового розподілу радіоактивного забруднення на території полігонів разом із зазначеними вище причинами зумовлює суттєві відмінності в значеннях потужності експозиційної дози на різних ділянках полігонів.

Можливість побудови прогностичних оцінок перерозподілу радіонуклідів у ґрунтовому профілі має винятково важливе практичне значення. Прогноз вмісту радіонуклідів у кореневмісному шарі ґрунту природних і штучних фітоценозів дає змогу оцінити зміну їхньої рухливості в ланцюгах міграції в компонентах цих систем, а також одержати адекватніші довготривалі оцінки зміни потужності експозиційної дози гамма-випромінювання, сформованої на місцевості гамма-випромінювальними радіонуклідами.

Як відомо, динаміка переходу радіонуклідів із ґрунту в рослини визначається трьома основними процесами - виносом радіонукліда з кореневмісного горизонту ґрунту, динамікою вмісту біологічно доступних форм радіонукліда в цьому шарі ґрунту і фізичним розпадом радіонукліда. Зазначимо, що подібні оцінки отримано в [85] для деяких ґрунтів у Зоні відчуження ЧАЕС, розташованих на різній відстані та в різних напрямках від точки викиду. У роботі [85] показано, що міграційна рухливість  $^{90}\text{Sr}$  у ґрунтах території на відстані 4-23 км від точки викиду, де забруднення характеризується різним співвідношенням паливної та конденсаційної компонент випадінь і істотно меншим розміром паливних часток, у 2-11 разів перевищує таку для ґрунтів території, розташованої близько до осі "паливного" сліду на відстані 2-3 км від точки викиду, де забруднення представлене суттєво більшими паливними частками.

Для цих же ділянок міграційна рухливість  $^{90}\text{Sr}$  у ґрунтах у 2-18 разів перевищує таку, як у  $^{137}\text{Cs}$ , тоді як для ґрунтів території, розташованої близько до осі "паливного" сліду на відстані 2-3 км від точки викиду, таке перевищення становить лише 1,4 раза.

Інтенсивність вертикального перенесення  $^{90}\text{Sr}$  практично збігається зі швидкістю вертикального перенесення  $^{137}\text{Cs}$ . Значення екологічних періодів напівочищення кореневмісних горизонтів ґрунтів від  $^{90}\text{Sr}$  у 5-см шарі

сформованих на гідроморфних ґрунтах збагачених органічною речовиною  $T_{ек}=30\pm 15$  років.

Зіставлення отриманих результатів для автоморфних мінеральних ґрунтів легкого механічного складу ( $T_{ефф}$   $^{90}\text{Sr}$  оцінено у 22 роки) з аналогічними оцінками, розрахованими [86] для  $^{90}\text{Sr}$  глобальних випадів (середнє значення  $T_{ефф}$  для дерново-підзолистих ґрунтів складає 11,6 років), показало, що на територіях, забруднення яких було представлене паливною компонентою випадінь із великою часткою крупних паливних частинок,  $^{90}\text{Sr}$  мігрує у ґрунтах із інтенсивністю, значно меншою, ніж та, що характерна для глобальних випадінь.

Результати досліджень показали, що вертикальна міграція радіонуклідів викиду ЧАЕС у ґрунтах ближньої зони ЧАЕС реалізується з невеликою швидкістю. Відзначено істотно менш інтенсивну вертикальну міграцію трансуранових радіонуклідів порівняно з  $^{137}\text{Cs}$  і  $^{90}\text{Sr}$ . З урахуванням параметрів вертикального перенесення в профілі ґрунтів і періоду напіврозпаду трансуранових радіонуклідів їхнє депонування у верхньому шарі ґрунту спостерігатиметься протягом сотень років.

Отримані в роботі оцінки істотно доповнюють і розширюють наявну картину розвитку радіоекологічної обстановки в населених пунктах поблизу 30-кілометрової зони ЧАЕС, що складається на пізній фазі аварії. Кількісні дані про інтенсивність перерозподілу радіонуклідів у ґрунтах цієї зони ЧАЕС у край необхідні для одержання адекватних оцінок доцільності та прийнятності реабілітації відчужених територій за радіоекологічними показниками, для вибору й оцінки сценаріїв можливих напрямів реабілітаційної діяльності, тобто збереження й відновлення довкілля, створення умов надійної безпеки життя й діяльності людини в умовах критичної ситуації, що виникла в результаті великої ядерної аварії.

Таким чином було досліджено вертикальну міграцію радіонуклідів на полігонах, що примикають до 30-кілометрової зони ЧАЕС. Показано, що міграція радіонуклідів паливних випадінь відбувається аналогічно, як і поблизу об'єкта "Укриття". Показано, що основна компонента  $^{137}\text{Cs}$  пов'язана з аерозольними випадіннями і радіонукліди  $^{137}\text{Cs}$  зв'язуються в поверхневому шарі.

## Висновки

У представленій роботі проведено експериментальні та теоретичні дослідження виходів фотоядерних реакцій на атомах, що входять до складу конструкційних матеріалів АЕС. На підставі проведених досліджень розроблено нові методи реєстрації довгоживучих радіонуклідів, що розпадаються без випускання гамма-квантів.

1. Уперше виміряно виходи  $(\gamma, 2n)$ - і  $(\gamma, p2n)$ -реакцій на атомах  $^9\text{Be}$  і  $^{10}\text{B}$  у широкому діапазоні енергії гальмівного випромінювання.

2. За допомогою фотоактиваційного аналізу визначено вміст атомів берилію та заліза в конструкційних матеріалах другого енергоблока ЧАЕС. На підставі отриманих даних розроблено новий метод контролю вмісту  $^{10}\text{Be}$  в опромінених конструкційних матеріалах.

3. Досліджено експериментальні та теоретичні виходи фотоядерних реакцій на атомах нікелю та кобальту при опроміненні мішеней гальмівними гамма-променями.

4. Вивчено вміст нікелю, заліза і кобальту в конструкційних матеріалах АЕС фотоактиваційним методом і розроблено метод контролю активності  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ .

5. Вивчено вплив неоднорідностей у досліджуваних зразках на розрахунки активності радіонуклідів та отримано напівемпіричні формули їх врахування.

6. Оцінено внесок нових надходжень радіонуклідів у верхні шари ґрунтів 30-км зони ЧАЕС через установку конфаймента і показано значну зміну концентрації радіонуклідів  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{94}\text{Nb}$  і  $^{241}\text{Am}$  поблизу об'єкта "Укриття". Пропонуються репери контролю нових надходжень за активністю  $^{94}\text{Nb}$ .

7. При дослідженнях вертикальної міграції радіонуклідів на полігонах, що примикають до 30-кілометрової зони ЧАЕС показано, що міграція



радіонуклідів паливних випадінь відбувається аналогічно, як і поблизу об'єкта "Укриття". Однак основна компонента  $^{137}\text{Cs}$  пов'язана з аерозольними випадіннями і радіонукліди  $^{137}\text{Cs}$  зв'язуються в поверхневому шарі.

## Перелік посилань

1. IAEA. Nuclear Technology Review 2020. Vienna, 2020. 77 p.
2. Evans J.C. et al. Long-Lived Activation Products in Reactor Materials. Richland, WA 99352, 1984. 185 p.
3. IAEA. Construction for Nuclear Installations. Specific Safety Guide. IAEA Safety Standards Series No. SSG-38. Vienna, 2015.
4. IAEA. Design of Instrumentation and Control System for Nuclear Power Plants. Specific Safety Guide. IAEA Safety Standards Series No. SSG-39. Vienna, 2016.
5. ASM International. Properties and Selection: Nonferrous Alloys and Special-Purpose Materials. ASM International, 2002. Vol. 2. 3470 p.
6. Hou X. Radiochemical analysis of radionuclides difficult to measure for waste characterization in decommissioning of nuclear facilities // J Radioanal Nucl Chem. 2007. Vol. 273, № 1. P. 43–48.
7. Mellado J. et al. Combination of chemical separation and data treatment for  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  activity determination in radioactive waste by liquid scintillation // Applied Radiation and Isotopes. 2005. Vol. 63, № 2. P. 207–215.
8. Holm E., Roos P., Skwarzec B. Radioanalytical studies of fallout  $^{63}\text{Ni}$  // Int J Rad Appl Instrum A. 1992. Vol. 43, № 1–2. P. 371–376.
9. Chul Lee, Martin J.E., Griffin H.C. Optimization of measurement of  $^{63}\text{Ni}$  in reactor waste samples using  $^{65}\text{Ni}$  as a tracer // Applied Radiation and Isotopes. 1997. Vol. 48, № 5. P. 639–642.
10. Sousa A. et al. Radiochemical Separation of Nickel for  $^{59}\text{Ni}$  and  $^{63}\text{Ni}$  Activity Determination in Nuclear Waste Samples // Nuclear Power Plants. 2012. P. 279–292.

11. Bondar'kov M.D. et al. Radioactivity in technological NPP waste // Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. 2009. Vol. 73, № 2. P. 266–269.
12. Gudelis A. et al. Assessing deposition levels of  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Co}$  and  $^{63}\text{Ni}$  in the Ignalina NPP environment // J Environ Radioact. 2010. Vol. 101, № 6. P. 464–467.
13. Taddei M.H.T. et al. Determination of  $^{63}\text{Ni}$  and  $^{59}\text{Ni}$  in spent ion-exchange resin and activated charcoal from the IEA-R1 nuclear research reactor // Applied Radiation and Isotopes. 2013. Vol. 77. P. 50–55.
14. Hou X., Østergaard L.F., Nielsen S.P. Determination of  $^{63}\text{Ni}$  and  $^{55}\text{Fe}$  in nuclear waste samples using radiochemical separation and liquid scintillation counting // Anal Chim Acta. 2005. Vol. 535, № 1–2. P. 297–307.
15. Lee C.H. et al. Sequential separation of  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{59}/^{63}\text{Ni}$  from radioactive wastes // J Radioanal Nucl Chem. 2007. Vol. 272, № 1. P. 187–194.
16. IAEA. Determination and Use of Scaling Factors for Waste Characterization in Nuclear Power Plants. IAEA Nuclear Energy Series No. NW-T-1.18. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2009. 132 p.
17. ISO. Nuclear energy. Nuclear fuel technology. Scaling factor method to determine the radioactivity of low- and intermediate-level radioactive waste packages generated at nuclear power plants: ISO 21238:2007 // International Standardisation Organisation. 2007. P. 30.
18. Kim T.H. et al. Statistical methodologies for scaling factor implementation: Part 1. overview of current scaling factor method for radioactive waste characterization // Journal of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology. 2020. Vol. 18, № 4. P. 517–536.
19. Hou M., Zhou X., Liu B. Beryllium oxide utilized in nuclear reactors: Part I: Application history, thermal properties, mechanical properties, corrosion

- behavior and fabrication methods // Nuclear Engineering and Technology. 2022. Vol. 54, № 12. P. 4393–4411.
20. Zhang L. et al. Preparation of boric-10 acid applied in nuclear industry // Transactions of Tianjin University. 2015. Vol. 21, № 2. P. 172–177.
  21. Höhne T. et al. Boron dilution transients during natural circulation flow in PWR—Experiments and CFD simulations // Nuclear Engineering and Design. 2008. Vol. 238, № 8. P. 1987–1995.
  22. Jurgensen A.R., Hart J.C., Farrow L.L. Beryllium Limits of Detection and Spectral Interferences in 2% Nitric Acid, Digested Air Filter Paper, and GHOSTWIPE(TM) Matrices by Inductively Coupled Plasma Emission Spectrometry. WSRC-TR-2003-00493. Aiken, SC, 2003. 15 p.
  23. Minogue E. et al. Development of a New Fluorescence Method for the Detection of Beryllium on Surfaces // J ASTM Int. 2005. Vol. 2, № 9. P. 13168.
  24. Ashley K. et al. Interlaboratory Evaluation of a Portable Fluorescence Method for the Measurement of Trace Beryllium in the Workplace // J ASTM Int. 2005. Vol. 2, № 9. P. 13156.
  25. ASTM International. Standard Test Method for the Determination of Metals and Metalloids by Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry. ASTM Standard D 7035. Annual Book. West Conshohocken, PA: ASTM International, 2004.
  26. Ashley K., Brisson M.J., John S.D. Standard methods for beryllium sampling and analysis: Availabilities and needs // J ASTM Int. 2005. Vol. 2, № 9.
  27. Taylor T.P. et al. Beryllium in the Environment: A Review // Journal of Environmental Science and Health, Part A. 2003. Vol. 38, № 2. P. 439–469.
  28. Horwitz E.P. Extraction Chromatography of Actinides and Selected Fission Products: Principles and Achievement of Selectivity // International Workshop on the Application of Extraction Chromatography in Radionuclide Measurement. 1998. Vol. E.

29. Horwitz E.P. et al. Separation and preconcentration of actinides by extraction chromatography using a supported liquid anion exchanger: application to the characterization of high-level nuclear waste solutions // *Anal Chim Acta*. 1995. Vol. 310, № 1.
30. Horwitz E.P., Dietz M.L., Chiarizia R. The application of novel extraction chromatographic materials to the characterization of radioactive waste solutions // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Articles*. 1992. Vol. 161, № 2.
31. Horwitz E.P., McAlister D.R. The separation of beryllium from selected elements using the Dipex® extraction chromatographic resin // *Solvent Extraction and Ion Exchange*. 2005. Vol. 23, № 5.
32. Walsh K.A. *Beryllium Chemistry and Processing* // *Beryllium Chemistry and Processing*. 2020.
33. Brisson M.J. et al. Trace-level beryllium analysis in the laboratory and in the field: State of the art, challenges and opportunities // *Journal of Environmental Monitoring*. 2006. Vol. 8, № 6. P. 605–611.
34. Желтоножский В.А., Бондарьков М.Д. Радиохимия и спектроскопия радиостронция // *Проблеми Чорнобильської зони відчуження*. 2019. № 20. P. 53–81.
35. Bondarkov M.D. et al. Vertical migration of radionuclides in the vicinity of the Chernobyl Confinement Shelter // *Health Phys*. 2011. Vol. 101, № 4. P. 362–367.
36. Zheltonozhska M.V., ... Myznikov D.E. et al. Study of the Chernobyl fallout in 30-km zone after construction of the Confinement // *Nuclear Physics and Atomic Energy*. 2019. Vol. 20, № 3. P. 258–264.
37. *Table of Isotopes*. The 8th edition / ed. Firestone R.B. et al. Hungary: Springer, 1997.

38. Zheltonozhsky V.A. et al. Spectroscopy of Radiostrontium in Fuel Materials Retrieved from the Chernobyl Nuclear Power Plant // Health Phys. 2021. Vol. 120, № 4. P. 378–386.
39. HASL-300. The procedures manual of the environmental measurements laboratory. 28th ed. / ed. Chieco Nancy A. U.S. Department of Energy, 1997. Vol. 1. 769 p.
40. ASTM C1342-96. Standard Practice for Flux Fusion Sample Distribution : pat. ASTM C1342-96 USA. USA, 1996.
41. ASTM D5811-08. Standard Test Method for Strontium-90 in Water : pat. ASTM D5811-08 USA. USA., 2008.
42. ASTM C1507-20. Standard Test Method for Radiochemical Determination of Strontium-90 in Soil: pat. ASTM C1507-20 USA. USA., 2020.
43. ASTM D4309-96. Standard Practice for Sample Digestion Using Closed Vessel Microwave Heating Technique for the Determination of Total Metals in Water : pat. ASTM D4309-96 USA. USA., 2002.
44. ASTM D1971-95. Standard Practices for Digestion of Water Samples for Determination of Metals by Flame Atomic Absorption, Graphite Furnace Atomic Absorption, Plasma Emission Spectroscopy, or Plasma Mass Spectrometry : pat. ASTM D1971-95 USA. USA., 2002.
45. EPA SW-846. Method 3052: Microwave Assisted Acid Digestion of Siliceous and Organically Based Matrices. Revision 3. Washington, 2004.
46. US EPA D.D.N.F.U.D.N. Multi-Agency Radiological Laboratory Analytical Protocols Manual (MARLAP). Washington, DC, 2004. Vol. 1–3. 57 p.
47. ISO. Measurement of radioactivity in the environment. Soil. Part 5: Measurement of strontium 90: ISO 18589-4:2009(E) // International Standartisation Organisation. Geneve, 2009.

48. Zheltonozhsky V.O., ... Myznikov D.E. et al. Determination of the long-lived  $^{10}\text{Be}$  in construction materials of nuclear power plants using photoactivation method // *J Environ Radioact.* 2021. Vol. 227. P. 106509.
49. Ahsan M.H., Siddiqui S.A., Thies H.H. The photoneutron cross section of  $^{10}\text{B}$  // *Nucl Phys A.* 1987. Vol. 469, № 3. P. 381–392.
50. IAEA. EXFOR Formats Description for Users (EXFOR Basics). Documentation Series of the IAEA Nuclear Data Section. IAEA-NDS-206. Vienna, 2008. 92 p.
51. Zheltonozhsky V.O., ... Myznikov D.E. et al. Investigation of  $^7\text{Be}$  population in reactions on nuclei of beryllium and boron with bremsstrahlung gamma-rays in wide energy range // *Nuclear Physics and Atomic Energy.* 2020. Vol. 21, № 4. P. 302–307.
52. Deiev O.S. et al. Cross sections of photoneutron reactions on Ta-181 at  $E_{\gamma\text{max}}$  up to 95 MeV // *Phys Rev C.* 2022. Vol. 106, № 2. P. 024617.
53. Zheltonozhsky V.A., Savrasov A.M. Excitation of  $^{179}\text{Hf}m_2$  with  $(\gamma, n)$ -reaction // *Nucl Instrum Methods Phys Res B.* 2019. Vol. 456. P. 116–119.
54. Briesmeister J.F. MCNP-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code. Report LA-12625-M. Los Alamos, 1993.
55. Koning A.J., Rochman D. Modern Nuclear Data Evaluation with the TALYS Code System // *Nuclear Data Sheets.* 2012. Vol. 113, № 12. P. 2841–2934.
56. Herman M. et al. EMPIRE: Nuclear Reaction Model Code System for Data Evaluation // *Nuclear Data Sheets.* 2007. Vol. 108, № 12. P. 2655–2715.
57. Wilkinson D.H. Nuclear photodisintegration // *Physica.* 1956. Vol. 22, № 6–12. P. 1039–1061.
58. Weinstock E. V., Halpern J. Systematics of Photoproton Reactions // *Physical Review.* 1954. Vol. 94, № 6. P. 1651–1654.

59. Желтоножский В.О., ... Мизніков Д.Є. et al. Визначення вмісту  $^{59}\text{Ni}$  та  $^{55}\text{Fe}$  в конструкційних елементах АЕС // Ukrainian Journal of Physics. 2023. Vol. 67, № 10. P. 707.
60. Zhyrbenko E.A., Bulkin B.K. The main approaches to determining the activity of the structures of reactor units with VVER during their decommissioning // 6th International Scientific and and Technical Conf. “Safety assurance of NPP with VVER”, Podolsk, May 26-29, 2009. Podolsk: Gidropress, 2009. P. 1–6.
61. Aizatskyi M.I. et al. State and prospects of the linac of nuclear-physics complex with energy of electrons up to 100 MeV // Problems of atomic science and technology. 2014. Vol. 3, № 91. P. 60–64.
62. Slimak A., Necas V. Decontamination of contaminated scrap metal by melting arisen from the decommissioning of nuclear power plant shut down after an accident // Informatics, Control, Measurement in Economy and Environment Protection. 2014. Vol. 4, № 4. P. 16–20.
63. Hrncir T. et al. The impact of radioactive steel recycling on the public and professionals // J Hazard Mater. 2013. Vol. 254–255, № 1. P. 98–106.
64. Agostinelli S. et al. Geant4—a simulation toolkit // Nucl Instrum Methods Phys Res A. 2003. Vol. 506, № 3. P. 250–303.
65. Zheltonozhsky V.O., Myznikov D.E., Savrasov A.M., Slisenko V.I. Determination of  $^{63}\text{Ni}$  activity in NPP construction materials // Nuclear Physics and Atomic Energy, 23, pp. 207-211.
66. Alvarez R.A. et al. Photoneutron cross sections for  $^{55}\text{Mn}$  and  $^{59}\text{Co}$  // Phys Rev C. 1979. Vol. 20, № 1. P. 128–138.
67. Fultz S.C. et al. Photoneutron cross sections of  $^{58}\text{Ni}$  and  $^{60}\text{Ni}$  // Phys Rev C. 1974. Vol. 10, № 2. P. 608–619.
68. Fultz S.C. et al. Photoneutron Cross Sections for  $^{51}\text{V}$  and  $^{59}\text{Co}$  // Physical Review. 1962. Vol. 128, № 5. P. 2345–2351.



69. Kopecky J. Atlas of Neutron Capture Cross Sections. Vienna: IAEA, 1997. 340 p.
70. Bondarkov D.M., ... Myznikov D.E. et al. Non-destructive methods of <sup>90</sup>Sr measurement // RAD Association Journal. 2018. Vol. 3, № 1.
71. Bondarkov M.D., Maximenko A.M., Zheltonozhsky V.A. Non radiochemical technique for <sup>90</sup>Sr measurement // The Radioecology-Ecotoxicology of Continental and Estuarine Environments, ECORAD 2001 : intern. cong., 3–7 sept. 2001. Aix-en-Provence, France, 2002. P. 927–931.
72. Зигбан К. Альфа-, бета- и гамма-спектрометрия. Выпуск 1. Москва: Атомиздат, 1968. Vol. В 4-х томах.
73. Бондарьков Д.М., ... Мизніков Д.Є. et al. Методи корекції бета-спектроскопічних досліджень в польових умовах // Проблеми Чорнобильської зони відчуження. 2019. № 20. P. 82–87.
74. Storm L., Israel H.I. Photon cross sections from 1 keV to 100 MeV for elements Z=1 to Z=100 // At Data Nucl Data Tables. 1970. Vol. 7, № 6. P. 565–681.
75. Абагян А. А., Асмолов В. Г., Гуськова А. К. Информация об аварии на Чернобыльской АЭС и ее последствиях, подготовленная для МАГАТЭ // Атомная энергия. 1986. Vol. 61, № 5. P. 301–320.
76. IAEA. Summary report on the post-accident review meeting on the Chernobyl Accident, safety series, No 75-INSAG-1. Vienna, 1986. 148 p.
77. Zheltonozhskaya M.V. et al. Research of vertical migration of radionuclides in the soil at testing red forest area // Nuclear Physics and Atomic Energy. 2011. Vol. 12, № 4. P. 394–399.
78. Zheltonozhskaya M.V. et al. The plutonium isotopes and strontium-90 determination in hot particles by characteristic X-rays // J Environ Radioact. 2020. Vol. 225. P. 106448.

79. Єгоров В.В. et al. Зміна радіаційних умов на об'єкті "Укриття" після встановлення арочної конструкції у проектне положення // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. 2017. Vol. 28. P. 75–81.
80. Zheltonozhskiy V.A., ... Myznikov D.E. et al. Investigation of Radionuclide Migration at Sites Adjacent to the 30-km Exclusion Zone of the Chernobyl Nuclear Power Plant // Health Phys. 2022. Vol. 122, № 4. P. 502–507.
81. Bondarkov M. et al. Half-lives of self-purification for various isotopes in soils of the Chernobyl Exclusion Zone // Radioprotection. 2009. Vol. 44, № 5. P. 909–911.
82. Bondarkov D.M. et al. Studies of radionuclides behavior on heavily contaminated 5-km zone of ChNPP // Nuclear Physics and Atomic Energy. 2016. Vol. 17, № 4. P. 381–387.
83. Бондарьков М.Д. et al. Вертикальная миграция радионуклидов на исследовательских полигонах Чернобыльской зоны // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. 2006. Vol. 6. P. 155–168.
84. Бондарьков М.Д. et al. Сравнительный анализ параметров миграции радиоактивных изотопов в почвах «Рыжего леса» // Proceedings from the 6th Annual Conference of International Chernobyl Center, 9-12 September, 2003, Slavutich, Ukrain. Slavutich, 2003. P. 236–237.
85. Иванов Ю.А. Радиоэкологическое обоснование долгосрочного прогнозирования радиационной обстановки на сельскохозяйственных угодьях в случае крупных ядерных аварий (на примере аварии на Чернобыльской АЭС). Автореф. дисс. доктора биол. наук. . Обнинск, 1997. 50 р.
86. Бакунов Н.А. От глобального  $^{90}\text{Sr}$  почвы к радиологическим оценкам его поведения и переноса // Агрехимия. 1988. № 1. P. 85–88.

## Список публікацій здобувача

### Праці, в яких опубліковані основні наукові результати дисертації

1. Zheltonozhsky V.O., **Myznikov D.E.**, Savrasov A.M., Slisenko V.I. Determination of  $^{59}\text{Ni}$  and  $^{55}\text{Fe}$  contents in NPP structural elements **Q3** (2023) Ukrainian Journal of Physics. 67(10). pp. 707-714. DOI: 10.15407/ujpe67.10.707 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

2. Zheltonozhsky V.O., **Myznikov D.E.**, Savrasov A.M., Slisenko V.I. Determination of  $^{63}\text{Ni}$  activity in NPP construction materials **Q4** (2022) Nuclear Physics and Atomic Energy, 23, pp. 207-211. DOI: 10.15407/jnpae2022.02.207 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

3. Zheltonozhskiy V.A., Zheltonozhskaya M.V., **Myznikov D.E.**, Bondarkov M.D., Farfán E.B. Investigation of radionuclide migration at sites adjacent to the 30-km exclusion zone of the chernobyl nuclear power plant **Q2** (2022) Health Physics, 122(4), pp. 502–507. DOI: 10.1097/hp.0000000000001529 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

4. Zheltonozhsky V.A., **Myznikov D.E.**, Slisenko V.I., et al. Determination of the long-lived  $^{10}\text{Be}$  in construction materials of nuclear power plants using photoactivation method **Q2** (2021) Journal of Environmental Radioactivity, 227, 106509. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2020.106509. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

5. Zheltonozhsky V.O., **Myznikov D.E.**, Savrasov A.M., Slisenko V.I. Investigation of  $^7\text{Be}$  population in reactions on nuclei of beryllium and boron with bremsstrahlung  $\gamma$ -rays in wide energy range **Q3** (2020) Nuclear Physics and Atomic

Energy, 21 (4), pp. 302-307. DOI: 10.15407/jnpae2020.04.302 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

6. Zheltonozhska M.V., Kulich N.V., **Myznikov D.E.**, Slisenko V.I. Study of the Chernobyl fallout in 30-km zone after construction of the confinement **Q3** (2019) Nuclear Physics and Atomic Energy, 20 (3), pp. 258-264. DOI: 10.15407/jnpae2019.03.258 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

7. Bondarkov D.M., Kulich N.V., **Myznikov D.E.** et al. Non-destructive methods of Sr-90 measurement (2018) Radiation and Applications. Vol. 3, no. 1. P. 41–46. DOI: 10.21175/RadJ.2018.01.008 (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

8. Бондарьков Д.М., Бондарьков М.Д., Желтоножська М.В., Желтоножський В.А., **Мизніков Д.Є.** Методи корекції бета-спектроскопічних досліджень у польових умовах (2019) Проблеми Чорнобильської зони відчуження. № 20. P. 82–87. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка статті до друку)

9. Куліч Н.В., Желтоножська М.В., **Мизніков Д.Є.** Спосіб розрахунку активності  $^{241}\text{Am}$  в об'ємних слабоактивних пробах ґрунту. Патент на корисну модель №133830. Заявка U201811024 від 08.11.2018. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка заявки на отримання патенту)

### **Опубліковані праці апробаційного характеру:**

1. **Myznikov D.E.**, Zheltonozhsky V.A., Slisenko V.I. New non-destructive method of the beryllium-10 determination in constructional materials of nuclear power plants. Book of Abstracts of VII Terrestrial Radioisotopes in Environment

International Conference on Environmental Protection. 10-13 August 2020. Veszprém, Hungary. P. 62. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка тез до друку)

2. **Мизніков Д.Є.,** Желтоножський В.О., Саврасов А.М., Сліченко В.І. Визначення вмісту  $^{59,63}\text{Ni}$  та  $^{55}\text{Fe}$  в конструкційних елементах АЕС. Збірник тез щорічної конференції Інституту ядерних досліджень НАН України 28 вересня 2022 р. Київ. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка тез до друку)

3. **Мизніков Д.Є.,** Бондарьков Д.М., Желтоножський В.О., Саврасов А.М., Садовніков Л.В. Методи реєстрації радіонуклідів в радіоактивних матеріалах АЕС. Збірник тез щорічної конференції Інституту ядерних досліджень НАН України 28 вересня 2022 р. Київ. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка тез до друку)

#### **Праці, які додатково відображають наукові результати дисертації**

1. Желтоножський В.О., Желтоножська М.В., Куліч Н.В., **Мизніков Д.Є.,** Сліченко В.І. Фотоактиваційний спосіб визначення активності  $^{10}\text{Be}$ . Патент на корисну модель №142159. Заявка U201907143 від 27.06.2019. (особистий внесок здобувача - проведення досліджень, аналіз отриманих результатів, підготовка заявки на отримання патенту)

# Додаток 1



(11) 142159

(19) UA

(51) МПК (2020.01)  
G01T 1/00

(21) Номер заявки:	u 2019 07143	(72) Винахідники: Желтоножській Віктор Олександрович, UA, Желтоножська Марина Вікторівна, UA, Куліч Надія Владиславівна, UA, Мизніков Дмитро Євгенович, UA, Слісенко Василь Іванович, UA
(22) Дата подання заявки:	27.06.2019	
(24) Дата, з якої є чинними права на корисну модель:	25.05.2020	
(46) Дата публікації відомостей про видачу патенту та номер бюлетеня:	25.05.2020, Бюл. № 10	(73) Власник: ІНСТИТУТ ЯДЕРНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ НАЦІОНАЛЬНОЇ АКАДЕМІЇ НАУК УКРАЇНИ, просп. Науки, 47, м. Київ, 03580, UA

(54) Назва корисної моделі:

ФОТОАКТИВАЦІЙНИЙ СПОСІБ ВИЗНАЧЕННЯ АКТИВНОСТІ  $^{10}\text{Be}$

(57) Формула корисної моделі:

Спосіб розрахунку активності  $^{10}\text{Be}$  в конструкційних матеріалах, який відрізняється тим, що для його визначення вимірюється число атомів  $^{54}\text{Mn}$  і  $^{55}\text{Fe}$  через вимір інтенсивності  $N_1$  ( $^{54}\text{Mn}$ ) лінії 834, інтенсивності  $N_2$  ( $^{55}\text{Fe}$ ) лінії 477, при опроміненні гамма-квантами з граничною енергією 36 MeV за формулою:

$$m(^{10}\text{Be}, ^{10}\text{B}) = 1.7 \frac{N_1(477) \cdot e^{-\lambda_1 t} \cdot \sigma(^{54}\text{Mn})}{N_2(834) \cdot e^{-\lambda_2 t} \cdot \sigma(^{55}\text{Fe})} \times m(\text{Fe}), \quad (1)$$

де  $N_1$  ( $^{54}\text{Mn}$ ) лінії 834 - число відліків в піку з енергією 834 кеВ,  $N_2$  ( $^{55}\text{Fe}$ ) лінії 477 - число відліків в піку з енергією 477 кеВ з урахуванням ефективності реєстрації  $\gamma$ -квантів,  $m(\text{Fe})$  - маса зразка,  $t$  - час витримки опроміненої мішені до початку вимірювань,  $\lambda$  - константа радіоактивного розпаду:  $\lambda_1 - \lambda^{54}\text{Mn}$ ,  $\lambda_2 - \lambda^{55}\text{Fe}$ ,  $\sigma(^{54}\text{Mn})$ ,  $\sigma(^{55}\text{Fe})$  - перетин утворення  $^{54}\text{Mn}$  і  $^{55}\text{Fe}$  відповідно, а активність ізотопу  $^{10}\text{Be}$  в конструкційних матеріалах розраховується за формулою:

$$A(^{10}\text{Be}) = 10^{-40} \times m(^{9}\text{Be}, ^{10}\text{B}) \times \Phi, \quad (2)$$

де  $\Phi$  - флюенс нейтронів на АЕС, а  $m(^{9}\text{Be}, ^{10}\text{B})$  визначається за формулою (1).

УКРАЇНА



# ПАТЕНТ

НА КОРИСНУ МОДЕЛЬ

№ 133830

СПОСІБ РОЗРАХУНКУ АКТИВНОСТІ <sup>241</sup> Ам В ОБ'ЄМНИХ  
СЛАБООКТИВНИХ ПРОБАХ ҐРУНТУ

Видано відповідно до Закону України "Про охорону прав на винаходи  
і корисні моделі".

Зареєстровано в Державному реєстрі патентів України на корисні  
моделі 25.04.2019.

Заступник Міністра економічного  
розвитку і торгівлі України

Ю.П. Бровченко





(11) 133830

(19) UA

(51) МПК

G01T 1/167 (2006.01)

G01N 33/24 (2006.01)

(21) Номер заявки: **u 2018 11024**  
(22) Дата подання заявки: **08.11.2018**  
(24) Дата, з якої є чинними права на корисну модель: **25.04.2019**  
(46) Дата публікації відомостей про видачу патенту та номер бюлетеня: **25.04.2019, Бюл. № 8**

(72) Винахідник:  
Куліч Надія Владиславівна,  
UA,  
Желтоножська Марина  
Вікторівна, UA,  
Мизьніков Дмитро  
Євгенович, UA

(73) Власник:  
ІНСТИТУТ ЯДЕРНИХ  
ДОСЛІДЖЕНЬ  
НАЦІОНАЛЬНОЇ АКАДЕМІЇ  
НАУК УКРАЇНИ,  
просп. Науки, 47, м. Київ,  
03680, UA

(54) Назва корисної моделі:

**СПОСІБ РОЗРАХУНКУ АКТИВНОСТІ  $^{241}\text{Am}$  В ОБ'ЄМНИХ СЛАБОАКТИВНИХ ПРОБАХ ҐРУНТУ**

(57) Формула корисної моделі:

Спосіб визначення активності  $^{241}\text{Am}$  в об'ємних слабоактивних пробах ґрунту, який відрізняється тим, що для його визначення вимірюють інтенсивність  $K_{\gamma}$  (Ba) випромінювання  $\gamma$  661 кеВ  $^{137}\text{Cs}$  та активність  $^{241}\text{Am}$  вимірюють через випромінювання  $\gamma$  59 кеВ, активність ізотопу  $^{241}\text{Am}$  в об'ємних слабоактивних пробах розраховують за формулою:

$A_{\text{Am}}^{241} = A_{\text{Cs}}^{137} \cdot A_{\text{Am}}^{241} / (1,6 - 0,6 \cdot A_{\text{Cs}}^{137} / A_{\text{Ba}}^{59})$

де  $A_{\text{Am}}^{241}$  - активність  $^{241}\text{Am}$ , вимірюють в стандартних умовах,  $A_{\text{Cs}}^{137}$  - активність  $^{137}\text{Cs}$ , вимірюють по виходу  $K_{\gamma}$ -випромінювання Ba (36 кеВ),  $A_{\text{Ba}}^{59}$  - активність  $^{59}\text{Ba}$ , вимірюють по випромінюванню  $\gamma$  661 кеВ.