

В. О. Желтоножський, Д. Є. Мизніков, Н. В. Куліч,
А. М. Саврасов*, В. І. Слісенко, Д. П. Стратілат

Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ, Україна

*Відповідальний автор: asavrasov@kinr.kiev.ua

ДОСЛІДЖЕННЯ АКТИВАЦІЇ КОНСТРУКЦІЙНИХ МАТЕРІАЛІВ ТА БІОЛОГІЧНОГО ЗАХИСТУ РЕАКТОРА ТИПУ ВВР-М

За допомогою фотоактиваційної методики вперше для реактора типу ВВР-М розраховано активності довгоживучих радіонуклідів, що утворилися в конструкційних матеріалах та бетонному захисті, розпад яких не супроводжується випромінюванням гамма-квантів. Показано, що активності даних радіонуклідів є значно нижчими рівнів звільнення від регулюючого контролю. Також розраховано активності гамма-випромінювачів і показано, що активність ^{60}Co для окремих конструкційних матеріалів значно перевищує гранично допустиму концентрацію.

Ключові слова: ВВР-М, фотоактиваційний метод, конструкційні матеріали, активність, кобальт.

1. Вступ

Великою проблемою радіаційного моніторингу в галузі ядерної енергетики є характеристика радіоактивних відходів (РАВ). Число ядерних реакторів у всьому світі, які виводяться з експлуатації збільшується у зв'язку з тим, що перші покоління реакторів досягли закінчення свого розрахункового терміну експлуатації. За даними МАГАТЕ [1], середній термін експлуатації енергетичного ядерного реактора становить 27 років, у той же час багато з них мають подовжені ліцензії, оскільки їхній початковий проектний термін роботи вже перевищений.

Станом на сьогодні з експлуатації виведено 197 енергетичних реакторів: 12 – через пошкодження внаслідок аварій або серйозних інцидентів, 46 – достроково з політичних міркувань, а 139 – у зв'язку з економічною нерентабельністю або завершенням проектного терміну експлуатації. Поряд з цим було виведено з експлуатації близько 500 дослідницьких реакторів та декілька паливних збірок.

Крім того, атомні електростанції є одним з основних джерел радіоактивного металобрухту та головним споживачем радіоактивно забруднених матеріалів, призначених для повторного використання [2]. Величезна кількість доступного металу та його, переважно, низький рівень радіоактивності передбачають можливість його застосування в майбутніх енергоблоках. Із врахуванням усіх типів ядерних установок, які будуть виведені з експлуатації, кількість металобрухту, отриманого в результаті виведення з експлуатації в найближче десятиліття оцінюється в ~ 30 млн т.

Виведення з експлуатації ядерних установок вимагає оцінки радіоактивного складу опромієних матеріалів, які потім класифікуються відповідно до правил, установлених для захоронення ядерних відходів. У процесі роботи реакторів значна кількість радіоактивних матеріалів утворюється в результаті активації конструкційних матеріалів та технологічного обладнання, при цьому утворюються в тому числі і довгоживучі радіонукліди, які розпадаються без випромінювання гамма-квантів. Виміряні рівні активностей різних радіонуклідів слід порівнювати з рівнями звільнення від регулюючого контролю для того, щоб робити висновки щодо їхнього подальшого використання.

Одним з найбільш поширених легуючих компонентів металічних конструкцій реакторів є нікель. Його вміст у жаростійких нержавіючих сталях становить у середньому ~ 8 - 10 % від загальної маси, але може досягати й 50 - 75 %. Загальна маса нікелю в матеріалах реактора та технологічного обладнання може досягати декількох тонн. При цьому за час експлуатації реактора з природного нікелю утворюються його довгоживучі радіоактивні ізотопи, а саме ^{59}Ni ($T_{1/2} = 7,6 \cdot 10^4$ років) та ^{63}Ni ($T_{1/2} = 100$ років). Нуклід ^{59}Ni розпадається за допомогою електронного захоплення, що супроводжується випусканням характеристичного рентгенівського випромінювання з енергією 6,9 кеВ. У той же час ^{63}Ni є чистим бета-випромінювачем з граничною енергією електронів 67 кеВ.

Цирконій також широко використовується в атомній енергетиці завдяки своїм властивостям –

© Автор(и), 2025

Стаття опублікована ІЯД НАН України за умовами відкритого доступу за ліцензією CC BY-NC 4.0

високій температурі плавлення, малому перерізу захоплення теплових нейтронів, хімічній інертності та високій корозійній стійкості до води та пари. Найбільшу радіологічну небезпеку при активації сплавів цирконію має ^{93}Zr ($T_{1/2} = 1,6 \cdot 10^6$ років), що розпадається з випромінюванням електронів з граничною енергією 60 кеВ та K_{α} -випромінюванням Nb.

Важливим елементом конструкційних матеріалів є також молібден. При цьому в результаті активації нейтронами стабільного ^{92}Mo утворюється ^{93}Mo ($T_{1/2} = 4 \cdot 10^3$ років) у металічних конструкційних матеріалах ядерних реакторів. ^{93}Mo розпадається внаслідок електронного захоплення і не випромінює гамма-квантів. У (n, γ) -реакції на стабільному ^{98}Mo утворюється також ^{99}Tc з $T_{1/2} = 2 \cdot 10^5$ років, як результат розпаду ^{99}Mo , що є чистим бета-випромінювачем з граничною енергією електронів 294 кеВ.

Одним з основних джерел РАВ при демонтажі реакторної установки є радіаційно-тепловий (біологічний) захист, зроблений із жаростійких бетонів. Об'єм активованих бетонів може досягати десятків тисяч кубічних метрів і становити близько 60 % загальної кількості РАВ. У процесі експлуатації реактора в цих бетонах утворюється радіоізоотоп ^{41}Ca ($T_{1/2} = 9,9 \cdot 10^4$ років) у результаті (n, γ) -реакції на ^{40}Ca . Згодом він розпадається на ^{41}K внаслідок електронного захоплення, що супроводжується випромінюванням характеристичних рентгенівських гамма-квантів з енергією $\sim 3,3$ кеВ. Враховуючи високу екологічну мобільність та біодоступність кальцію, саме ^{41}Ca приділяється особлива увага при роботі з низько- та середньоактивними РАВ, що утворюються при виведенні реакторів з експлуатації [3].

Виходячи з вищевикладеного, метою даної роботи є як вимірювання активностей вищезгаданих радіонуклідів, так і довгоживучих радіонуклідів, розпад яких супроводжується випромінюванням гамма-квантів за допомогою фотоактиваційної методики на зразках, відібраних з реактора типу ВВР-М Інституту ядерних досліджень НАН України. Цей реактор знаходиться в експлуатації 65 років та певною мірою може використовуватися для моделювання активностей при виведенні з експлуатації дослідницьких реакторів.

2. Методика вимірювань і результати

Для розрахунку активностей (A) в конструкційних матеріалах АЕС, переважно, використовується така формула, Бк:

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

де N_A – число відповідних атомів у конструкційних матеріалах АЕС, моль $^{-1}$; σ – переріз актива-

ції тепловими нейтронами, см 2 ; ϕ – усереднена густина потоку теплових нейтронів, що опромінює конструкційні матеріали, (н·моль)/(с·см 2); $t_{\text{опр}}$ – інтегральна тривалість опромінення, с; $t_{\text{охол}}$ – тривалість витримки в перервах між опроміненням та вимірюванням, с; λ – стала радіоактивного розпаду ядра, активованого внаслідок (n, γ) -реакції, с $^{-1}$.

В якості $t_{\text{опр}}$ використовуються величини тривалості роботи в ефективних добах, розраховані за відомим значенням енергогенерації E (МВт·доба). Реактор працював переважно на повній потужності з 1960 по 1972 рр. 30 % усього часу, з 1973 по 1993 рр. – 38 % усього часу, у 2002 - 2003 рр. близько 10 % усього часу і у 2004 - 2005 рр. – 17 % часу. В інші часові проміжки він або не працював взагалі, або працював лише декілька відсотків усього часу.

При розрахунку $t_{\text{охол}}$ усереднюються існуючі за рік величини сумарних простоїв реактора з даних про графіки навантажень блоків. Щільності потоків нейтронів в основних вузлах опромінення вимірюються, проте очевидно, що внаслідок перерозсіювання нейтронів можливі значні варіації величин потоків. Ще більше невизначеностей існує при розрахунку мас опромінених матеріалів. Так для кобальту, часто обмежуються тим, що його маса не повинна перевищувати 0,5 % загальної маси. Існують значні проблеми і при оцінці перерізів реакцій на теплових нейтронах. Дані обставини призводять до того, що розраховані за формулою (1) активності відрізняються від експериментальних значень на 1 – 2 порядки.

У конструкційних матеріалах основною гамма-активністю після зупинки реактора і протягом наступних 50 років є активність ^{60}Co . Вона легко вимірюється гамма-спектрометрами, зібраними на базі напівпровідникових детекторів, оскільки при розпаді ^{60}Co випромінюються гамма-кванти високої енергії (1173 та 1333 кеВ). Знаючи активність ^{60}Co та співвідношення досліджуваних матеріалів порівняно з домішками кобальту, можна розраховувати кількості радіоактивних нуклідів, які напручуються в (n, γ) -реакції. Для визначення співвідношення різних елементів у конструкційних матеріалах ми використовували фотоактиваційну методику [4].

Нами досліджувалися зразки бетону (далі зр. № 1) та конструкційних матеріалів (виготовлені зі сталі болт, кутник, гайка, шайба (далі зр. 2 - 5 відповідно)). На рис. 1 і 2 наведено фрагменти гамма-спектрів бетону та шайби після опромінення гальмівними гамма-квантами на мікротроні М-30 Інституту електронної фізики НАН України (м. Ужгород) [5, 6]. Інші зразки не опромінювалися.

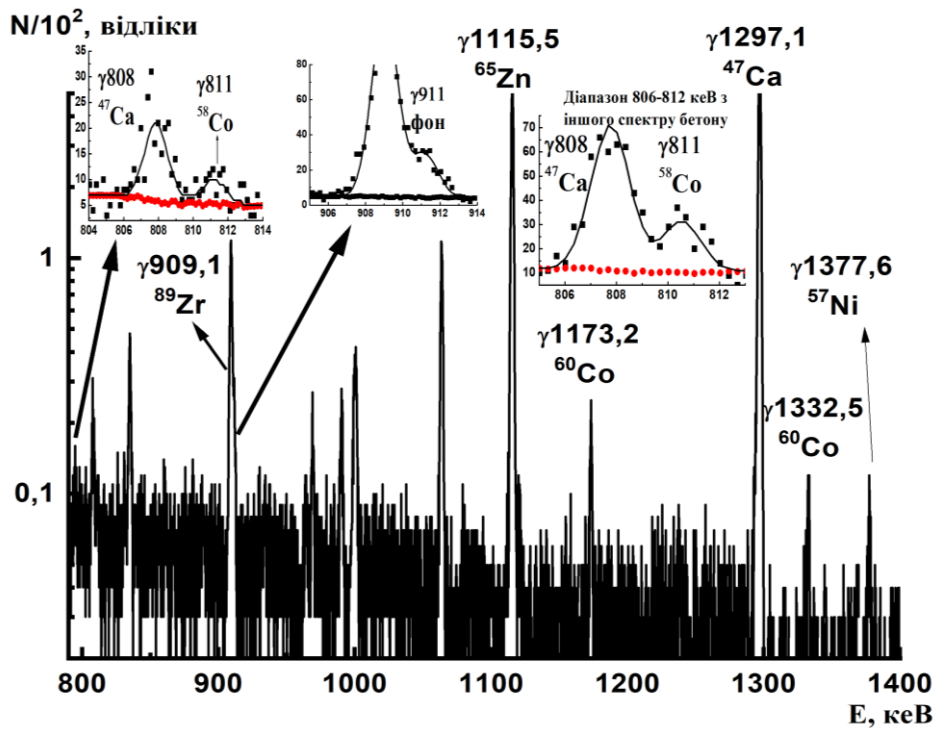


Рис. 1. Фрагменти гамма-спектра активованого зразка № 1 (бетон) при $E_{гр} = 19,5$ МеВ. Вставка крайня справа зверху відповідає опроміненню при $E_{гр} = 17,5$ МеВ. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

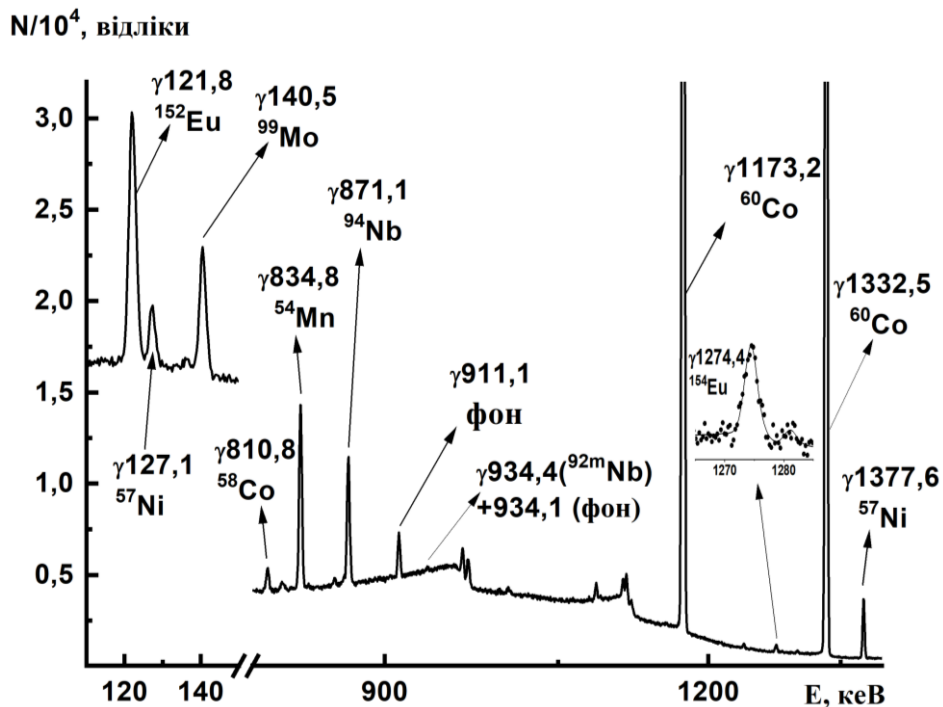


Рис. 2. Фрагмент гамма-спектра активованого зр. № 5 (шайба) при $E_{гр} = 17,5$ МеВ.

Було виконано дві серії опроміненнь та вимірювань при максимальній енергії електронів ($E_{гр}$) 19,5 та 17,5 МеВ. Середній струм електронів становив 1 мкА при $E_{гр} = 19,5$ МеВ та 2 мкА при $E_{гр} = 17,5$ МеВ. Розкид електронного пучка по енергії не перевищував 0,25 % і він повністю накривав гальмівну мішень, що складалася з танталової прямокутної пластини розмірами $5,2 \times 4,6$ см та товщиною 1,05 мм. За нею на від-

стані 8 - 20 см кріпилися досліджувані мішені. За рахунок вищого струму та оптимального розташування мішеней вдалося досягти кращої активації при $E_{гр} = 17,5$ МеВ.

У гамма-спектрах неопромінених зразків спостерігаються такі довгоживучі радіонукліди: ^{94}Nb ($T_{1/2} = 2 \cdot 10^4$ років), ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30$ років), ^{133}Ba ($T_{1/2} = 13$ років), ^{60}Co ($T_{1/2} = 5,27$ року), ^{152}Eu ($T_{1/2} = 13$ років) та ^{154}Eu ($T_{1/2} = 8,6$ року). В опро-

мінених зразках (див. рис. 1 і 2) спостерігаються активності ^{57}Ni ((γ , n)-реакція на ^{58}Ni), ^{89}Zr ((γ , n)-реакція на ^{90}Zr), ^{99}Mo ((γ , n)-реакція на ^{100}Mo). Також спостерігаються активності ^{47}Ca та ^{43}K , як наслідок реакцій $^{48}\text{Ca}(\gamma, n)^{47}\text{Ca}$ та $^{44}\text{Ca}(\gamma, p)^{43}\text{K}$ відповідно. З цих даних, викорис-

товуючи формули активаційного аналізу для даних нуклідів (див. формулу (4) з робіт [7 - 9]), було отримано співвідношення мас необхідних ізотопів нікелю, цирконію, молібдену та кальцію по відношенню до маси кобальту (табл. 1).

Таблиця 1. Співвідношення мас та довгоживучі бета-активності в зразках з дослідницького реактора

Радіонуклід		^{41}Ca (^{40}Ca)	^{59}Ni (^{59}Ni)	^{63}Ni (^{62}Ni)	^{93}Zr (^{92}Zr)	^{93}Mo (^{92}Mo)	^{99}Tc
Співвідношення мас материнського нукліда (в дужках) та ^{59}Co	Зр. № 1	42080(6300)	1,02(17)	0,054(9)	0,40(6)		
	Зр. № 5		5,2(6)	0,28(3)		0,076(11)	
Активність на 01.12.2024 р., мБк/г	Зр. № 1	52(9)	0,019(4)	1,6(3)	$1,7(6) \cdot 10^{-5}$		
	Зр. № 5		22,0(31)	1870(240)		0,025(4)	$3,9(6) \cdot 10^{-4}$
	Зр. № 2		0,33(5)	28,0(36)		$3,8(6) \cdot 10^{-4}$	$4,1(6) \cdot 10^{-4}$
	Зр. № 3		0,23(3)	20,0(26)		$2,6(4) \cdot 10^{-4}$	$1,6(2) \cdot 10^{-4}$
	Зр. № 4		28(4)	2360(300)		0,032(5)	$2,3(3) \cdot 10^{-4}$
Азв, мБк/г			10^5		10^4		10^3

Використовуючи отримані співвідношення та формулу (6) з робіт [7 - 9], було розраховано питомі активності, величини яких також наведено в табл. 1. В останньому рядку даної таблиці наведено рівні звільнення (Азв) від регулюючого контролю, взяті з [10]. Оскільки інші

металічні зразки, взяті для аналізу і які не опромінювалися гальмівними гамма-квантами були виготовлені з тієї ж самої сталі що й шайба, то для них брали співвідношення мас як для шайби. Розраховані активності також наведено в табл. 1.

Таблиця 2. Довгоживучі гамма-активності в зразках з дослідницького реактора

Радіонуклід		^{152}Eu	^{154}Eu	^{133}Ba	^{94}Nb	^{137}Cs	^{60}Co
Активність на 01.12.2024 р., мБк/г	Зр. № 1	4,0(4)	9,1(9)	4,1(9)			19,0(16)
	Зр. № 5	240(10)	44,0(22)	5,3(1,1)	190(8)	1470(66)	4430(200)
	Зр. № 2						67(3)
	Зр. № 3					8,4(4)	47(2)
	Зр. № 4	118(5)	20,2(15)	3,6(7)	52,0(23)	5900(250)	5580(240)
Азв, мБк/г		100		–	100		

Використовуючи стандартні формули активаційного аналізу, було розраховано також питомі активності довгоживучих радіонуклідів, розпад яких супроводжується випромінюванням гамма-квантів. Їхні активності разом з рівнями звільнення наведено в табл. 2.

3. Дискусія

Слід зазначити, що оцінювалася також активність радіонуклідів, розпад яких не супроводжується випромінюванням гамма-квантів у зразку бетону, взятому з теплової колони ВВР-М. Показано, що в ньому вміст цирконію приблизно у 30 разів вищий, ніж у бетоні, взятому поруч з активною зоною. Це збільшує активність цирконію в 3 – 4 рази, що незначно впливає на загальну активність бетонного захисту, величина якої

знаходиться значно нижче рівнів звільнення. Зразки шайба та гайка бралися з конструкційних матеріалів, які знаходилися поруч з «гарячими» камерами, в той час як болт та кутник були зняті з перил, розташованих навколо біологічного захисту. Останні мають нижчий рівень активності, оскільки були захищені усією масою біологічного захисту.

Вміст нікелю в досліджуваних конструкційних матеріалах становить 1 – 1,5 % по відношенню до загальної маси зразків. При цьому рівень активності ^{63}Ni досягає 1,9 Бк/г, що значно нижче рівня звільнення. Проте в сучасних конструкційних матеріалах вміст нікелю може досягати 50 – 75 %. Тому даний рівень активності може наближатися до рівня звільнення і, отже, необхідно контролювати вміст ^{63}Ni .

Слід звернути увагу на значну величину активності ^{94}Nb , що досягає 190 мБк/г. Це значення перевищує допустимі межі для безпечного використання таких конструкційних матеріалів. У принципі, ^{93}Nb входить до складу різних конструкційних матеріалів, тому не виключено, що присутність ^{94}Nb зумовлена саме цим. Тому нами була оцінена домішка ^{94}Nb у зразках № 4 та № 5. Для цього використовувалася реакція $^{93}\text{Nb}(\gamma, n)^{92\text{m}}\text{Nb}$. Використовуючи дані роботи [11], було отримано середньозважений вихід даної реакції. З цього виходу та з експериментальних гамма-спектрів (див. рис. 2.) було отримано верхню межу вмісту ^{93}Nb по відношенню до домішки кобальту, що не перевищує 0,2 %. З урахуванням перерізів (n, γ)-реакцій для теплових нейтронів на кобальті та ніобії встановлено, що величина активності ^{94}Nb не перевищує 2 мБк/г, що становить менше 1 % від загальної величини активності. Це вказує на те, що активність ^{94}Nb утворилася в процесі проведення наукових досліджень.

Активності ^{137}Cs та $^{152,154}\text{Eu}$ також зумовлені як аварійними ситуаціями в процесі експлуатації реактора, так і науковими дослідженнями, оскільки в конструкційних матеріалах у фото-

ядерних реакціях не ідентифіковані ізотопи Європію та цезію.

4. Висновки

Виміряно активності довгоживучих радіонуклідів, що утворилися в конструкційних матеріалах та бетонному захисті за допомогою зразків, відібраних у реакторі типу ВВР-М. Уперше для даного дослідницького реактора оцінено внесок довгоживучих радіонуклідів, розпад яких не супроводжується випромінюванням гамма-квантів. Показано, що активності даних радіонуклідів є значно нижчими рівнів звільнення, які можуть досягати десятків Бекерель на грам.

У цілому можна відзначити, що найбільшу небезпеку представляє ^{60}Co , активність якого для окремих зразків значно перевищує рівень звільнення, що становить 100 мБк/г. Слід також контролювати вміст ^{63}Ni , активність звільнення для якого становить 100 Бк/г.

Висловлюємо подяку персоналу мікротрона М-30 Інституту електронної фізики НАН України (м. Ужгород) за проведений фотоактиваційний експеримент.

Робота виконана за фінансової підтримки гранту МАГАТЕ № 28137.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ / REFERENCES

1. *Transition from Operation to Decommissioning of Nuclear Installations. Technical Reports Series No. 420* (Vienna, IAEA, 2004) 226 p.
2. R. Anigstein et al. Potential Recycling of Scrap Metal from Nuclear Facilities. Part I: Radiological Assessment of Exposed Individuals (Washington: S. Cohen & Associates, 2001) 686 p.
3. D. Hampe et al. Determination of ^{41}Ca with LSC and AMS: method development, modifications and applications. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 296(2) (2013) 617.
4. V.A. Zheltonozhsky et al. Determination of the long-lived ^{10}Be in construction materials of nuclear power plants using photoactivation method. *J. Environ. Radioact.* 227 (2021) 106509.
5. М.І. Романюк та ін. Методи формування та контролю полів опромінення мікротрона М-30. *Журнал фізичних досліджень* 26(1) (2022) 1201. / M.I. Romanyuk et al. Methods of formation and control of irradiation fields of the microtron M-30. *J. Phys. Stud.* 26(1) (2022) 1201. (Ukr)
6. M.I. Romanyuk et al. Microtron M-30 for radiation experiments: formation and control of irradiation fields. *Probl. At. Sci. Technol.* 3(139) (2022) 137.
7. В.О. Желтоножський та ін. Визначення активності ^{63}Ni в конструкційних матеріалах АЕС. *Ядерна фізика та енергетика* 23(3) (2022) 207. / V.O. Zheltonozhskiy et al. Determination of ^{63}Ni activity in NPP construction materials. *Nucl. Phys. At. Energy* 23(3) (2022) 207. (Ukr)
8. V.O. Zheltonozhsky et al. Determination of the ^{93}Zr and ^{93}Mo isotope contents in NPP-produced radioactive materials. *Ukr. J. Phys.* 69 (2024) 625.
9. В.О. Желтоножський та ін. Визначення вмісту ^{41}Ca в радіоактивних матеріалах АЕС. *Ядерна фізика та енергетика* 24(4) (2023) 293. / V.O. Zheltonozhskiy et al. Determination of ^{41}Ca content in NPP radioactive materials. *Nucl. Phys. At. Energy* 24(4) (2023) 293. (Ukr)
10. М.Д. Бондарьков та ін. Методика характеристики радіоактивних матеріалів ВП АЕС ДП «НАЕК Енергоатом», які підлягають звільненню від регулюючого контролю (2021) 139 с. / M.D. Bondarkov et al. Methodology for Characterization of Radioactive Materials from Nuclear Power Plants of the State Enterprise "NAEK Energoatom" Subject to Regulatory Clearance (2021) 139 p. (Ukr)
11. A.V. Varlamov et al. *Atlas of Giant Dipole Resonances. Parameters and Graphs of Photonuclear Reaction Cross Sections*. INDC(NDS)-394 (Vienna: IAEA, 1999) 328 p.

**V. O. Zheltonozhsky, D. E. Myznikov, N. V. Kulich,
A. M. Savrasov*, V. I. Slisenko, D. P. Stratilat**

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

*Corresponding author: asavrasov@kinr.kiev.ua

**RESEARCH OF THE ACTIVATION OF CONSTRUCTION MATERIALS
AND BIOLOGICAL PROTECTION OF THE WWR-M TYPE REACTOR**

For the first time at the WWR-M type reactor, the photoactivation method was employed to measure the activities of long-lived radionuclides generated in structural materials and concrete shielding, whose decay is not accompanied by gamma-ray emission. The results demonstrated that the activities of these radionuclides are well below the regulatory release limits. In addition, the activities of gamma-emitting radionuclides were evaluated, indicating that the activity of ^{60}Co in certain structural components significantly exceeds the maximum permissible concentration.

Keywords: WWR-M, photoactivation method, construction materials, activity, cobalt.

Надійшла / Received 05.05.2025