

Корисна модель належить до галузей радіоекології, радіаційної та ядерної фізики.

Аналогів до запропонованої корисної моделі не знайдено.

В основу корисної моделі поставлено задачу створення способу оперативного визначення активності ^{63}Ni з високою точністю, без використання радіохімії.

Поставлена задача вирішується тим, що фотоактиваційний спосіб визначення активності ізотопу ^{63}Ni в радіоактивних матеріалах, за яким згідно з корисною моделлю, для визначення активності ізотопу ^{63}Ni вимірюють активність ізотопу ^{60}Co та співвідношення між кількістю атомів ^{58}Ni та ^{59}Co , які визначають експериментально через вимірювання активностей ізотопів ^{57}Co та ^{58}Co фотоактиваційним аналізом:

$$A(^{63}\text{Ni}) = A(^{60}\text{Co}) \frac{\left(1 - e^{-\lambda(^{63}\text{Ni})t_{\text{опр}}}\right) e^{-\lambda(^{63}\text{Ni})t_{\text{охол}}}}{\left(1 - e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}}\right) e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}}} \frac{\sigma_{62\text{Ni}}^n N_{62\text{Ni}}}{\sigma_{59\text{Co}}^n N_{59\text{Co}}}, \quad (1)$$

де: $A(^{63}\text{Ni})$ та $A(^{60}\text{Co})$ - активності ^{63}Ni та ^{60}Co , відповідно, Бк;

Φ_n - потік нейтронів в реакторі, н/с;

$\sigma_{62\text{Ni}}^n = 14.5 \text{ б}$ та $\sigma_{59\text{Co}}^n = 37.18 \text{ б}$ - табличні значення перерізів реакцій $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ та $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$;

$\lambda(^{63}\text{Ni}) = 0.693/T_{1/2}(^{63}\text{Ni})$ та $\lambda(^{60}\text{Co}) = 0.693/T_{1/2}(^{60}\text{Co})$ - сталі радіоактивного розпаду ^{63}Ni та ^{60}Co , відповідно, с^{-1} ;

$T_{1/2}(^{63}\text{Ni})$ та $T_{1/2}(^{60}\text{Co})$ - періоди напіврозпаду ^{63}Ni та ^{60}Co ;

$N_{62\text{Ni}}/N_{59\text{Co}}$ - співвідношення між кількостями атомів ^{62}Ni та ^{59}Co , яке отримують для опроміненого зразка з фотоактиваційного аналізу із співвідношення між кількістю атомів ^{58}Ni та ^{59}Co після врахування вмісту ^{62}Ni в природній суміші;

$t_{\text{опр}}$, $t_{\text{охол}}$, $t_{\text{вим}}$ - тривалості опромінення, охолодження та вимірювання - рік.

$N_{62\text{Ni}}/N_{59\text{Co}}$ - співвідношення між кількостями атомів ^{62}Ni та ^{59}Co . Воно отримується для даного зразка з формули (4) для співвідношення між кількостями атомів ^{58}Ni та ^{59}Co після врахування вмісту ^{62}Ni в природній суміші, $t_{\text{опр}}$, $t_{\text{охол}}$, $t_{\text{вим}}$ - тривалості опромінення, охолодження та вимірювання.

Конструкційні матеріали АЕС, як правило, містять в великій кількості нікель (до 30 %). Як домішка до нікелю в цих матеріалах присутній також кобальт. Одним із важливих радіонуклідів, які утворюються в конструкційних матеріалах на ізотопах нікелю, є ^{63}Ni , який має період напіврозпаду $T_{1/2} = 100,1$ року. Він розпадається з випромінюванням лише електронів з граничною енергією 67 кеВ. Для їх вимірювання необхідно радіохімічними методами виділити ^{63}Ni та виміряти низькоенергетичні електрони. Це є доволі складним завданням, тому нами для розв'язання даної проблеми пропонується фотоактиваційний спосіб, який ґрунтується на визначенні концентрацій Ni та Co з наступним розрахунком активності ^{63}Ni , який утворюється в (n,γ) -реакції.

В 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 γ -кванти високої енергії (1173 та 1333 кеВ). Знаючи активність ^{60}Co та співвідношення досліджуваних матеріалів порівняно з домішками кобальту можна розрахувати кількості радіоактивних нуклідів, які напрацьовуються в (n,γ) -реакції.

За допомогою фотоактиваційного способу проведені вимірювання величини домішки кобальту порівняно з нікелем. В конструкційних матеріалах АЕС нікель завжди йде в парі з кобальтом, тому для усунення методичних похибок проводяться відносні вимірювання, порівнюючи вихід γ -ліній $^{57,58}\text{Co}$. Для цього опромінюються зразки конструкційних матеріалів. Для розрахунку активностей в конструкційних матеріалах АЕС, як правило, використовується наступна формула:

$$A = N_A \sigma \Phi (1 - \exp(-\lambda t_{\text{опр}})) \exp(-\lambda t_{\text{охол}}) \quad (2)$$

Тут N_A - число відповідних атомів в конструкційних матеріалах АЕС; σ - переріз активації тепловими нейтронами; Φ - усереднена густина потоку теплових нейтронів, який опромінює конструкційні матеріали; $t_{\text{опр}}$ - інтегральна тривалість опромінення; $t_{\text{охол}}$ - тривалість витримки в перервах між опроміненням.

Як $t_{\text{опр}}$ використовуються значення тривалості роботи в ефективних добах, визначене за відомими значеннями енергогенерації E (МВт $\times$ доб).

Як час $t_{\text{охол}}$ використовуються усереднені за рік значення сумарних простоїв реактора згідно з існуючими графіками навантажень блоків. Для визначення мас Ni та Co були відібрані зразки як в області підвищеного нейтронного фону (жалюзі), так і з корпусу реактора, які опромінюються пучком гальмівних γ -квантів з граничною енергією 37 МеВ.

Гамма-спектр опроміненого зразку приведений на фіг. 1. Для визначення співвідношення мас нікелю і кобальту вимірювалось співвідношення інтенсивностей γ -ліній з величинами енергії γ 136 кеВ -

^{57}Co ($T_{1/2}=272$ дні), $\gamma 811$ кеВ - ^{58}Co ($T_{1/2}=71$ день) [1]. ^{57}Co напрацьовується в реакціях (γ, n) та (γ, p) на ізотопі ^{58}Ni , а ^{58}Co в (γ, n) - реакції на моноізотопі ^{59}Co .

При опроміненні використовувались зразки вагою 50 мг.

З відомих формул активаційного аналізу відношення числа атомів ^{58}Ni та ^{59}Co буде рівне:

$$\frac{m(\text{Ni})}{m(\text{Co})} = \frac{N(\text{Ni}) \left(1 - e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{опр}}}\right) \left(1 - e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{вим}}}\right) e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}Y(\text{Co})\lambda(\text{Ni})}}{N(\text{Co}) \left(1 - e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{опр}}}\right) \left(1 - e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{вим}}}\right) e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{охол}}Y(\text{Ni})\lambda(\text{Co})}}, \quad (3)$$

де $m(\text{Ni})$, $m(\text{Co})$ - числа атомів ^{58}Ni та ^{59}Co , відповідно. $\lambda(\text{Co})$, $\lambda(\text{Ni})$ - сталі радіоактивного розпаду ^{58}Co та ^{57}Co , відповідно, с^{-1} . $Y(\text{Ni})$, $Y(\text{Co})$ - середньозважені виходи напрацювання ^{57}Co та ^{58}Co , відповідно. $N(\text{Ni})$, $N(\text{Co})$ - числа радіоактивних ядер ^{57}Co та ^{58}Co , 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}Ni , які утворилися в (γ, n) - реакції розпалися внаслідок електронного захвату на ядра ^{57}Co .

Періоди напіврозпаду ^{57}Co та ^{58}Co рівні 271.8 та 70.8 дня, відповідно [1]. 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 $1 - e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{опр}}} \approx \lambda(\text{Co}) t_{\text{опр}}$ та $1 - e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{опр}}} \approx \lambda(\text{Ni})t_{\text{опр}}$. Аналогічні вирази мають місце і для $t_{\text{вим}}$: $1 - e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{вим}}} \approx \lambda(\text{Co}) t_{\text{вим}}$ та $1 - e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{вим}}} \approx \lambda(\text{Ni})t_{\text{вим}}$. Підставивши це у вираз (3) отримаємо:

$$\frac{m(\text{Ni})}{m(\text{Co})} = \frac{N(\text{Ni})\lambda(\text{Co})e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}Y(\text{Co})}}{N(\text{Co})\lambda(\text{Ni})e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{охол}}Y(\text{Ni})}}, \quad (4)$$

Таким чином для граничної енергії гальмівних γ -квантів 37 МеВ, з урахуванням квантових виходів для гамма-лінії 136 кеВ (^{57}Co) - 10.68 % і для гамма-лінії 811 кеВ (^{58}Co) - 99.45 %:

$$\frac{m(\text{Ni})}{m(\text{Co})} = 9.3 \frac{N_{\gamma}(136\text{кеВ})\lambda(\text{Co})e^{-\lambda(\text{Co})t_{\text{охол}}Y(\text{Co})}}{N_{\gamma}(811\text{кеВ})\lambda(\text{Ni})e^{-\lambda(\text{Ni})t_{\text{охол}}Y(\text{Ni})}}, \quad (5)$$

де 9.3 - відношення квантових виходів гамма-ліній 811 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 %); $N_{\gamma}(811\text{ кеВ})$ - число відліків в піку з енергією 811 кеВ з урахуванням ефективності реєстрації спектрометра (в даному випадку - 5.2 %).

Оскільки мішень тонка, то самопоглинанням даних γ -квантів можна знехтувати.

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

$$Y = \frac{\sum_{i=1}^N \sigma_i \Phi_i}{\sum_{i=1}^N \Phi_i}, \quad (6)$$

де σ_i - табличні значення перерізів реакції $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$ для монохроматичних γ -квантів; Φ_i - відносні величини потоку, модельованого в Geant4 спектра гальмівних γ -квантів приведені до порогової величини енергії для даної реакції.

При розрахунку активності ^{63}Ni , слід мати на увазі, що при роботі реактора має місце опромінення конструкційних матеріалів, які його оточують, потоком нейтронів. При активації кобальту та нікелю основний внесок дають теплові нейтрони. Внесками епітеплових і швидких нейтронів можна знехтувати і тому в подальших розрахунках ми будемо використовувати табличні значення перерізів саме для теплових нейтронів. Будемо оцінювати відношення активностей ^{63}Ni та ^{60}Co за наступною формулою:

$$\frac{A(^{63}\text{Ni})}{A(^{60}\text{Co})} = \frac{\left(1 - e^{-\lambda(^{63}\text{Ni})t_{\text{опр}}}\right) e^{-\lambda(^{63}\text{Ni})t_{\text{охол}}} \Phi_n \sigma_{62\text{Ni}}^n N_{62\text{Ni}}}{\left(1 - e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}}\right) e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}} \Phi_n \sigma_{59\text{Co}}^n N_{59\text{Co}}} = \frac{\left(1 - e^{-\lambda(^{63}\text{Ni})t_{\text{опр}}}\right) e^{-\lambda(^{63}\text{Ni})t_{\text{охол}}} \sigma_{62\text{Ni}}^n N_{62\text{Ni}}}{\left(1 - e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{опр}}}\right) e^{-\lambda(^{60}\text{Co})t_{\text{охол}}} \sigma_{59\text{Co}}^n N_{59\text{Co}}}, \quad (7)$$

де $A(^{63}\text{Ni})$ та $A(^{60}\text{Co})$ - активності ^{63}Ni та ^{60}Co , відповідно, Бк; Φ_n - потік нейтронів в реакторі, н/с;

$\sigma_{62\text{Ni}}^n$ та $\sigma_{59\text{Co}}^n$ - табличні значення перерізів реакцій $^{62}\text{Ni}(n, \gamma)^{63}\text{Ni}$ та $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$, відповідно, взяті із [1]; $\lambda(^{63}\text{Ni})=0.693/T_{1/2}(^{63}\text{Ni})$ та $\lambda(^{60}\text{Co})=0.693/T_{1/2}(^{60}\text{Co})$ - сталі радіоактивного розпаду ^{63}Ni та ^{60}Co ,

відповідно, с^{-1} ; $T_{1/2}(^{63}\text{Ni})$ та $T_{1/2}(^{60}\text{Co})$ - періоди напіврозпаду ^{63}Ni та ^{60}Co , відповідно, с; $N_{62\text{Ni}}/N_{59\text{Co}}$ - співвідношення між кількостями атомів ^{62}Ni та ^{59}Co . Воно отримується для даного зразка з формули (5) для співвідношення між кількостями атомів ^{58}Ni та ^{59}Co після врахування вмісту ^{62}Ni в природній суміші (3,59 %). $t_{\text{опр}}$, $t_{\text{охол}}$, $t_{\text{вим}}$ - тривалості опромінення, охолодження та вимірювання.

Суть корисної моделі пояснює креслення, на якому зображено гамма-спектр опроміненого зразку.

В підсумковій формулі (7) для активності ^{63}Ni фігурують експериментально виміряні значення активності ^{60}Co та співвідношення між кількостями атомів ^{62}Ni та ^{59}Co , яке виміряне експериментально

через активності ^{57}Co та ^{58}Co за допомогою формули (5) з врахуванням вмісту ^{62}Ni в природній суміші. З цих даних було отримано, що активність ^{63}Ni в корпусі реактора рівна 1.60 ± 0.16 Бк/г, а в матеріалах (жалюзі) вона рівна 41.3 ± 4.1 Бк/г. Нами були також проведені радіохімічні дослідження цих зразків і було отримано, що активність ^{63}Ni в корпусі < 2 Бк/г, а в жалюзі - 43.2 ± 4.3 Бк/г.

Джерело інформації:

1. R.B. Firestone, Table of Isotopes, 8th edn. (Wiley Interscience, New York, 1996).

