

А. М. Максименко¹, М. Д. Бондарьков¹, Б. Я. Осколков¹, В. А. Сейда², В. Н. Дубас²

¹ГНІУ «Чорнобильський центр по проблемам ядерної безпеки, радіоактивних отходів і радіоекології», ул. 77-й Гвардійської Дивізії, 11, г. Славутич, а/я 151, 07101, Україна

²ГСП «Чорнобильська АЕС», г. Славутич, а/я 11, 07101, Україна

Результаты исследований трудноизмеряемых радионуклидов в металле демонтируемого оборудования Чернобыльской АЭС и оценка коэффициентов масштабирования

Ключевые слова:

Чернобыльская атомная
электростанция,
коэффициент масштабирования,
трудноизмеряемый радионуклид,
удельная активность,
радиоактивные отходы,
освобождение от регулирующего
контроля.

Представлены результаты исследований трудноизмеряемых радионуклидов ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{90}Sr , $^{239}, 240\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{234}U , $^{235}, 236\text{U}$, ^{238}U поверхностного загрязнения металла демонтируемого оборудования Чернобыльской атомной электростанции. Даны оценки коэффициентов масштабирования для трудноизмеряемых радионуклидов.

Введение

В процессе снятия Чернобыльской атомной электростанции (ЧАЭС) с эксплуатации демонтируется большое количество оборудования, металл которого имеет только поверхностное радиоактивное загрязнение. При условии успешной дезактивации данного металла возможно снятие с него регулирующего контроля путем прекращения [1]. Исследование всего объема демонтируемого металла на предмет содержания трудноизмеряемых радионуклидов (ТИРН) является задачей сложной и дорогостоящей. Снижение затрат на измерение удельной активности ТИРН возможно путем измерения ключевых радионуклидов с последующим расчетом ТИРН по эмпирическим коэффициентам масштабирования (КМ) [2, 3].

Основными целями данной работы были определение активности ключевых радионуклидов (КРН) и ТИРН в слое поверхностного загрязнения дезактивированного металла и расчет соответствующих КМ.

Для достижения поставленных целей необходимо было решить задачу по измерению удельной активности КРН и ТИРН на уровнях ниже установленных критерий освобождения [1].

Данные исследования проведены по заказу ГСП «Чернобыльская АЭС», основные результаты представлены в отчете о научно-исследовательской работе [4].

Объекты исследования

В рамках данной работы были исследованы фрагменты демонтированного теплообменного оборудования блока № 1 ЧАЭС: фрагмент паропровода на второй ступени сепаратора-пароперегревателя (СПП); жалюзи СПП; фрагмент корпуса теплообменника бойлера промышленного контура теплосети (БПТ); трубы конденсатора турбин.

После демонтажа оборудования в машинном зале первой очереди ЧАЭС в соответствии с техническим заданием ЧАЭС [5] проводилась его фрагментация и дезактивация.

© А. М. Максименко, М. Д. Бондарьков, Б. Я. Осколков, В. А. Сейда, В. Н. Дубас, 2019

Материальный состав фрагментов оборудования, выбранного для проведения исследований, представлен в табл. 1.

Таблица 1. Материальный состав фрагментов оборудования, выбранного для проведения исследований

Наименование	Название сплава
Фрагмент СПП	Нержавеющая сталь 0Х18Н10Т
Жалюзи сепаратора-пароперегревателя	Нержавеющая сталь 0Х18Н10Т
Фрагмент корпуса БПТ	Углеродистая сталь
Трубки конденсатора турбин	Медно-никелевый сплав (МНЖ-5-1)

История формирования радиоактивного загрязнения объектов исследования

Радиоактивное загрязнение объектов исследования обусловлено активированными коррозионными отложениями на внутренней поверхности трубопроводов [6]. Кроме среды теплоносителя КМПЦ, трубы конденсатора турбин контактировали с охлаждающей водой пруда-охладителя, что в условиях ЧАЭС в послеаварийный период приводило к дополнительному радиоактивному загрязнению, не свойственному для нормальной эксплуатации (наличие аварийных радионуклидов).

Формирование первичного радиоактивного загрязнения объектов исследования началось с пуском блока № 1 ЧАЭС (1977 г.) и продолжалось до его останова (1996 г.). За этот период произошли две радиационные аварии [7–9], которые могли значительно изменить радионуклидные соотношения поверхностного загрязнения объектов исследования путем привнесения в его состав продуктов деления и трансурановых элементов в количестве, не характерном для режима нормальной эксплуатации РБМК-1 [10].

В отдельных случаях при превышении критерии радиационного контроля [11] производилась дополнительная абразивная дезактивация, которая могла привести к изменению соотношений радионуклидов, являющихся предметом настоящего исследования.

Отбор проб

Учитывая низкие уровни радиоактивного загрязнения, характерные для поверхностей дезак-

тивированного металла, для получения численных значений результатов измерений удельной активности радионуклидов отбор проб металла производился в точках с максимальными уровнями общего поверхностного радиоактивного загрязнения. Если перепад значений радиоактивного загрязнения на поверхности объекта исследования не превышал 30 %, то точки для отбора проб намечали равномерно по поверхности объекта. От каждого объекта исследований отбирали пять точечных проб металла. В намеченной точке фрагмент металла вырезали, маркировали и упаковывали. Аналитический материал (поверхностное радиоактивное загрязнение) для измерения удельной активности радионуклидов снимали со всей поверхности точечной пробы металла. Эту операцию осуществляли в лабораторных условиях. Для снятия использовали радиационно чистые ручные режущие инструменты. Поверхностный слой срезали до чистого металла, который имеет характерный металлический блеск. Глубина снятия составляла 0,1–0,3 мм. Для контроля полноты снятия поверхностного загрязнения определялась удельная активность ^{137}Cs в слое чистого металла. Данный метод отбора поверхностного слоя металла отличается своей трудоемкостью. В среднем отбор одной пробы занимает одну восьмичасовую рабочую смену. Однако применение электромеханических режущих инструментов или электрохимических методов могло привести к неконтролируемым потерям отдельных радионуклидов за счет повышения температуры и газообразования, и как следствие – приводить к изменению соотношений радионуклидов.

Отобранный аналитический материал представлял собой смесь оксидов металлов и металлической стружки.

Методики измерения

Измерения проводились в четыре этапа:

- 1) подготовка счетного образца и измерение активности гамма-излучающих радионуклидов, включая ключевые радионуклиды ^{60}Co и ^{137}Cs ;
- 2) растворение счетного образца после гамма-спектрометрии в смеси азотной и соляной кислот и отбор аликовты для радиохимического анализа ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni ;
- 3) отбор аликовты для радиохимического анализа $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{234}U , $^{235,236}\text{U}$, ^{238}U ;
- 4) отбор навески аналитического материала и определение активности ^{10}Be .

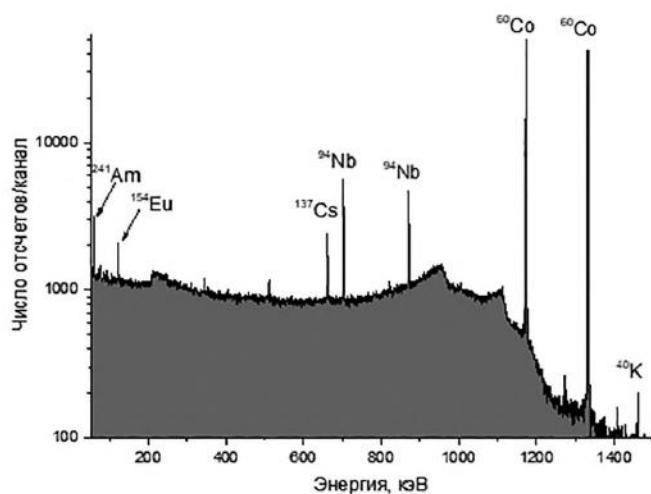


Рис. 1. Фрагмент энергетического спектра, полученного на детекторе GC3019 от пробы № ЖСП 3.
Время измерения 82 917 с

Активность гамма-излучающих радионуклидов измеряли на спектрометре производства CANBERRA с полупроводниковым блоком детектирования GC3019. Для измерения навеску аналитического материала помещали в пластиковую чашку Петри с внешним диаметром 36 мм и толщиной стенки 0,7 мм. Пример спектра приведен на рис. 1.

Для калибровки спектрометра по эффективности использовали радионуклидный источник метрологического назначения типа ОИСН-1 [12] с радионуклидами ^{152}Eu , ^{137}Cs , ^{44}Ti . В наиболее активных образцах на спектрометре с детектором GC3019 были измерены активности радионуклидов: ^{40}K , ^{60}Co , ^{94}Nb , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{241}Am .

После измерения и обработки результатов гамма-спектрометрического анализа для проведения радиохимического анализа ТИРН часть счетного образца растворяли в смеси кислот HCl и HNO_3 (1 : 1) [13].

Радиохимический анализ ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni проводили по ранее разработанной методике, представленной в отчете о научно-исследовательской работе [14].

Активность ^{55}Fe и ^{59}Ni в подготовленных счетных образцах измеряли на низкоэнергетическом германиевом детекторе GL0520R фирмы CANBERRA. Примеры полученных энергетических спектров ^{55}Fe и ^{59}Ni представлены на рис. 2 и 3 соответственно.

После измерения активности ^{59}Ni счетный образец никеля помещали в стеклянный сцинтилляционный флакон объемом 20 мл и растворяли осадок

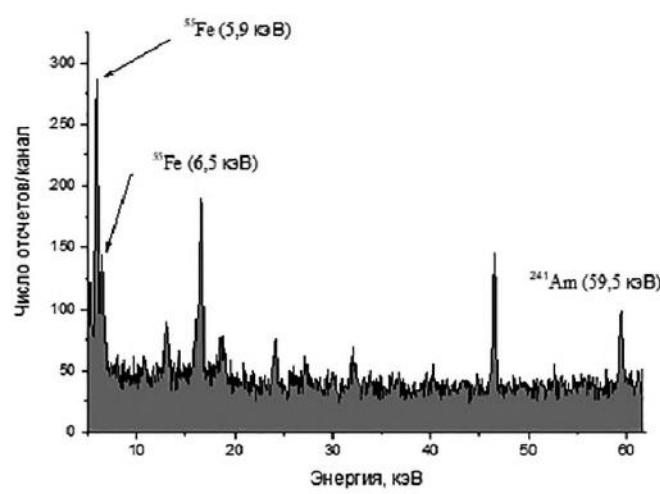


Рис. 2. Фрагмент энергетического спектра, полученного на детекторе GL0520R от счетного образца ^{55}Fe пробы № ЖСП 3. Время измерения 352 891 с

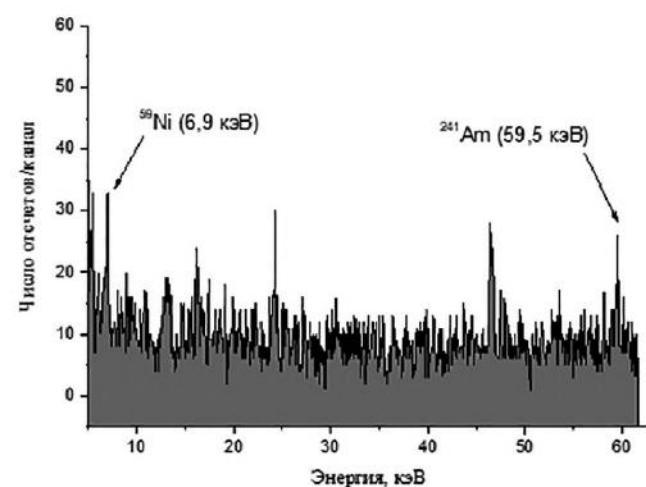


Рис. 3. Фрагмент энергетического спектра, полученного на детекторе GL0520R от счетного образца $^{59+63}\text{Ni}$ пробы № ЖСП 3. Время измерения 82 773 с

$\text{Ni}(\text{DMG})_2$ в 1 мл водного раствора соляной кислоты с молярной концентрацией 0,5 моль · дм⁻³. К полученному раствору добавляли 14 мл сцинтилляционного коктейля Ultima Gold AB и измеряли активность ^{63}Ni по его бета-излучению на жидкостном сцинтилляционном анализаторе TRI-CARB 2500TR. Примеры спектров ^{63}Ni , полученные на TRI-CARB 2500TR, показаны на рис. 4.

Радиохимический анализ ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{234}U , $^{235,236}\text{U}$, ^{238}U проводили по адаптированной для данного типа образцов методике [15].

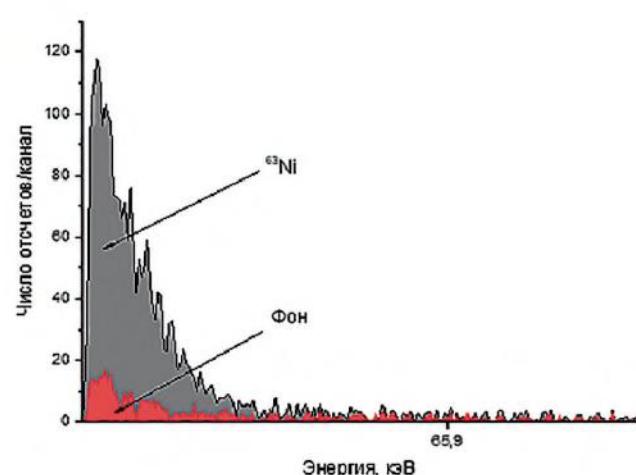


Рис. 4. Бета-спектр ^{63}Ni пробы № ЖСП 3 и спектр фона.
Время измерения пробы равнялось времени
измерения фона – 1 200 с

Счетные образцы для измерения ^{90}Sr готовили в виде оксалата стронция, нанесенного на бумажный фильтр. Коэффициент химического выхода стронция определяли гравиметрическим методом. Активность счетного образца ^{90}Sr измеряли на газо-проточном низкофоновом пропорциональном счетчике [16].

Коэффициент химического выхода урана определяли по внесенному трассеру ^{232}U . Альфа-спектрометрические счетные образцы урана готовили методом электролиза [17]. Активность счетного образца измеряли на альфа-спектрометре с пассивированными ионно-имплантированными планарными кремниевыми детекторами. Пример альфа-спектра изотопов урана представлен на рис. 5.

Коэффициент химического выхода плутония определяли по внесенному трассеру ^{242}Pu . Альфа-спектрометрические образцы для измерения изотопов плутония готовили осаждением плутония в форме Pu/NdF_3 на мембранны с диаметром пор 0,1 мкм [18]. Активность счетного образца измеряли на альфа-спектрометре с пассивированными ионно-имплантированными планарными кремниевыми детекторами. Пример альфа-спектра изотопов плутония представлен на рис. 6.

Активность ^{241}Pu измеряли по его бета-излучению на жидкостном сцинтилляционном спектрометре (ЖСС). Для этого альфа-спектрометрический счетный образец после измерения и расчета активности альфа-излучающих изотопов плутония помещали в сцинтилляционный флаcon и

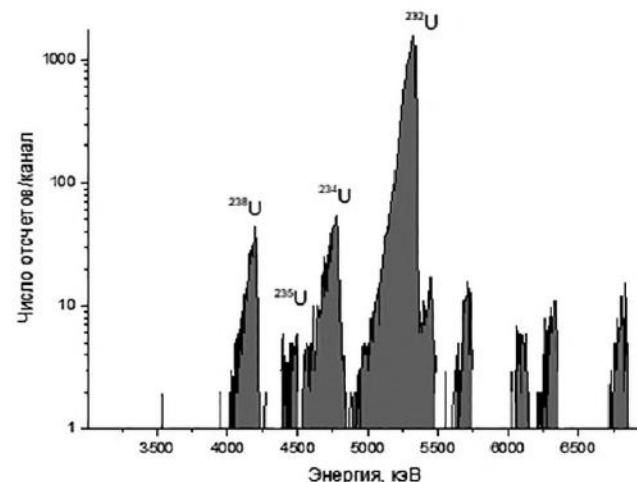


Рис. 5. Альфа-спектр изотопов урана, измеренный в пробе № ЖСП 3. Время измерения пробы 1 254 593 с

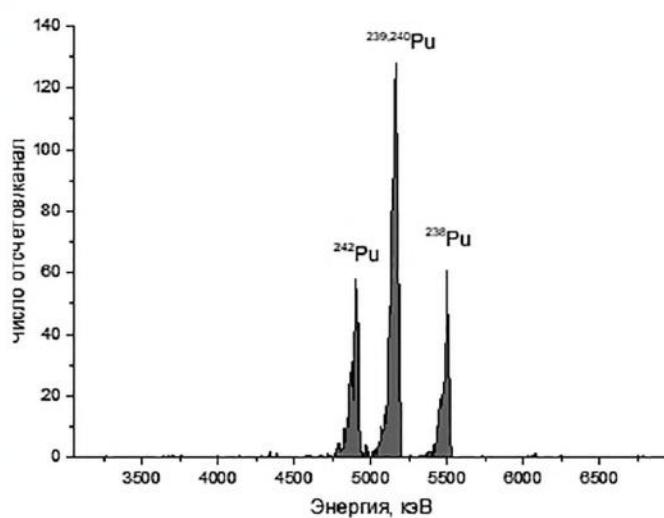


Рис. 6. Альфа-спектр изотопов плутония, измеренный в пробе № ЖСП 3. Время измерения пробы 69 075 с

готовили счетный образец для измерения на ЖСС, как это описано в [15].

Коэффициент химического выхода америция и кюрия определяли по внесенному в пробу трассеру ^{243}Am . Альфа-спектрометрические образцы для измерения изотопов америция и кюрия готовили методом электролиза [17]. Активность счетного образца измеряли на альфа-спектрометре с пассивированными ионно-имплантированными планарными кремниевыми детекторами. Пример альфа-спектра изотопов америция и кюрия представлен на рис. 7.

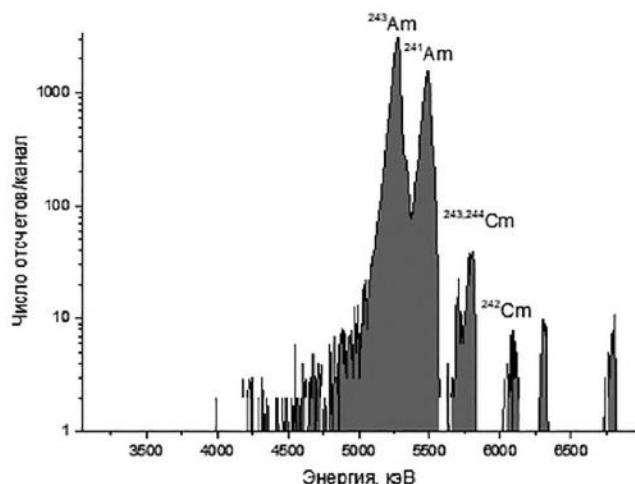


Рис. 7. Альфа-спектр изотопов америция и кюрия, измеренный в пробе № ЖСП 3. Время измерения пробы 192 191 с

Активность радионуклидов в объектах исследований

Результаты измерений удельной активности радионуклидов, обнаруженных в отобранных пробах, представлены в табл. 2 и 3 [4]. Суммарная погрешность

результатов измерений, указанных в табл. 2 и 3, не превышает 50 % для доверительной вероятности 0,95.

Ключевые радионуклиды

Основываясь на критериях отнесения радионуклидов к ключевым [2], из перечисленных в табл. 2 и 3 в качестве таковых могут рассматриваться ^{60}Co и ^{137}Cs . Рассчитанные коэффициенты корреляции между этими радионуклидами и некоторыми из ТИРН составляют следующие величины: $^{60}\text{Co}-^{63}\text{Ni} - 0,60$; $^{137}\text{Cs}-^{90}\text{Sr} - 0,44$; $^{137}\text{Cs}-^{239,240}\text{Pu} - 0,61$; $^{137}\text{Cs}-^{241}\text{Pu} - 0,64$; $^{137}\text{Cs}-^{241}\text{Am} - 0,66$.

Парциальный вклад радионуклидов в суммарную активность и коэффициенты масштабирования

Значения парциального вклада рассчитаны как соотношение медианного значения удельной активности радионуклида к сумме удельных активностей радионуклидов. Значение коэффициента масштабирования рассчитано как отношение медианного значения радионуклида к медианному значению ключевого радионуклида. Полученные величины представлены в табл. 4.

Таблица 2. Результаты измерений удельной активности радионуклидов в пробах металла корпуса теплообменника и жалюзи, Бк/г

РН*	Корпус теплообменника					Жалюзи				
	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5
^{40}K	6,7E-02	3,6E-02	<0,1	8,1E-02	6,8E-02	2,7E-01	1,3E-01	3,5E-01	1,0E-01	1,9E-01
^{60}Co	3,5E+00	2,9E+00	3,5E+00	4,6E+00	2,3E+00	2,0E+01	2,5E+01	5,3E+01	3,4E+01	3,9E+01
^{90}Sr	4,3E-02	6,3E-02	3,0E-02	6,4E-02	2,1E-02	1,1E-01	1,6E-01	1,1E+00	3,7E-01	8,7E-01
^{94}Nb	7,9E-03	1,8E-02	1,1E-02	1,6E-02	<0,013	6,5E-01	6,4E-01	2,6E+00	1,5E+00	1,6E+00
^{137}Cs	3,6E-02	3,6E-02	3,1E-02	9,2E-02	4,1E-02	3,5E-01	4,0E-01	9,0E-01	1,4E+00	8,0E-01
^{154}Eu	<0,017	<0,01	<0,01	<0,016	<0,008	1,0E-01	1,8E-01	2,7E-01	1,4E-01	2,5E-01
$^{239,240}\text{Pu}$	3,3E-02	1,9E-02	8,2E-02	4,7E-02	1,3E-02	1,2E-01	1,7E-01	5,3E-01	3,3E-01	3,7E-01
^{238}Pu	1,1E-02	8,5E-03	1,6E-02	1,2E-02	3,0E-03	4,5E-02	5,6E-02	1,7E-01	1,2E-01	1,2E-01
^{241}Pu	3,4E-01	1,8E-01	2,3E-01	2,9E-01	3,3E-01	1,6E+00	1,7E+00	6,2E+00	4,0E+00	4,4E+00
^{241}Am	2,3E-02	3,1E-02	2,3E-02	3,3E-02	5,9E-03	2,5E-01	4,0E-01	1,0E+00	6,8E-01	7,4E-01
^{234}U	2,2E-02	1,4E-03	5,4E-03	1,2E-03	1,1E-03	1,3E-02	1,6E-02	1,9E-02	1,7E-02	3,1E-02
$^{235,236}\text{U}$	<0,000026	<0,000014	<0,000014	<0,000010	<0,000018	<0,000030	1,6E-03	1,8E-03	1,1E-03	<0,000026
^{238}U	1,3E-02	6,3E-04	3,0E-03	3,9E-04	8,9E-04	6,6E-03	8,6E-03	1,1E-02	9,2E-03	1,2E-02
^{59}Ni	<0,706	<0,716	<0,624	<0,591	<0,653	<0,932	5,6E-01	4,6E-01	<1,672	7,1E-01
^{63}Ni	2,2E+00	<2,152	2,9E+00	<2,108	<1,953	1,4E+01	2,5E+01	2,7E+01	6,4E+01	4,3E+01
^{55}Fe	<0,926	<0,676	<0,794	<0,632	<0,630	2,8E+00	9,1E+00	3,2E+00	9,9E+00	7,1E+00

*РН – радионуклиды

**Таблица 3. Результаты измерений удельной активности радионуклидов в пробах металла
МНЖ трубы и трубопровода СПП, Бк/г**

РН	МНЖ трубы					Трубопровод СПП				
	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5
⁴⁰ K	1,2E-01	<0,11	<0,18	<0,184	<0,17	1,4E-01	<0,224	<0,26	<0,23	<0,25
⁶⁰ Co	7,2E-02	3,8E-02	6,6E-02	7,3E-01	1,3E-01	2,6E-01	4,9E-02	3,7E+00	5,0E-01	3,5E+00
⁹⁰ Sr	<0,050	4,8E-01	4,2E-01	1,4E-01	1,3E-01	1,6E-01	2,5E-01	5,4E-01	2,4E-01	1,6E+00
⁹⁴ Nb	4,0E-03	2,3E-03	4,0E-03	2,8E-02	8,7E-03	<0,018	3,9E-03	1,1E-01	6,2E-02	9,7E-02
¹³⁷ Cs	1,1E-01	8,7E-01	6,4E-01	7,2E-01	7,2E-01	1,5E-01	2,5E-01	2,9E-01	3,1E-01	5,3E-01
¹⁵⁴ Eu	<0,007	<0,008	<0,0148	<0,012	<0,0106	<0,021	2,3E-02	6,6E-02	<0,014	4,9E-02
^{239, 240} Pu	5,0E-03	4,1E-03	4,7E-03	1,5E-02	2,3E-01	1,1E-02	4,1E-02	1,5E-01	1,8E-01	9,0E-02
²³⁸ Pu	2,7E-03	2,3E-03	2,9E-03	7,1E-03	9,5E-02	6,3E-03	1,8E-02	6,8E-02	6,0E-02	4,4E-02
²⁴¹ Pu	1,6E-01	1,3E-01	1,1E-01	3,1E-01	3,2E+00	1,3E-01	6,8E-01	2,9E+00	6,1E-01	1,4E+00
²⁴¹ Am	3,7E-02	7,7E-03	6,0E-03	2,9E-02	2,7E-01	2,4E-02	7,0E-02	2,4E-01	2,9E-02	1,2E-01
²³⁴ U	7,2E-03	3,3E-03	1,4E-03	2,8E-03	2,5E-03	2,8E-03	1,7E-03	1,4E-03	4,4E-03	4,4E-03
^{235, 236} U	<0,000013	<0,000012	<0,000012	<0,000012	<0,000039	<0,000015	<0,000099	<0,000094	<0,000011	<0,000013
²³⁸ U	5,3E-03	1,9E-03	1,1E-03	1,8E-03	2,7E-04	2,7E-03	2,3E-03	2,5E-03	3,9E-03	3,3E-03
⁵⁹ Ni	<0,594	<0,599	<0,585	<0,601	<0,460	<0,442	<0,429	<0,461	<0,634	<0,594
⁶³ Ni	<2,115	1,7E+00	<2,022	<1,977	<1,957	<2,088	<1,965	5,0E+00	<1,947	7,8E+00
⁵⁵ Fe	<0,668	<0,941	<0,839	1,1E+00	<0,709	<0,730	<0,619	<0,622	<0,601	<0,676

**Таблица 4. Результаты расчета парциального вклада радионуклидов в суммарную активность
и коэффициент масштабирования**

РН	Количество значений, взятых для расчета медианы, п	Медианное значение удельной активности РН, Бк/г	Парциальный вклад РН в суммарную активность	Коэффициент масштабирования РН/ ⁶⁰ Co и суммарная неопределенность	Коэффициент масштабирования РН/ ¹³⁷ Cs и суммарная неопределенность
⁶⁰ Co	21	2,860	13,81 %	-	8,171 ± 214,10
⁹⁰ Sr	20	0,163	0,79 %	0,057 ± 1,63	0,466 ± 214,10
⁹⁴ Nb	18	0,023	0,11 %	0,008 ± 1,20	0,065 ± 9,70
¹³⁷ Cs	21	0,350	1,69 %	0,122 ± 1,20	-
¹⁵⁴ Eu	8	0,119	0,57 %	0,041 ± 1,20	0,339 ± 1,98
^{239, 240} Pu	20	0,064	0,31 %	0,023 ± 0,62	0,184 ± 1,98
²³⁸ Pu	20	0,017	0,08 %	0,006 ± 0,62	0,049 ± 0,74
²⁴¹ Pu	20	0,475	2,30 %	0,166 ± 0,62	1,358 ± 0,74
²⁴¹ Am	20	0,035	0,17 %	0,012 ± 0,59	0,100 ± 4,17
²³⁸ U	20	0,003	0,01 %	0,001 ± 0,03	0,008 ± 0,07
⁵⁹ Ni	3	0,556	2,69 %	0,195 ± 4,98	1,589 ± 0,07
⁶³ Ni	10	10,866	52,48 %	3,799 ± 99,92	31,045 ± 251,80
⁵⁵ Fe	6	5,172	24,98 %	1,808 ± 99,92	14,778 ± 84,61
Суммарная активность, Бк/г		20,7	-	-	-

Выводы

Использованные в данной работе подходы к отбору проб и методы измерения позволили с достаточной достоверностью определить активность ТИРН в пробах металла демонтируемого оборудования ЧАЭС и рассчитать для них КМ и их суммарные неопределенности, которые могут быть использованы в практике.

Большие значения суммарной неопределенности коэффициентов масштабирования обусловлены различиями в соотношениях радионуклидов радиоактивного загрязнения исследованных фрагментов оборудования, причиной которых может быть дифференцированное применение дезактивации (проводилась дезактивация только тех фрагментов, уровни загрязнения которых превышали установленные уровни).

Полученные результаты позволяют сделать вывод о том, что для определения КМ с целью освобождения от регулирующего контроля необходим тщательный подход к формированию потока РМ, для которых применяется одинаковый способ дезактивации.

Список использованной литературы

1. НП 306.4.159-2010. Порядок звільнення радіоактивних матеріалів від регулюючого контролю у рамках практичної діяльності. [Прийнятий Наказом Державного комітету ядерного регулювання України від 01.04.2010 р. № 84, чинний від 06.09.2010 р.]. – Київ, 2010.
2. ISO 21238:2007. 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 / International Organization for Standardization, 2007. – 23 p.
3. Determination and Use of Scaling Factors for Waste Characterization in Nuclear Power Plants / International Atomic Energy Agency // IAEA Nuclear Energy Series. – No. NW-T-1.18. – Vienna, 2009.
4. Выполнение измерений образцов металла оборудования, демонтируемого в машинном зале первой очереди ГСП ЧАЭС с последующим расчетом коэффициентов пропорциональности для трудноизмеремых радионуклидов : отчет о НИР / ГНИУ «Чернобыльский центр по проблемам ядерной безопасности, радиоактивных отходов и радиоэкологии». – Славутич, 2016.
5. Технічне завдання на демонтаж, переробку, звільнення від регулюючого контролю обладнання та конструкцій машинної зали 1-го блоку ДСП ЧАЕС. / В. В. Герасимов, А. И. Касперович, О. И. Мартынова. – М. : Атомиздат, 1976. – 400 с.
6. Герасимов В. В. Водный режим атомных станций / В. В. Герасимов, А. И. Касперович, О. И. Мартынова. – М. : Атомиздат, 1976. – 400 с.
7. Чернобыльская катастрофа / Под ред. В. Г. Барьяхтара – Киев : Наук. думка, 1995. – 559 с.
8. Герасько В. Н. Объект «Укрытие». История, состояние и перспективы / В. Н. Герасько, А. А. Ключников, А. А. Корнеев и др. – Киев : Интерграфик, 1997. – 224 с.
9. Доллежаль Н. А. Анализ причин и последствий аварийного разрыва канала 62–44 реактора блока № 1 Чернобыльской АЭС. Отчет 4.50. – М., 1983.
10. ТВС РБМК-1000. Техническое описание. 862.00.000 ТО.
11. Технологические радиационные критерии, 39Э-ЦРБ / ГСП «Чернобыльская АЭС». – 2016. – 22 с.
12. Паспорт № 01-0041-05 на радионуклидный источник метрологического назначения типа ОИСН с радионуклидами европий-152, цезий-137, титан-44. Государственное предприятие / Одесский научно-производственный центр экологической безопасности. – Одесса, 2005.
13. Бок. Р. Методы разложения в аналитической химии / Р. Бок. – М. : Химия, 1984. – 432 с.
14. Определение радиоизотопного состава и активности специзделей в центральных залах блоков № 1, 2, 3, которые не подлежат переработке отходов ЛИД. Разработка методики измерения специзделей. Подготовка предложений относительно обращения с ними : отчет о НИР / М. Д. Бондарьков, А. М. Максименко, Б. Я. Осколков и др.; ГНИУ «Чернобыльский центр по проблемам ядерной безопасности, радиоактивных отходов и радиоэкологии». – Славутич, 2013.
15. Vajda N. Simultaneous determination of long-lived radionuclides in environmental samples / N. Vajda, Zs. Molnar, E. Kabai, Sz. Osvath // Environmental Radiochemical Analysis II. – 2003. – P. 185–196.
16. Operating Manual. FHT 770 T Multi-Low-Level-Counter for measurement of low level alpha and beta activity in samples up to 60 mm diameter. Eberline Instruments.
17. IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series No. 37. A Procedure for the Sequential Determination of Radionuclides in Environmental Samples. – Vienna : International Atomic Energy Agency, 2014.
18. IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications No. IAEA/AQ/11. A Procedure for the Rapid Determination of Pu Isotopes and Am-241 in Soil and Sediment Samples by Alpha Spectrometry. – Vienna : International Atomic Energy Agency, 2009.
19. Ампелегова Н. И. Дезактивация в ядерной энергетике / Н. И. Ампелегова, Ю. М. Симановский, А. А. Трапезников. – М. : Энергоиздат, 1982. – 256 с.

**А. М. Максименко¹, М. Д. Бондарьков¹,
Б. Я. Осколков¹, В. А. Сейда², В. Н. Дубас²**

¹ДНДУ «Чорнобильський центр з проблем ядерної безпеки, радіоактивних відходів та радіоекології», м. Славутич, а/с 151, 07101, Україна

²ДСП «Чорнобильська АЕС», м. Славутич, а/с 11, 07101, Україна

Результати досліджень важковимірюваних радіонуклідів у металі обладнання Чорнобильської АЕС, що демонтується, і оцінка коефіцієнту масштабування

Представлено результати досліджень важковимірюваних радіонуклідів ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{90}Sr , $^{239, 240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{234}U , $^{235, 236}\text{U}$, ^{238}U поверхневого забруднення металу обладнання Чорнобильської АЕС, що демонтується. Дано оцінки коефіцієнтів масштабування для важковимірюваних радіонуклідів.

Ключові слова: Чорнобильська АЕС, коефіцієнт масштабування, важковимірюваний радіонуклід, питома активність, радіоактивні відходи, звільнення від регулюючого контролю.

**A. M., Maksymenko¹, M. D. Bondarkov¹,
B. Ya. Oskolkov¹, V. A. Seida², V. N. Dubas²**

¹SSRI "Chornobyl Center for Nuclear Safety, Radioactive Waste and Radioecology", Slavutych, 07101, Ukraine

²SSE "Chornobyl NPP", Slavutych, 07101, Ukraine

Results for Studies of Hard-to-Measure Radionuclides in the Metal of Chernobyl Nuclear Power Plant Equipment being Dismantled, and Estimation of Scaling Factor

The results of studies are presented for hard-to-measure radionuclides ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{90}Sr , $^{239, 240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{234}U , $^{235, 236}\text{U}$, ^{238}U in the surface contamination of the metal of ChNPP equipment, being dismantled. The estimation of scaling factors for hard-to-measure radionuclides is given.

In the process of the Chernobyl NPP decommissioning, a large amount of equipment is dismantled, the metal of which has only the surface radioactive contamination. Under condition of successful decontamination of this metal, it is possible to release it from the regulatory control by clearance. The study of complete volume of the metal being dismantled for

hard-to-measure radionuclides (HMR) content is a complex and expensive task. Reducing the cost for HMR specific activity measurement is possible by measuring key radionuclides followed by calculating HMR using the empirical scaling factors (SF).

The main objectives of this work were to determine the activity of key radionuclides (KR) and HMR in the surface contamination layer of the decontaminated metal and to calculate the corresponding SF. To achieve the set objectives, it was necessary to solve the problem of measuring the specific activity of KR and HMR at the levels below the established exemption criteria.

These studies were carried out to the order of the SSE "Chernobyl NPP", the main results are presented in the research report.

The measurements were carried out in four stages. The first stage was the preparation of the counting sample and measurement of the gamma-emitting radionuclides activity, including key radionuclides ^{60}Co and ^{137}Cs . The second stage was the dissolution of the counting sample after gamma spectrometry in the mixture of nitric and hydrochloric acids and the selection of an aliquot for the radiochemical analysis of ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni . The third stage was the selection of an aliquot for the radiochemical analysis of $^{239, 240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{234}U , $^{235, 236}\text{U}$, ^{238}U . The fourth stage is the selection of a sample weight of the analytical material and determination of ^{10}Be activity.

Based on the criteria of referring radionuclides as key, of those listed in the Tables 2, 3, ^{60}Co and ^{137}Cs can be considered as such radionuclides. The calculated correlation coefficients between these radionuclides and some of HMR are presented as the following values: ^{60}Co - ^{63}Ni - 0.60; ^{137}Cs - ^{90}Sr - 0.44; ^{137}Cs - $^{239, 240}\text{Pu}$ - 0.61; ^{137}Cs - ^{241}Pu - 0.64; ^{137}Cs - ^{241}Am - 0.66.

The approaches to sampling used in this work and measurement methods made it possible to fairly reliably determine the activity of HMR in the metal samples of the ChNPP equipment being dismantled and to calculate SF for them and their total uncertainties that can be used in practice.

The large values of the total uncertainty of the scaling factors are due to the differences in the radionuclide ratios of radioactive contamination of the studied equipment fragments, the cause of which may be the differential use of decontamination (decontamination only of those fragments, which contamination levels exceeded the established levels, was carried out).

The obtained results allow us to conclude that, in order to determine SF for the purpose of exemption, it is necessary to apply the careful approach to the formation of the RM flux, for which the same method of decontamination is used.

Keywords: Chernobyl nuclear power plant, scaling factor, hard-to-measure radionuclide, specific activity, radioactive waste, release.

References

1. NP 306.4.159-2010. *Order of radioactive materials release in the framework of the practical activity*. Kyiv, 2010. (in Ukr.)
2. ISO 21238:2007. *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*. International Organization for Standardization, 2007, 23 p.
3. International Atomic Energy Agency (2009) Determination and Use of Scaling Factors for Waste Characterization in Nuclear Power Plants. IAEA Nuclear Energy Series, No. NW-T-1.18, Vienna.
4. Research effort report “*Vypolneniye izmereniy obraztsov metalla oborudovaniya, demontiruyemogo v mashinnom zale pervoy ocheredi GSP CHAES s posleduyushchim raschetom koeffitsiyentov proporsionalnosti dlya trudnoizmeryayemykh radionuklidov*” [Measurement of metal samples of equipment dismantled in the turbine hall of the SSE ChNPP 1st Stage with the further calculation of the proportionality coefficients for hard-to-measure radionuclides], State Scientific and Research Institution “Chornobyl Center for Nuclear Safety, Radioactive Waste and Radioecology”, Slavutych. 2016. (in Russ.)
4. *Terms of Reference for dismantling, processing, release of the equipment and constructions of the turbine hall of the SSE ChNPP Unit 1*. (in Ukr.)
5. Gerasimov V. V., Kasperovich A. I., Martynova O. I. (1976) *Vodnyy rezhim atomnykh stantsiy* [Water regime of nuclear power plants]. Moscow: Atomizdat, 400 p. (in Russ.)
6. Bariahtar V. G. (Ed.) (1995) *Chernobylskaya katastrofa* [Chernobyl accident]. Kyiv: Naukova Dumka, 559 p. (in Russ.)
7. Gerasko V. N., Klyuchnikov A. A., Korneev A. A., Kupny V. I., et al. (1997) *Obyekt "Ukrytiye". Iстория, sostoyaniye i perspektivy* [Shelter Object. History, status and prospects]. Kyiv, Intergraph, 224 p. (in Russ.)
8. Dollezhal N. A. (1983) *Analiz prichini posledstviy avariynogo razryva kanala 62–44 reaktora bloka №1 Chernobylskoy AES* [Analysis of the reasons and consequences of the emergency rupture of channel 62–44 of the Chernobyl NPP Unit 1 reactor. Report 4.50], Moscow. (in Russ.)
9. FA RBMK-1000. *Technical description*, 862.00.000 TO. (in Russ.)
10. *Technological radiation criteria*, 39E-RPD. SSE Chernobyl NPP, 2016, 22 p. (in Russ.)
11. *Passport No. 01-0041-05 for the radionuclide source of metrological designation of OISN type with radionuclides europium-152, cesium-137, titanium-44*. Odesa: State Enterprise “Odessa Research and Production Center for Ecological Safety”, 2005. (in Russ.)
12. Bock R. (1984) *Metody razlozheniya v analiticheskoy khimii* [Methods of decomposition in analytical chemistry]. Chemistry, Moscow, 432 p. (in Russ.)
13. Bondarkov M. D., Maksimenko A. M., Oskolkov B. Ya., et al. (2013) Research effort report “*Determination of radioisotope composition and activity of special items in the central halls of Units 1, 2, 3, which are not subject to LLCL waste processing . Development of methods for measuring special products. Preparation of proposals on their management*”. Slavutych: SSRI “Chornobyl Center for Nuclear Safety, Radioactive Waste and Radioecology”. (in Russ.)
14. Vajda N., Molnar Zs., Kabai E., Osvath Sz. (2003), Simultaneous determination of long-lived radionuclides in environmental samples. *Environmental Radiochemical Analysis II*, June, 185–196 pp.
15. Operating Manual. *FHT 770 T Multi-Low-Level-Counter for measurement of low level alpha and beta activity in samples up to 60 mm diameter*. Eberline Instruments.
16. IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series No. 37 (2014) *A Procedure for the Sequential Determination of Radionuclides in Environmental Samples*. International Atomic Energy Agency, Vienna.
17. IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications No. IAEA/AQ/11 (2009) *A Procedure for the Rapid Determination of Pu Isotopes and Am-241 in Soil and Sediment Samples by Alpha Spectrometry*. International Atomic Energy Agency, Vienna.
18. Ampelegova N. I., Simanovsky Yu. M., Trapeznikov A. A. (1982) *Dezaktivatsiya v yadernoy energetike* [Decontamination in nuclear power]. Moscow: Energoizdat, 256 p. (in Russ.)

Надійшла 28.03.2019
Received 28.03.2019