

УДК 539.12.043

ЭФФЕКТИВНЫЙ СРЕДНИЙ ИНТЕГРАЛЬНЫЙ ПОТОК γ -КВАНТОВ, ВОЗДЕЙСТВУЮЩИЙ НА РАДИАЦИОННЫЕ ДЕФЕКТЫ ПРИ РЕАКТОРНОМ ОБЛУЧЕНИИ

Николаенко В.А., Кузнецов В.Н., Красиков Е.А. (РНЦ «Курчатовский ин-т»)

Реакторное γ -излучение изменяет спектр дефектов, уже созданных нейтронами, и приводит к радиационному γ -отжигу [1—3]. Естественно полагать, что степень трансформации этого спектра и масштаб эффекта должны определяться не столько плотностью потока γ -квантов, сколько суммарным интегральным потоком этих частиц. Однако если флюенс нейтронов непрерывно увеличивается со временем, то воздействующий на дефекты интегральный поток γ -квантов изменяется принципиально иначе. Например, в зоне смещения, возникшей в некоторый момент, дефекты трансформируются под влиянием γ -излучения лишь до тех пор, пока эта зона (и дефекты в ней) не будет перекрыта повторным возмущением под действием нейтронов. В этот момент новые дефекты вновь начинают подвергаться воздействию γ -излучения, и процесс радиационного γ -отжига повторяется. Поэтому в случае облучения γ -квантами можно говорить лишь об их некотором эффективном среднем интегральном потоке.

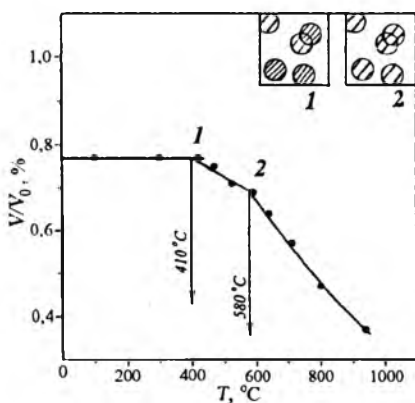
Математическое выражение для эффективного среднего интегрального потока γ -квантов выводится на основе зонной теории повреждаемости материалов, примеры экспериментального подтверждения которой уже приводились неоднократно [4]. Например, на кривой изохронного отжига расширения кристаллической решетки алмаза, облученного сначала при высокой, а затем при низкой температуре, имеются два излома, соответствующие этой температуре [5]. На рис. 1 зоны смещений — зоны повышенной концентрации дефектов, возникающие в конце пути первично-выбитых атомов, заштрихованы. Концентрация дефектов в зоне пропорциональна частоте штриховки. В точке 1 концентрация дефектов различна, так как часть зон создана облучением при высокой температуре и в них за счет термического отжига концентрация дефектов относительно мала (редкая штриховка). Другая часть зон образована при низкой температуре облучения с большей концентрацией дефектов (частая штриховка). Следует обратить внимание на случай, когда одна из зон, созданная ранее при более высокой температуре, впоследствии перекрывается возникшей при низкой температуре. В этом случае устанавливается более высокая концентрация дефектов.

При нагреве сначала отжигаются дефекты в зонах, образованных при низкой температуре, и первый излом на кривой изохронного отжига соответствует этой температуре облучения. По мере увеличения температуры отжига от точки 1 к точке 2

отжиг идет фактически только в зонах с частой штриховкой. В точке 2 концентрация дефектов в обоих типах зон становится одинаковой, и за счет увеличения числа зон, участвующих в отжиге, скорость восстановления решетки возрастает. Поэтому на кривой изохронного отжига появляется новый излом.

Кривые изохронного отжига облученного алмаза с несколькими точками излома, когда предварительное облучение проведено при более высокой температуре облучения, наблюдались неоднократно, в том числе для графита.

Другим примером применения зонной теории создания дефектов в алмазе служит рис. 2. Здесь приведены случаи повторного облучения двух образцов алмаза при одном и том же флюенсе



Р и с. 1. Изохронный отжиг алмаза, облученного сначала при 580°C (точка 2), затем при 410°C (точка 1)

нейтронов и 100 °С (облучение в одной кассете). Предварительно образцы облучали примерно до одного и того же флюенса нейтронов, но один при 100 °С, другой при 250 °С. На рис. 2, как и в случае рис. 1, зоны представлены круглыми значками с разной частотой штриховки.

Рассмотрим характер кривых 1, 2, полученных при повторном облучении образцов при 100 °С. В случае предварительного облучения при разной температуре концентрация зон в матрице одинакова, так как флюенс нейтронов одинаков, а объем зоны мало зависит от температуры облучения. Поэтому после первого облучения условные мгновенные фотографии структуры образцов одинаковы, за исключением частоты штриховки. Концентрация дефектов в зонах, а вследствие этого и расширение алмаза, облученного при 100 °С, больше, чем расширение облученного при 250 °С.

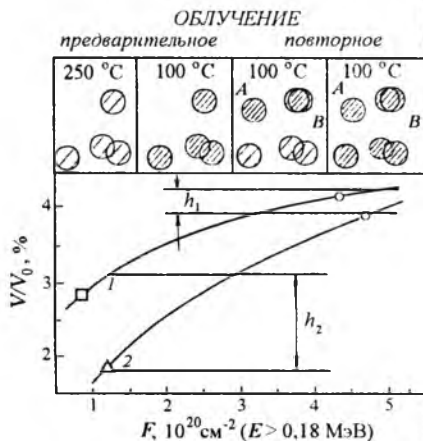
Повторное облучение образцов при 100 °С и образование новых зон ведет к повышению концентрации дефектов и соответствующему увеличению расширения решетки. Однако в зависимости от того, куда попадает новая зона, эффект расширения для выбранных образцов оказывается различным. Образование новой зоны в матрице, еще не проходившей через возмущение (такие зоны отмечены А на рис. 2), приводит к одинаковому для обоих образцов росту концентрации дефектов и увеличению расширения решетки. Если новая зона образуется на месте старой, созданной еще при первом облучении (такие зоны отмечены В), то в образце, облученном при низкой температуре, концентрация дефектов не изменится, останется прежним и расширение решетки алмаза. Для образца, предварительно облученного при более высокой температуре, концентрация дефектов возрастет, следовательно, увеличится и расширение решетки.

В результате скорость прироста расширения при повторном облучении оказывается больше у образца, ранее облученного при более высокой температуре. Поэтому расширение решетки этого образца должно постепенно приближаться к расширению образца, облученного при низкой температуре, и разница в расширении двух образцов все время уменьшается ($\delta_1 < \delta_2$). В предельном случае расширение обоих образцов станет одинаковым.

Таким образом, оба примера — с изохронным отжигом облученного алмаза и с повторным облучением подтверждают приємлемость зонной теории образования дефектов.

Если мысленно в некоторый момент облучения зафиксировать состояние структуры алмаза (сделать его мгновенную фотографию), то на ней будут запечатлены объемы, не прошедшие через состояние возмущения, прошедшие через возмущение один, два, три и большее число раз. Эти объемы будут иметь разное время, прошедшее с момента их образования. Назовем это время возрастом объема, и от него будут зависеть тип и концентрация дефектов, что связано с тепловым и радиационным у-отжигом.

Время, прошедшее с момента образования дефектных объемов, может быть разным. Некоторые объемы, возникшие в самом начале облучения и не будучи затронуты повторными возмущениями, могут сохраниться до конца облучения, и тогда их время



Р и с. 2. Расширение кристаллической решетки образцов алмаза в случае предварительного облучения при 100 (□) и 250 °С (Δ) и повторного облучения обоих образцов при 100 °С в одной кассете (○)

существования будет примерно равно времени облучения. Некоторые возмущенные объемы возникают непосредственно перед моментом мысленного фиксирования (фотографирования) структуры, тогда их время жизни будет мало. Определить возраст конкретных возмущенных объемов (и дефектов в них) невозможно, однако среднее время жизни насыщенных дефектами объемов от момента их создания до конца облучения рассчитать можно.

Известное дифференциальное уравнение скорости прохождения необлученного объема материала через состояние возмущения (состояние зоны) любое число раз имеет вид

$$dV/dt = (1 - \nu)\alpha \Sigma_s \varphi_n,$$

где V — относительная доля единичного объема, прошедшая через возмущение; α — объем зоны повышенной концентрации дефектов; φ_n — плотность потока нейтронов; Σ_s — среднее макроскопическое сечение упругого рассеяния нейтронов; t — время облучения.

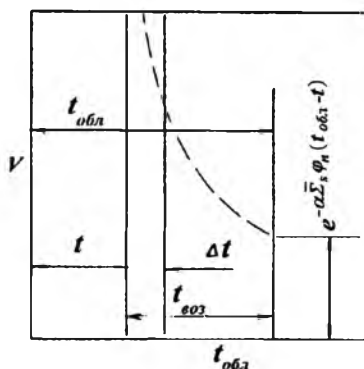
Решением этого уравнения является

$$V = 1 - \exp(-\alpha \Sigma_s \varphi_n t). \quad (1)$$

Из уравнения (1) следует, что в любой момент времени облучения относительная доля единичного объема материала, еще не затронутая возмущениями, т.е. свободная от дефектов, описывается уравнением

$$V_0 = 1 - V = \exp(-\alpha \Sigma_s \varphi_n t). \quad (2)$$

Схема расчета среднего интегрального потока γ -квантов приведена на рис. 3. Представим, что в момент времени t возникает некоторый элементарный объем, состоящий из только что созданных свежих зон. За время Δt такие объемы создаются непрерывно, следуя один за другим. Объемы возникают как в незатронутых возмущениями областях кристалла, так и в частях, уже прошедших через состояние зоны любое число раз. Важно то, что все эти объемы одинаково новые, возникают одновременно и отсчет времени их жизни (возраста) наступает в момент их образования. После возникновения каждый такой элементарный объем, состоящий из зон, начинает вновь подвергаться повторным возмущениям, и часть объема не сохраняется (не доживает) в первоначальном виде до конца облучения. На момент конца облучения ($t_{обл}$) от элементарного объема, возникшего в момент t , останется повторно невозмущенная в соответствии с уравнением (2) его часть $\exp[-\alpha \Sigma_s \varphi_n (t_{обл} - t)]$, и она будет иметь возраст $t_{обл} - t$, так как от момента образования до конца облучения прошло такое время. Остаточная повторно невозмущенная часть элементарных объемов, возникших в начальный период



Р и с. 3. Схема расчета среднего времени жизни (возраста) объемов, насыщенных дефектами

облучения, относительно мала, но время их существования (жизни) велико. Наоборот, такие же части элементарных объемов, созданных в конце облучения, сравнительно велики, хотя время их жизни (возраст) мало. Тогда средний возраст всех элементарных объемов, возникших за время $t_{обл}$, можно определить по уравнению

$$\bar{t}_{воз} = \frac{\int_0^{t_{обл}} (t_{обл} - t) \exp[-\alpha \Sigma_s \varphi_n (t_{обл} - t)] dt}{\int_0^{t_{обл}} \exp[-\alpha \Sigma_s \varphi_n (t_{обл} - t)] dt}.$$

Его решением является

$$\bar{t}_{\text{воз}} = \frac{1 - \alpha \sum_s \varphi_n t_{\text{обл}} \exp(-\alpha \sum_s \varphi_n t_{\text{обл}}) - \exp(-\alpha \sum_s \varphi_n t_{\text{обл}})}{1 - \exp(-\alpha \sum_s \varphi_n t_{\text{обл}})} \frac{1}{\alpha \sum_s \varphi_n} \quad (3)$$

или

$$\bar{t}_{\text{воз}} = \frac{f(\sum_s, \varphi_n, t_{\text{обл}})}{\alpha \sum_s \varphi_n},$$

где $f(\sum_s, \varphi_n, t_{\text{обл}})$ — функция, представляющая первый множитель выражения (3).

Таким образом, средний возраст прошедших через возмущение объемов определяется некоторой функцией и зависит от объема зоны, среднего макроскопического сечения упругого рассеяния нейтронов и плотности потока нейтронов.

Если для дефектов в разных зонах смещения ввести понятие эффективного среднего интегрального потока γ -квантов, то его значение определится как

$$\bar{F}_{\gamma \text{ эф}} = \varphi_{\gamma} \bar{t}_{\text{воз}} = \varphi_{\gamma} \frac{f(\sum_s, \varphi_n, t_{\text{обл}})}{\alpha \sum_s \varphi_n} = \frac{f(\sum_s, \varphi_n, t_{\text{обл}})}{\alpha \sum_s} \frac{1}{\Phi \text{СИ}}, \quad (4)$$

где $\Phi \text{СИ}$ — фактор состава излучения $= \varphi_n / \varphi_{\gamma}$.

Следовательно, если обрабатываются данные эксперимента по облучению материала в разных реакторах и если судьба радиационных дефектов среди других причин определяется средним интегральным потоком γ -квантов, то свойства материала должны зависеть от факторов, входящих в выражение (4).

Заметим, что при $t_{\text{обл}} \rightarrow \infty$ первый член выражения (3) стремится к 1, при этом средний возраст зон становится постоянным и имеет вид

$$\bar{t}_{\text{воз}} = (\alpha \sum_s \varphi_n)^{-1}.$$

При этом, естественно, и эффективный средний интегральный поток γ -квантов, воздействующий на радиационные дефекты в зонах, также становится постоянным.

Проведенный ранее анализ экспериментальных данных показал [6], что критический флюенс нейтронов для реакторного графита зависит не только от температуры облучения, но и фактора состава излучения. Для критического флюенса нейтронов было получено уравнение «наилучшей» регрессии для поставленной там задачи:

$$F_{\text{кр}} = 19,85 + 0,0721T - 7,49 \cdot 10^{-8}T^2 - 2,44/\Phi \text{СИ};$$

$$S = 1,55 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}; \quad F_{\text{общ}} = 113,9.$$

В связи с этим для определения количественного эффекта от учета влияния эффективного среднего интегрального потока γ -квантов экспериментальные результаты [6] по облучению графита в разных реакторах (см. таблицу) были еще раз подвергнуты статистическому анализу. При этом для сравнения двух уравнений регрессий, найденных по одним и тем же экспериментальным данным, были рассмотрены две модели. Первая из них основана на использовании переменных $t_{\text{обл}}, \varphi_n, \varphi_{\gamma}$, некоторых функций с их участием и парных взаимодействий, в том числе фактора состава излучения, вторая включает еще дополнительно переменную $\sum_s$, значения которой также приведены в таблице. Величина $\sum_s$ представляет собой макроскопическое сечение упругого рассеяния быстрых нейтронов энергией более 0,18 МэВ, усредненное по спектрам мест облучения образцов графита в реакторах СМ-2 [7], БОР-60 [8] и МР.

Для сравнения результатов необходимо выполнить условие — в обеих моделях число введенных в уравнения переменных r и число степеней свободы остатков $\nu_{\text{ост}}$ должно быть одинаковым, ибо в противном случае сравнение регрессий осложняется [9]. Кроме того, уравнения должны быть статистически обоснованными при одном и том же уровне значимости p . Уравнения наилучшей полиномиальной регрессии для обеих моделей находили методом шагового анализа по программе STEPRI на ПЭВМ

Данные об облучении образцов графита в разных реакторах

Место облучения	$F_{кр}, 10^{21} \text{ см}^{-2}$	Точечная оценка $t_{обл}, ^\circ\text{C}$	$\varphi_n, 10^{14} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ ($E > 0,18 \text{ МэВ}$)	$\varphi_\gamma, 10^{14} \text{ МэВ} \cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ ($E > 0,2 \text{ МэВ}$)	ФСИ, н/МэВ	$\Sigma_s, \text{см}^{-1}$
СМ-2, канал 5	10,5	597	1,5	15	0,1	0,25
То же	6,5	782	2,4	24	0,1	0,25
БОР-60, ячейка Б-30	34,2	385	7,2	1,86	3,87	0,322
БОР-60, ячейки 30 и 24	37,3	385	6,1	1,51	4,04	0,327
МР, рабочий канал	17,5	362	0,8	6,15	0,13	0,22
То же	19,5	568	1,5	11,5	0,13	0,22
»-»	16,5	650	1,3	10	0,13	0,22
»-»	13,5	720	1,3	10	0,13	0,22

с использованием процедуры включения. При нахождении регрессий по моделям 1 и 2 задачи оценок $F_{кр}$ для графитовых блоков РБМК не ставилось. Исследовали лишь полезность привлечения рассматриваемой зонной модели повреждаемости для улучшения оценок отклика. Ввиду малого объема выборки данных анализ проводили в несколько этапов. Окончательный вид полученных уравнений следующий:

$$\text{модель 1: } \hat{F}_{кр} = 64 - 2,136 \cdot 10^{-5} T^2 - 3,333 \varphi_n - 13,837 \varphi_n^{-1} - 3,104 \text{ФСИ}^{-1}; \quad (5)$$

$$S_1 = 0,64 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}; F_{общ} = 512,6,$$

$$\text{модель 2: } \hat{F}_{кр} = 63,57 - 2,287 \cdot 10^{-5} T^2 - 9,994 \varphi_n \Sigma_s - 13,659 \varphi_n^{-1} - 3,171 \text{ФСИ}^{-1}; \quad (6)$$

$$S_2 = 0,44 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}; F_{общ} = 1057,$$

где $\hat{F}_{кр}$ — оценка критического флюенса нейтронов, 10^{21} см^{-2} ; T — температура облучения, $^\circ\text{C}$; φ_n — плотность потока нейтронов, $10^{14} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$; φ_γ — плотность потока энергии γ -излучения, $10^{14} \text{ МэВ} \cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$, $E_\gamma > 0,2 \text{ МэВ}$; Σ_s — макроскопическое сечение упругого рассеяния, см^{-1} ; S_j — среднеквадратичные значения остатков, $j = 1, 2$; $F_{общ}$ — общий критерий для проверки нулевой гипотезы одновременно для всех коэффициентов разложения $H_0: \beta_1 = \dots, \beta_m = 0$; $F_{IN} = F_{табл}^p = 10,13$ — критерий Фишера для включения переменной в уравнение, равный табличному значению при $p = 0,05$, $\nu_{ост} = 3$.

На основании результатов (5) и (6) можно сделать вывод о том, что включение в модель радиационного повреждения материалов при облучении Σ_s согласно уравнению (4) увеличивает эффективность оценки.

Таким образом, на основе зонной теории повреждаемости материалов при реакторном облучении получено выражение для воздействующего на дефекты в зонах смещения эффективного среднего интегрального потока γ -квантов. Этот поток зависит от некоторой функции и обратно пропорционален объему зоны, макроскопическому сечению упругого рассеяния нейтронов и составу излучения.

Методом анализа регрессий, полученных на основе экспериментальных данных о критическом флюенсе нейтронов для графита ГР-280, установлена статистическая значимость влияния эффективного среднего интегрального потока энергии γ -излучения. Показано, что при введении в матрицу данных дополнительно Σ_s и его включения в модель средняя статистическая ошибка оценки критического флюенса нейтронов

графита при всех прочих равных условиях уменьшается с $0,64 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ до $0,44 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$. Кроме того, расширяется физический смысл фактора состава излучения, который, как выясняется, является одним из сомножителей выражения для эффективного среднего интегрального потока γ -квантов.

Следует отметить, что в работах [1—3] было впервые обращено внимание на плотность потока γ -излучения как на важный фактор реакторного повреждения материалов. Это привело к обнаружению эффекта радиационного γ -отжига. Позже удалось установить влияние еще одного важного параметра условий облучения, а именно отношения плотностей потоков нейтронного и γ -излучения — фактора состава излучения, служащего мерой, с одной стороны, скорости создания дефектов, с другой, интенсивности их преобразования за счет γ -радиационного отжига. На практике этот параметр оказался одним из решающих при рассмотрении достижения графитом критического флюенса нейтронов [6].

В связи с полученными в настоящей работе результатами можно полагать, что теперь в радиационном материаловедении появляются аргументы для учета еще одной переменной, а именно эффективного среднего интегрального потока γ -квантов. Однако в этом случае целесообразно продолжить исследования по обоснованию его использования в качестве еще одного фактора, влияющего на свойства материалов при облучении. При проведении работ в этом направлении желательно использовать результаты облучения не только графита, но и других материалов, в частности, корпусной стали и алмаза, имея в виду, что последний часто используется в промышленных экспериментах по облучению в качестве универсального датчика сопровождения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Карпухин В.И., Чугунов О.К. Влияние реакторного γ -излучения на радиационный отжиг дефектов: Препринт ИАЭ-1649, 1968. 38 с.
2. Nikolaenko V.A., Gordeev V.G., Karpukhin V.I. Effect of gamma-irradiation on defect annealing in diamond. — Rad. Eff., 1996, v. 139, p. 173—182.
3. Николаенко В.А., Карпухин В.И., Гордеев В.Г. Влияние γ -излучения на кристаллические материалы при облучении в реакторе. — Атомная энергия, 1994, т. 77, вып. 3, с. 186—189.
4. Конобеевский С.Т. Действие облучения на материалы. М: Атомиздат, 1967. 400 с.
5. Николаенко В.А., Карпухин В.И. Измерение температуры с помощью облученных материалов. М: Энергоатомиздат, 1986. 121 с.
6. Николаенко В.А., Платонов П.А., Карпухин В.И. и др. Влияние состава излучения на радиационную повреждаемость графита. — Атомная энергия, 1999, т. 87, вып. 1, с. 24—28.
7. Сборник нейтронно-физических характеристик каналов облучения реактора СМ. Димитровград, ГНЦ РФ — НИИАР, 1996, № 6165.
8. Телин А.И., Рязанов Д.К., Маркина Н.В., Гаджиев Г.И. Экспериментальное изучение пространственно-энергетического распределения нейтронов в реакторе БОР-60: Препринт НИИАР-1 (853), 1996.
9. Себер Дж. Линейный регрессионный анализ. Пер. с англ. под ред. М.Ю. Малютова. М: Мир, 1980. 456 с.

Поступила в Редакцию 9.08.2000

УДК 541.15+621.039.577

КРАЕВОЙ ЭФФЕКТ ПРИ РАДИОЛИЗЕ ТЕПЛОНОСИТЕЛЯ В АКТИВНОЙ ЗОНЕ ВВЭР

Архипов О.П. (ОКБ «Гидропресс»),
Кабакчи С.А. (ГНЦ РФ — НИФХИ им. Л.Я. Карпова)

Одним из показателей водно-химического режима теплоносителя первого контура реакторной установки с ВВЭР является содержание в нем окислителей. К окислителям относятся кислород как попадающий в контур с питательной водой, так и образующийся при радиоллизе теплоносителя, радиолитический пероксид водорода, гидропер-