

DOI: 10.53403/9785951505156_2022_162

Нейтронно-активационный анализ кандидатных материалов ТЯР в тепловом спектре реактора ИР-8

**Н. П. Бобырь, В. Н. Кочкин, А. А. Решетников,
Ю. Е. Песня, Н. В. Паль, К. Б. Казенов**

НИЦ «Курчатовский институт», Москва

Bobyry_NP@nrcki.ru

Проведена оценка возможностей реактора ИР-8 (НИЦ «Курчатовский институт») для облучения перспективных материалов термоядерной энергетики. На первом этапе выполнен нейтронно-активационный анализ исследуемых образцов после их облучения в поле преимущественно тепловых нейтронов с целью определения основных радиоактивных изотопов, скорости спада их активности и возможного исключения таких материалов из программы дальнейших исследований. Облучение проводилось в вертикальном канале реактора ИР-8. Для этого предварительно был проведен расчет поля нейтронов, изготовлена ампула для загрузки образцов, проведен анализ активации образцов.

Результаты работы будут использованы при подготовке последующих облучений в более жестком спектре нейтронов, в том числе длительных облучений для наработки дефектов структуры.

Введение

В настоящее время важным проектом в области термоядерной энергетики является международный экспериментальный термоядерный реактор ИТЭР [1]. Кроме того, в России прорабатывается концепция гибридного реактора синтез/деление, ключевой частью которого является термоядерный источник нейтронов (ТИН) на основе токамака [2]. Внутри вакуумной камеры токамака могут быть использованы только материалы определенного типа: бериллий, вольфрам и его сплавы, сплав CuCrZr, легированная сталь. Применение графита в перспективных токамаках-реакторах ограничено из-за потенциально

большого захвата трития в этот материал и высокого коэффициента распыления, хотя в некоторых современных установках он все еще используется. Во время работы реактора все материалы будут подвержены воздействию нейтронов различной энергии, но преимущественно быстрых. В реакторе ИТЭР ожидаемые нейтронные повреждения материалов первой стенки будут достигать 3–4 с.н.а., а в перспективных установках ДЕМО – превышать 10 с.н.а.

Облучение образцов конструкционных материалов с целью формирования дефектной структуры и исследования ее влияния на свойства материалов является важной материаловедческой задачей, которая решается как при подборе новых кандидатных материалов для вновь разрабатываемых установок, так и при исследованиях материалов, применяемых в эксплуатирующихся установках. Формирование дефектной структуры в исследуемых материалах можно выполнять как при облучении образцов на ускорителях, так и в ядерных реакторах. Зачастую возможностей ускорителя недостаточно для проводимых исследований. Например, в случае исследования массивных образцов применение заряженных частиц не позволяет создать равномерное распределение дефектов по объему, что вполне реализуемо при облучении в поле нейтронов.

Одной из важнейших задач для освоения термоядерной энергии является экспериментальное исследование влияния дефектов структуры, создаваемых нейтронами, на захват изотопов водорода. Подобные исследования являются довольно редкими, так как требуют не только источника нейтронов, позволяющего проводить длительные облучения, но и особенного обращения с образцами после облучения, в частности специфических методов исследования, принимающих во внимание активацию материалов [3]. Следует учитывать, что исследование захвата и распределения изотопов водорода в облученных материалах не является стандартной задачей радиационного материаловедения и обладает определенной спецификой. Применение стандартных методов исследования взаимодействия дейтерия и трития (метод ядерных реакций, метод термодесорбционной спектроскопии, радиолюминография, бета-стимулированная рентгеновская спектроскопия, ионизационные камеры) с облученными образцами материалов возможно либо в специально сконструированных для этих задач камерах с применением адаптированных методик, либо после существенного спада наведенной активности. На текущий момент наиболее системное исследование влияния нейтронного облучения на перспективные материалы термоядерных реакторов (ТЯР) и захват изотопов водорода в них представлено в цикле работ, проводимых последние 40 лет совместно группами ученых из Японии и США [4].

Исследования материалов в нейтронном поле, максимально приближенном к термоядерному, в данный момент невозможно из-за отсутствия действующих реакторных установок с таким спектром. Уже более 20 лет идет проект по созданию специализированного ускорителя IFMIF (International Fusion Materials Irradiation Facility – Международная установка для облучения термоядерных материалов) для проведения таких материаловедческих исследований [5]. На сегодняшний день наиболее близким к термоядерному является спектр реакторов на быстрых нейтронах [6]. Несмотря на то, что каждый

реактор обладает своим уникальным спектром, при сравнении спектров БН и ТЯР можно выделить два ключевых отличия: 1) в спектре ТЯР присутствует существенный пик в области 14 МэВ, составляющий до половины всех нейтронов; 2) в спектре ТЯР почти отсутствуют холодные и тепловые нейтроны, хотя это будет зависеть от материалов, размещенных в бланкете. Таким образом, при облучениях материалов ТЯР даже в реакторах типа БН невозможно избежать воздействия нейтронов с низкими энергиями на материалы, что будет приводить к изменениям изотопного состава элементов и активации материалов, и это необходимо учитывать при проведении последующих экспериментов и обращении с экспериментальными образцами. Кроме того, в будущих ТЯР материалы будут облучаться в том числе и нейтронами тепловых энергий, хотя доля их будет очень мала. Отдельной проблемой корректного сравнения облучения материалов в ядерных и термоядерных реакторах является существенное отличие в наработке гелия и водорода [4, 7].

Схема проведения подобных экспериментов по исследованию влияния дефектов структуры, создаваемых нейтронами, на захват изотопов водорода в общем виде может быть представлена в виде следующих ключевых этапов.

1. Проведение нейтронно-активационного анализа (НАА) образцов исследуемых материалов в выбранном канале реактора. Этап включает в себя предварительные оценки нейтронных полей в выбранном месте реактора, кратковременное облучение ампулы с образцами, определение экспериментальных значений нейтронного потока и дозы по индикаторам, измерение активности образцов. В ходе такого кратковременного облучения (минуты, десятки минут) образцы не успевают сильно активироваться, но этого достаточно, чтобы определить все радиоактивные элементы, появляющиеся в исследуемых материалах.

2. Расчет времени долгосрочного облучения на основе полученных данных, определение уровня и скорости спада наведенной активности, расчет дозы радиационных повреждений.

3. Проведение долгосрочного облучения в выбранном канале реактора с целью наработки дефектов структуры.

4. Выдержка исследуемых образцов для спада наведенной активности до приемлемого уровня.

5. Исследования структуры образцов микроскопическими методами; прочие стандартные материаловедческие исследования (при необходимости).

6. Насыщение образцов материалов дейтерием/тритием из газа/плазмы.

7. Проведение исследований захвата дейтерия/трития в образцы с применением различных методов.

В настоящей работе для облучения перспективных материалов термоядерной энергетики использовался реактор ИР-8 [8], располагающийся на территории НИЦ «Курчатовский институт». В зависимости от выбранного канала для облучения доля быстрых нейтронов в спектре может достигать 50 %.

Целью первого этапа данной работы являлось проведение НАА образцов перспективных материалов ТЯР отечественного производства для определения основных радиоактивных изотопов, скорости спада их активности и возможного исключения таких материалов из программы дальнейших исследований. В случае обнаружения существенной наработки какого-либо долгоживу-

щего изотопа в исследуемых материалах уже на этом этапе может быть сделан вывод о невозможности проведения последующих исследований захвата дейтерия/трития в такие материалы в связи с очень долгим ожиданием спада наведенной активности.

Облучению в поле тепловых нейтронов при потоке $1,8 \cdot 10^{16}$ нейтр./($\text{м}^2 \cdot \text{с}$) были подвергнуты следующие кандидатные материалы ТЯР: вольфрам и сплавы вольфрама с рением, молибденом, танталом, ферритно-мартенситная сталь с быстрым спадом наведенной активности ЕК181 (Rusfer), бронза Cu1Cr0,1Zr , сплав V-4Ti-4Cr . Доля быстрых нейтронов составила менее 1 %.

Реактор ИР-8 как инструмент для исследования радиационно-стимулированных процессов в конструкционных материалах

Реактор ИР-8 [8] – исследовательский реактор бассейнового типа с использованием обычной воды в качестве замедлителя, теплоносителя и верхней защиты.

При проектировании реактора ИР-8 ставилась задача обеспечить высокую плотность потока тепловых нейтронов в геометрически большой области отражателя, а также достаточно большой плотности потока нейтронов в активной зоне. Таким образом, проект базировался на следующих принципах:

- в зоне использованы тепловыделяющие сборки (ТВС) с высоким коэффициентом размножения и малой длиной миграции нейтронов с целью получения малых размеров активной зоны и большей утечки нейтронов в отражатель;

- отражатель должен иметь большую длину миграции нейтронов, что позволяет обеспечить достаточно широкий максимум плотности потока тепловых нейтронов в отражателе и высокий уровень плотности потока тепловых нейтронов в горизонтальных каналах.

Активная зона и отражатель расположены внутри корпуса и установлены на опорную решетку. Корпус и опорная решетка, на которой установлены блоки отражателя и ТВС, расположены вблизи дна бассейна реактора глубиной 11 м, заполненного водой. Облицовкой бассейна является бак из нержавеющей стали, размещенный внутри старого алюминиевого бака реактора ИРТ (бывшей облицовки). Пространство между внешним алюминиевым баком и внутренним стальным баком заполнено обычным бетоном. Глубина нового бака 11 м. Толщина стенки нижней секции бака 10 мм, остальных – 6 мм.

Активная зона реактора ИР-8 (рис. 1) состоит из шестнадцати ТВС ИРТ-3М с твэлами трубчатого типа квадратного сечения. Количество твэлов в ТВС 6 или 4. В основном используются 6-трубные ТВС. В угловые ячейки могут быть установлены 4-трубные ТВС.

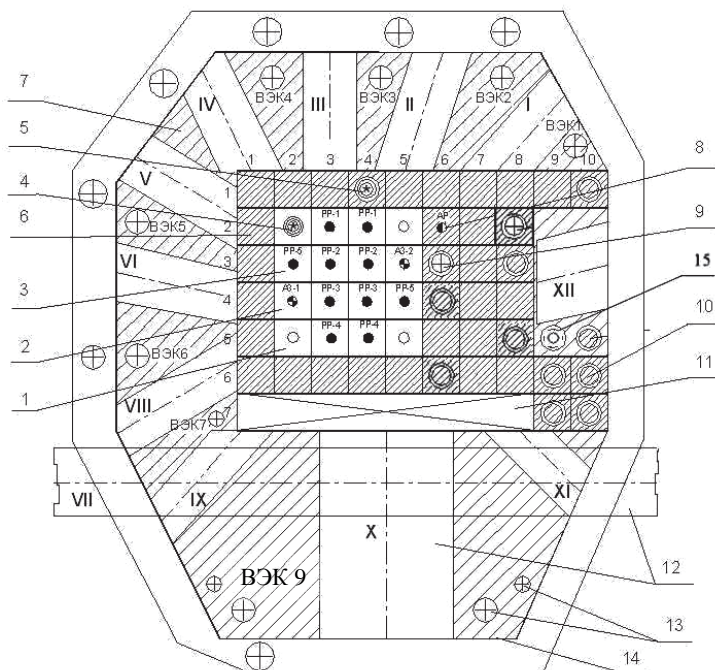


Рис. 1. Поперечное сечение активной зоны и отражателя реактора ИР-8:

1 – 6-трубная ТВС типа ИРТ-3М; 2 – 6-трубная ТВС типа ИРТ-3М с каналом для стержня аварийной защиты (АЗ); 3 – 6-трубная ТВС типа ИРТ-3М с каналом для стержня компенсации реактивности (РР); 4 – 4-трубная ТВС типа ИРТ-3М с ампульным устройством (АУ); 5 – бериллиевый блок 69×69 мм с АУ; 6 – бериллиевый блок 69×69 мм; 7 – бериллиевый блок; 8 – бериллиевый блок 69×69 мм с каналом для стержня автоматического регулятора (АР); 9 – бериллиевый блок с отверстием Ø48 мм и А1 трубой Ø45×1,5 мм с водой; 10 – бериллиевые блоки с пробками Ø44 мм; 11 – свинцовый щит; 12 – горизонтальные экспериментальные каналы; 13 – отверстия для экспериментальных каналов Ø25 и 45 мм; 14 – корпус реактора; 15 – канал с устройством облучения конструкционных материалов

Отражатель состоит из двух частей: внутренней, образованной из сменных бериллиевых блоков квадратного сечения (69×69 мм), и наружной, состоящей из призматических бериллиевых блоков с отверстиями под вертикальные и горизонтальные каналы («стационарный отражатель»). Вся кладка реактора помещена в алюминиевый корпус. Сменные бериллиевые блоки двух типов – сплошные и с бериллиевой пробкой. В сменные бериллиевые блоки вместо бериллиевой пробки могут устанавливаться экспериментальные каналы с устройствами для облучения.

В качестве материала отражателя в реакторе ИР-8 используется металлический бериллий. В реакторе ИР-8 толщина отражателя составляет 30 см, что может рассматриваться как физически бесконечная толщина отражателя. Применение бериллия позволяет значительно уменьшить объем активной зоны, а также получить более широкое значение максимума потока тепловых нейтронов.

Реактор ИР-8 является высокоэффективным нейтронным источником и, наряду с выполнением ряда других задач, может обеспечивать облучение конструкционных материалов в различных условиях (при заданных температурах, различных энергетических значениях спектрах и плотностях потока нейтронов).

В реакторе имеются 12 горизонтальных каналов:

- 9 радиальных каналов $\text{Ø}100$ мм;
- 1 радиальный канал $\text{Ø}230$ мм;
- 1 тангенциальный канал $\text{Ø}150$ мм;
- 1 криволинейный канал $\text{Ø}150$ мм для пучка ультрахолодных нейтронов.

Для снижения депрессии потока нейтронов на торце горизонтальных каналов в пределах отражателя каналы (кроме канала УХН) изготовлены из циркония, а за пределами бериллиевого отражателя – из нержавеющей стали. Циркониевая часть каждого канала соединяется со стальной частью с помощью переходника *цирконий – нержавеющая сталь*.

В конструкции реактора ИР-8 для облучения топлива, конструкционных материалов и наработки радиоизотопов предусмотрено большое количество вертикальных экспериментальных каналов:

- до 4 каналов (ампул) $\text{Ø}28$ или 41 мм, установленных в 6-трубные или 4-трубные ТВС;
- до 8 каналов $\text{Ø}45$ мм в сменных бериллиевых блоках;
- до 11 каналов в стационарном отражателе;
- до 6 каналов $\text{Ø}54$ мм за пределами алюминиевого корпуса.

Оценки характеристик поля нейтронов и анализ мест, пригодных для облучения

Атлас нейтронных полей реактора ИР-8 позволяет сделать предварительную оценку мест, пригодных для облучения образцов конструкционных материалов нейтронами с определенной интенсивностью потока [9, 10]. Для получения высоких доз облучения при высоких потоках нейтронов пригодны либо каналы в ТВС внутри активной зоны, либо вертикальные каналы в отражателях. Конкретные места облучения следует определять с помощью детального расчетно-экспериментального анализа после установления целевых дозовых характеристик и требований к энергетическому спектру нейтронов, которые будут воздействовать на образцы конструкционных материалов.

Однако перед проведением длительного и весьма дорогостоящего облучения образцов конструкционных материалов с целью формирования в них дефектной структуры следует решить ряд важных задач, имеющих практический и прикладной характер. Одной из таких задач является анализ наведенной активности образцов после облучения. Это необходимо для того, чтобы заранее, до извлечения образцов из реактора понимать, в каких условиях с ними придется работать и проводить исследования, потребуется ли исполь-

зование специальных материаловедческих защитных камер, какой срок выдержки образцов после облучения необходим для оптимального снижения наведенной активности.

Поставленная задача может быть решена посредством проведения серии краткосрочных облучений в различных каналах реактора ИР-8, измерения наведенной активности образцов, сравнения ее с расчетными значениями и, в случае хорошего соответствия расчета и эксперимента, выполнения расчетного прогноза активации образцов конструкционных материалов после длительного облучения с целью формирования дефектной структуры.

В рамках настоящей работы было выполнено предварительное краткосрочное облучение образцов с целью отработки методик облучения, проведения НАА и исследования остаточной наведенной радиоактивности образцов.

Было принято решение, что перед проведением облучения в каналах ТВС внутри активной зоны или первом ряду отражателя будет полезно провести предварительное облучение в более «мягком» тепловом спектре поля нейтронов. Решение было принято в связи с тем, что все исследуемые материалы, кроме сталей и сплава ванадия, не являются популярными для проведения таких исследований, а вольфрам с легирующими добавками тантала, рения и молибдена только недавно разработан. Данные НАА после облучения тепловыми нейтронами даже с небольшой долей быстрых нейтронов позволят на раннем этапе выявить материалы, которые будут сильно активироваться при длительных облучениях и, возможно, исключить их из программы последующих облучений. Поэтому в рамках выполнения предварительного облучения кандидатных материалов ТЯР на первом этапе был выбран вертикальный канал ВЭК 9.

Облучение в реакторе ИР-8

Облучение ампульного устройства (АУ) с образцами кандидатных материалов ТЯР выполнялось в течение 20 минут на уровне центра активной зоны (АЗ) в вертикальном канале ВЭК 9.

Схема АУ представлена на рис. 2.

АУ представляло собой алюминиевую цепочку с размещенным на конце алюминиевым контейнером из сплава АД1, в центре которого с помощью дистанцирующих дисков размещалась алюминиевая герметичная капсула, изготовленная также из сплава АД1, для уменьшения возможного поверхностного загрязнения образцов. Внутри герметичной капсулы находились исследуемые образцы кандидатных материалов ТЯР, разделенные между собой алюминиевой фольгой. С целью учета высотного градиента нейтронного поля и мониторинга нейтронного поля с двух сторон снизу и сверху внутри герметичной капсулы располагались наборы нейтронно-активационных индикаторов (НАИ). Набор НАИ состоял из Со толщиной 30 мкм и фольги никеля естественного обогащения толщиной 100 мкм; некоторые характеристики индикаторов приведены в табл. 1. Список облученных образцов представлен в табл. 2.

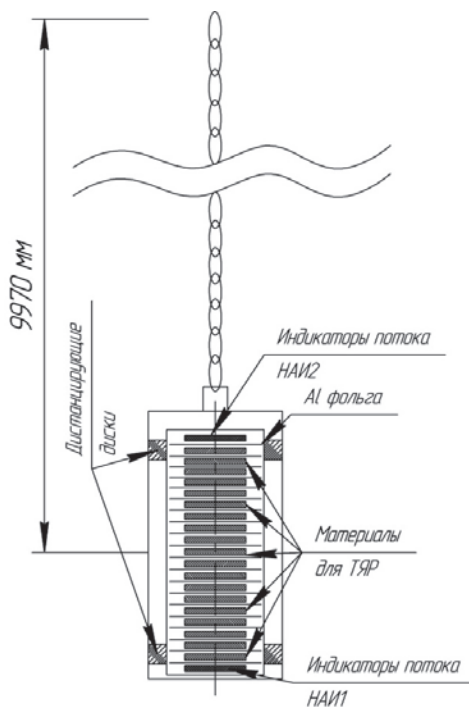


Рис. 2. Схема ампульного устройства

Таблица 1

Характеристики нейтронно-активационных индикаторов

| Индикатор | Пороговая реакция | Период полураспада | Энергия излучения E_{γ} , кэВ | Материал индикатора |
|-----------|--|--------------------|--------------------------------------|----------------------------------|
| Co | $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$ | 5,27 лет | 1173,2 1332,5 | Естественный Co, чистота 99,92 % |
| Ni | $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ | 70,86 суток | 810,76 | Естественный Ni, чистота 99,8 % |

По окончании облучения АУ извлекалось из активной зоны АЗ реактора ИР-8 и выдерживалось в течение 24 ч для уменьшения мощности дозы и снижения дозовой нагрузки на персонал. По окончании выдержки АУ доставлялось в исследовательскую лабораторию.

Таблица 2

Образцы для проведения НАА

| Материал, масс. % | Размер, мм ³ | Масса, г |
|---|-------------------------|----------|
| V-4Ti-4Cr | 0,2×10,3×10,6 | 0,12 |
| EK181 (Rusfer) | 1,1×10,1×10,1 | 0,79 |
| Eurofer | 1×10,1×10,1 | 0,76 |
| Cu ₁ Cr _{0,1} Zr (НИИЭФА) | 0,5×9,8×10,3 | 0,42 |
| Cu ₁ Cr _{0,1} Zr (МЕТАПРОМ) | 1×11×11,3 | 0,91 |
| Cu ₁ Cr _{0,1} Zr МКМ | 1×10,5×10,8 | 0,89 |
| Cu ₁ Cr _{0,1} Zr TDM | 1,15×8,3×11 | 0,87 |
| W(Тула) | 0,9×10×10 | 0,92 |
| W(Goodfellow) | 1,00×9,8×9,9 | 1,59 |
| W _{mono} | 0,5×9,9×9,9 | 1,78 |
| W1Re | 0,55×10×10 | 1,03 |
| W3Re | 0,54×10×10 | 0,96 |
| W5Re | 0,55×10×10 | 0,98 |
| W1Ta | 0,67×10×10 | 1,09 |
| W3Ta | 0,55×9,9×9,9 | 0,95 |
| W5Ta | 0,57×10×10 | 0,98 |
| W0,5Mo | 0,6×10×10 | 1,03 |
| W1,5Mo | 0,62×10×10 | 0,69 |

Измерения активности облученных НАИ

Извлечение исследуемых образцов кандидатных материалов ТЯР и НАИ выполнялось в вытяжном шкафу за локальной свинцовой защитой. После извлечения образцы проходили процедуру очистки от возможных поверхностных загрязнений в спирте и дистиллированной воде, а затем помещались в индивидуальные промаркированные упаковки.

Измерения абсолютной активности НАИ, определение радионуклидного состава, а также измерения активности обнаруженных радионуклидов в исследуемых материалах проводились с помощью гамма-спектрометрического оборудования компаний ORTEC и «Canberra». Спектрометрическое оборудование ORTEC состоит из коаксиального детектора с кристаллом из особо чистого германия HPGe р-типа GEM10 и многоканального анализатора ORTEC DSPEC Jg 2.0. Спектрометрическое оборудование компании «Canberra» состоит из планарного детектора с кристаллом из особо чистого Ge n-типа BeGe-50 с ультратонким карбоновым окном и 32-канального анализатора Canberra Lynx™. Все установки имеют действующие свидетельства о проверке. Обработка полученных спектров выполнялась с помощью программы обработки гамма-спектров LCPM SpectralineGP. Для измерения активности осуществле-

на калибровка гамма-спектрометров по образцовым спектрометрическим гамма-источникам.

Измерения абсолютных активностей индикаторов кобальта проводились по изотопу ^{60}Co , нарабатываемому по ядерной реакции $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$. Измерения абсолютных активностей НАИ никеля проводились по изотопу ^{58}Co , нарабатываемому по ядерной реакции $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$. Измерения кобальта и никеля выполнялись в соответствии с аттестованной методикой выполнения измерений.

Удельная активность $A_{\text{кон}}^{\text{НАИ}}$ (Бк/ядро) НАИ на момент окончания облучения определялась по формуле

$$A_{\text{кон}}^{\text{НАИ}} = \frac{S_{\text{фп}}}{\Delta t_{\text{м}} \cdot \text{eff} \cdot P \cdot N} e^{\lambda(t_{\text{м}} - t_{\text{кон}})}, \quad (1)$$

где $S_{\text{фп}}$ – измеренная площадь фотопика; $\Delta t_{\text{м}}$ – длительность измерения; eff – эффективность измерения, определенная по ОСГИ; P – масса НАИ; N – концентрация ядер изотопа-мишени на 1 г НАИ; λ – постоянная распада измеряемого изотопа; $t_{\text{м}}$ – время окончания измерения; $t_{\text{кон}}$ – время окончания облучения.

Результаты измерения удельной активности НАИ приведены в табл. 3. Расширенная стандартная неопределенность удельной активности НАИ, определенная по вышеизложенному методу, составляет 4,2 %.

Таблица 3

Результаты измерения удельной активности НАИ

| НАИ | НАИ 1 Co | НАИ 2 Co | НАИ 1 Ni | НАИ 2 Ni |
|---------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| A , Бк/ядро | $3,63 \cdot 10^{-16}$ | $3,07 \cdot 10^{-16}$ | $8,13 \cdot 10^{-21}$ | $7,02 \cdot 10^{-21}$ |

На основе измеренных удельных активностей НАИ были получены плотность потока нейтронов ($E < 0,025$ МэВ) и плотность потока быстрых нейтронов ($E > 2,5$ МэВ), усредненные по всему периоду облучения, которые рассчитываются по формуле

$$\varphi_i^{\text{exp}} = \frac{A_{\text{кон}}^{\text{НАИ}}}{\sigma_i K}, \quad (2)$$

где $A_{\text{кон}}^{\text{НАИ}}$ [Бк/ядро] – измеренная удельная активность изотопа мишени в НАИ на момент завершения облучения; σ_i [барн] – эффективное сечение реакции (37,2 для НАИ Co, 0,101 для НАИ Ni); K – фактор, учитывающий наработку и распад радионуклида в процессе облучения.

Полученные значения экспериментальной плотности потока представлены в табл. 4, мощность реактора в процессе облучения была постоянна и составляла ~5,5 МВт.

По результатам расчета скоростей реакций видно наличие градиента по капсуле с образцами.

Плотности потока использовались для расчета дозы нейтронов, полученной образцами за время облучения по формуле (3). Результаты расчета дозы тепловых и быстрых нейтронов, усредненные по контейнеру, представлены в табл. 4:

$$F_i^{\text{exp}} = \varphi_i^{\text{exp}} \Delta T, \quad (3)$$

где φ_i^{exp} – плотность потока нейтронов по НАИ (средняя по ампуле), нейтр./м²·с; ΔT [с] – время облучения.

Таблица 4

Полученные значения плотностей потока нейтронов по комплектам НАИ и итоговая доза нейтронов

| НАИ | НАИ 1 | НАИ 2 | НАИ 1/НАИ 2 |
|--|----------------------|----------------------|-------------|
| $\varphi_{\text{Co}}, \text{M}^{-2} \cdot \text{c}^{-1}$ | $1,95 \cdot 10^{16}$ | $1,65 \cdot 10^{16}$ | 18,3 % |
| $\varphi_{\text{Ni}}, \text{M}^{-2} \cdot \text{c}^{-1}$ | $5,90 \cdot 10^{13}$ | $5,13 \cdot 10^{13}$ | 15,0 % |
| $F_{\text{тепл}}, \text{M}^{-2}$ | $2,16 \cdot 10^{19}$ | | |
| $F_{\text{быстр}}, \text{M}^{-2}$ | $6,62 \cdot 10^{16}$ | | |

Экспериментальные значения плотности потока нейтронов, усредненной по контейнеру, представлены в табл. 5. Таким образом, доля быстрых нейтронов в ходе проведенного облучения составила менее 1 %. Экспериментальные значения показывают хорошую сходимость расчета и эксперимента в области тепловых нейтронов и значительное расхождение расчетных и экспериментальных данных по потоку быстрых нейтронов, которое может быть обусловлено рядом особенностей расчетной модели и методики расчета скоростей реакций.

Таблица 5

Экспериментальные плотности потока

| Поток | $\varphi_{\text{exp}}, \text{нейтр.}/(\text{M}^2 \cdot \text{c})$ |
|--------------------------|---|
| $\varphi_{\text{тепл}}$ | $1,8 \cdot 10^{16}$ |
| $\varphi_{\text{быстр}}$ | $5,5 \cdot 10^{13}$ |

Измерения активности облученных образцов

Удельная активность $A_{\text{кон}}^{\text{m}}$ (Бк) обнаруженных радионуклидов в кандидатных материалах ТЯР на момент окончания облучения определялась по формуле

$$A_{\text{кон}}^m = \frac{S_{\text{фп}}}{\Delta t_m \cdot \text{eff} \cdot M} e^{\lambda(t_m - t_{\text{кон}})}, \quad (4)$$

M [г] – масса образца.

Результаты измерения активности радионуклидов в образцах представлены в табл. 6. Для каждого обнаруженного изотопа приведена активность для трех различных времен: момент 1-го измерения, спустя 1 месяц, спустя 3 месяца. Кроме того, в табл. 6 приведена минимальная значимая активность (МЗА) для каждого изотопа.

Поскольку облучение проводилось в поле преимущественно тепловых нейтронов (с энергией менее 0,025 МэВ), основной реакцией, в результате которой нарабатывались радионуклиды в образцах, была реакция (n, γ) . Соответственно, в сплавах на основе вольфрама в основном нарабатывались изотопы ^{185}W ($T_{1/2} = 75,1$ сут.) и ^{187}W ($T_{1/2} = 1$ сут.). Для сплавов на основе железа основным изотопом являлся ^{59}Fe с периодом полураспада 44 сут.

В то же время практически все материалы на основе вольфрама, за исключением $\text{W}_{\text{моно}}$, имеют в своем составе тантал. Наличие этого элемента приводит к наработке значительного количества гамма-активного изотопа ^{182}Ta по реакции $^{181}\text{Ta}(n, \gamma)^{182}\text{Ta}$ ($T_{1/2} = 115$ суток). Присутствие данного изотопа затрудняет проведение работ с исследуемыми материалами ввиду существенного увеличения активности образцов. Особенно это критично для сплавов, в которых содержание тантала более 1 %. По этой причине уже после предварительных экспериментов можно уверенно утверждать, что работать с такими сплавами после их длительного облучения в реакторе даже после года выдержки можно только в специализированной лаборатории с применением специальных радиационно-защитных камер или боксов.

В сплавах вольфрама, содержащих в составе рений, под облучением нарабатывается радионуклид ^{186}Re , однако ввиду относительно малого периода полураспада ($T_{1/2} = 3,7$ суток) его вклад в общую активность образцов в среднесрочной перспективе можно не учитывать.

В образцах, содержащих хром (V-4Ti-4Cr, Cu1Cr0,1Zr, EK181(Rusfer), Eurofer) наблюдается активное образование изотопа ^{51}Cr ($T_{1/2} = 27$ сут.) по реакции $^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$. Несмотря на существенное количество нарабатываемого изотопа ^{51}Cr , выдержка образца в течение 3 месяцев после облучения приводит примерно к 10-кратному снижению активности ^{51}Cr , а через 10 месяцев его активность снизится более чем в 1000 раз.

Наличие в образцах стали хрома и тантала выделяют их с точки зрения большей наведенной активности и, как следствие, сложности в работе по исследованию данных материалов после облучения.

Во всех сплавах на основе меди обнаружены следовые количества изотопа $^{110\text{m}}\text{Ag}$, нарабатываемого по реакции $^{109}\text{Ag}(n, \gamma)^{110\text{m}}\text{Ag}$ с периодом полураспада 249,7 дня, а учитывая существенное сечение данной реакции, равное ~90 барн, примесь серебра будет также вносить существенный вклад в наведенную активность этих образцов при увеличении длительности облучения. Для корректного прогноза наработки данного относительно долгоживущего изотопа требуется выполнение прецизионного химического анализа содержания серебра в изучаемых образцах.

Таблица 6

Результаты измерения удельной активности образцов

| Образец | Изотоп | A_0 , Бк | +1 месяц | +3 месяца | МЗА | Образец | Изотоп | A_0 , Бк | +1 месяц | +3 месяца | МЗА |
|-------------------------------|--------------------|-------------------|----------------------|-------------------|----------------|-------------------|-------------------|-------------------|----------------------|-----------------------|-------------------|
| V-4Ti-4Cr | ^{51}Cr | $2,33 \cdot 10^4$ | $1,10 \cdot 10^4$ | $2,45 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^7$ | W _{моно} | ^{187}W | $1,54 \cdot 10^7$ | $1,44 \cdot 10^{-2}$ | $1,01 \cdot 10^{-47}$ | $1 \cdot 10^6$ |
| ЕК181 (Rusfer) | ^{182}Ta | $9,57 \cdot 10^3$ | $7,98 \cdot 10^3$ | $5,56 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^4$ | | ^{185}W | $3,08 \cdot 10^4$ | $2,34 \cdot 10^4$ | $5,86 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^7$ |
| | ^{59}Fe | $1,09 \cdot 10^4$ | $6,85 \cdot 10^3$ | $2,69 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^6$ | W1Re | ^{186}Re | $1,34 \cdot 10^6$ | $4,99 \cdot 10^3$ | $3,58 \cdot 10^{-9}$ | $1 \cdot 10^6$ |
| | ^{51}Cr | $4,66 \cdot 10^5$ | $2,20 \cdot 10^5$ | $4,90 \cdot 10^4$ | $1 \cdot 10^7$ | | ^{187}W | $1,35 \cdot 10^7$ | $1,25 \cdot 10^{-2}$ | $8,79 \cdot 10^{-48}$ | $1 \cdot 10^6$ |
| Eurofer | ^{182}Ta | $1,08 \cdot 10^4$ | $8,99 \cdot 10^3$ | $6,25 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^4$ | W3Re | ^{182}Ta | Следы | Следы | Следы | $1 \cdot 10^4$ |
| | ^{59}Fe | $1,05 \cdot 10^4$ | $6,57 \cdot 10^3$ | $2,58 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^6$ | | ^{186}Re | $1,90 \cdot 10^6$ | $7,10 \cdot 10^3$ | $5,10 \cdot 10^{-9}$ | $1 \cdot 10^6$ |
| | ^{51}Cr | $3,51 \cdot 10^5$ | $1,66 \cdot 10^5$ | $3,69 \cdot 10^4$ | $1 \cdot 10^7$ | | ^{185}W | $3,53 \cdot 10^4$ | $2,67 \cdot 10^4$ | $6,70 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^7$ |
| | ^{60}Co | $9,19 \cdot 10^1$ | $9,09 \cdot 10^1$ | $8,90 \cdot 10^1$ | $1 \cdot 10^5$ | | ^{182}Ta | Следы | Следы | Следы | $1 \cdot 10^4$ |
| Cu1Cr0,1Zr (НИИ- ЭФА) | ^{51}Cr | $1,66 \cdot 10^4$ | $7,81 \cdot 10^3$ | $1,74 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^7$ | W5 % Re | ^{182}Ta | $3,40 \cdot 10^1$ | $2,83 \cdot 10^1$ | $1,14 \cdot 10^1$ | $1 \cdot 10^4$ |
| | ^{110m}Ag | Следы | Следы | Следы | $1 \cdot 10^6$ | | ^{186}Re | $6,45 \cdot 10^6$ | $2,40 \cdot 10^4$ | $1,72 \cdot 10^{-8}$ | $1 \cdot 10^6$ |
| Cu1Cr0,1Zr (МЕТА- ПРОМ) | ^{51}Cr | $3,36 \cdot 10^4$ | $1,59 \cdot 10^4$ | $3,53 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^7$ | | W1 % Ta | ^{185}W | $5,13 \cdot 10^5$ | $3,89 \cdot 10^5$ | $9,75 \cdot 10^4$ |
| | ^{110m}Ag | Следы | Следы | Следы | $1 \cdot 10^6$ | ^{182}Ta | | $8,10 \cdot 10^4$ | $6,76 \cdot 10^4$ | $2,73 \cdot 10^4$ | $1 \cdot 10^4$ |
| Cu1Cr0,1Zr МКМ | ^{51}Cr | $3,22 \cdot 10^4$ | $1,52 \cdot 10^4$ | $3,39 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^7$ | W3 % Ta | ^{185}W | $5,3 \cdot 10^4$ | $4,02 \cdot 10^4$ | $1,01 \cdot 10^4$ | $1 \cdot 10^7$ |
| | ^{110m}Ag | Следы | Следы | Следы | $1 \cdot 10^6$ | | ^{186}Re | $1,90 \cdot 10^6$ | $7,10 \cdot 10^3$ | $5,10 \cdot 10^{-9}$ | $1 \cdot 10^6$ |
| Cu1Cr0,1Zr TDM | ^{51}Cr | $3,07 \cdot 10^4$ | $1,45 \cdot 10^4$ | $3,23 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^7$ | W5 % Ta | ^{185}W | $3,53 \cdot 10^4$ | $2,67 \cdot 10^4$ | $6,70 \cdot 10^3$ | $1 \cdot 10^7$ |
| | ^{110m}Ag | 4,18 | 3,85 | 3,26 | $1 \cdot 10^6$ | | ^{182}Ta | Следы | Следы | Следы | $1 \cdot 10^4$ |
| W (Тула) | ^{187}W | $2,71 \cdot 10^7$ | $2,53 \cdot 10^{-7}$ | – | $1 \cdot 10^6$ | W0,5 % Mo | ^{182}Ta | $4,09 \cdot 10^5$ | $3,41 \cdot 10^5$ | $1,38 \cdot 10^5$ | $1 \cdot 10^4$ |
| | ^{185}W | $3,32 \cdot 10^5$ | $2,52 \cdot 10^5$ | $1,45 \cdot 10^5$ | $1 \cdot 10^7$ | | ^{182}Ta | $2,80 \cdot 10^1$ | $2,33 \cdot 10^1$ | 9,43 | $1 \cdot 10^4$ |
| W (Good- fellow) | ^{187}W | $2,85 \cdot 10^7$ | $2,65 \cdot 10^{-2}$ | – | $1 \cdot 10^6$ | W1,5 % Mo | ^{185}W | $7,22 \cdot 10^4$ | $5,48 \cdot 10^4$ | $1,37 \cdot 10^4$ | $1 \cdot 10^7$ |
| | ^{185}W | $2,30 \cdot 10^5$ | $1,74 \cdot 10^5$ | $1 \cdot 10^5$ | $1 \cdot 10^7$ | | ^{182}Ta | $2,06 \cdot 10^1$ | $1,72 \cdot 10^1$ | 6,94 | $1 \cdot 10^4$ |

Увеличение длительности облучения исследуемых образцов будет накладывать ограничения на исследования в обычной лаборатории. Необходима лицензия на работу с ионизирующими источниками, а также наличие помещений, соответствующих типу работ согласно СанПиН.

В табл. 7 приведены скорости реакций на одно ядро химических элементов в исследуемых материалах, а также отобранные по критерию периода полураспада продукта реакции более 10 дней, приведенные на 1 МВт мощности.

Таблица 7

Скорости реакций на 1 ядро,
приведенные на 1 МВт

| Реакция | RR, с ⁻¹ |
|-------------------------|------------------------|
| ⁵⁰ Cr (n,p) | 5,66·10 ⁻¹⁶ |
| ¹⁸¹ Ta (n,g) | 2,2·10 ⁻¹¹ |
| ¹⁸⁶ W (n,g) | 3,39·10 ⁻¹¹ |
| ¹⁸⁴ W (n,g) | 1,48·10 ⁻¹² |
| ¹⁸⁵ Re (n,g) | 1,02·10 ⁻¹⁰ |
| ⁵⁸ Fe (n,g) | 1,01·10 ⁻¹² |

Следующим этапом работ будет проведение НАА кандидатных материалов ТЯР после облучения в каналах ТВС внутри активной зоны реактора ИР-8 или первом ряду отражателей в максимально возможном потоке быстрых нейтронов. Причем образцы сплавов вольфрама с легирующей добавкой тантала будут исключены из программы дальнейших исследований. Будут проведены расчеты скорости наработки дефектов структуры, исходя из которых и будет рассчитываться время облучения.

После наработки дефектов структуры и спада наведенной активности планируется проведение исследования взаимодействия дейтерия/трития как из газовой фазы, так и при плазменном облучении с этими дефектами.

Заключение

1. Выполнен предварительный НАА образцов в вертикальном канале ВЭЖ 9 реактора ИР-8.

2. Определены плотность потока и доза преимущественно тепловых и быстрых нейтронов.

3. Определены радионуклиды, образующиеся в исследуемых образцах при облучении в низкоэнергетичном спектре нейтронов с долей быстрых нейтронов менее 1 %.

4. Показано, что длительные облучения образцов вольфрама с легирующей добавкой тантала приведут к существенной наработке изотопа ¹⁸²Ta и невозможности их последующих исследований при взаимодействии с изотопами водорода в разумные сроки. В связи с этим такие материалы будут исключены из дальнейшей программы исследований.

5. В сталях Rusfer и Eurofer наработка изотопа ^{182}Ta также будет основным фактором, ограничивающим дальнейшие исследования.

6. Во всех сплавах с медью обнаружены следовые включения серебра, которые при длительных облучениях могут привести к наработке $^{110\text{m}}\text{Ag}$ с периодом полураспада 249,7 суток.

На следующем этапе планируется облучения материалов в каналах ТВС внутри активной зоны реактора ИР-8 или первом ряду отражателей в более жестком спектре нейтронов.

Работа выполнена при поддержке НИЦ «Курчатовский институт» (приказ от 18.11.2021 г. № 2948).

Список литературы

1. International Thermonuclear Experimental Reactor [Electronic resource]. – [https:// www.iter.org](https://www.iter.org).
2. Kuteev B. V. et al. Development of DEMO-FNS tokamak for fusion and hybrid technologies // Nuclear Fusion. 2015. Vol. 55, N. 7. P. 073035.
3. Hatano Y., Shimada M., Alimov V. Kh. et al. Trapping of hydrogen isotopes in radiation defects formed in tungsten by neutron and ion irradiations // JNM. 2013. Vol. 438. P. 114–119.
4. Muroga T., Hatano Y., Clark D., Katoh Y. Characterization and qualification of neutron radiation effects – summary of Japan-USA joint projects for 40 years // JNM. 2022. Vol. 560. P. 153494.
5. Möslang A., IFMIF: the intense neutron source to qualify materials for fusion reactors // Comptes Rendus Physique. 2008. Vol. 9, Issue. 3–4. P. 457–468.
6. Колотов В. П. Теоретические и экспериментальные подходы к решению задач активационного анализа, гамма-спектрометрии и создания малоактивируемых материалов. Автореферат дисс. ... д-ра хим. наук. – М.: Институт геохимии и аналитической химии им. В. И. Вернадского, 2007.
7. Блохин Д. А., Чернов В. М., Блохин А. И Ядерное образование водорода и гелия в конструкционных материалах энергетических реакторов деления и термоядерного синтеза // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы. 2008. № 2(71). С. 112–122.
8. Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. 2017. Вып. 3. С. 1–76.
9. Яковлев В. В., Ерак Д. Ю., Абрамов А. Н. и др. Техника и методы испытаний конструкционных материалов на исследовательском реакторе ИР-8 // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. 2017. Вып. 3. С. 58–64.
10. Насонов В. А., Алексеев Н. И., Ерак Д. Ю. и др. Разработка расчетно-экспериментальных методик определения параметров полей нейтронов в реакторе ИР-8 РНЦ КИ для фундаментальных и прикладных исследований : препринт ИАЭ-6579/4, 2009.