

АНАЛИТИЧЕСКАЯ СХЕМА ДЕФЕКТООБРАЗОВАНИЯ В КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ РЕШЕТКЕ ГРАФИТА ПРИ РЕАКТОРНОМ ОБЛУЧЕНИИ

В.Н. Нестеров*, И.В. Шаманин*, Е.Г. Емец*, А.А. Цыганов,
С.Г. Котляревский**, А.О. Павлюк****

** Томский политехнический университет, г. Томск*

*** ФГУП Сибирский химический комбинат, г. Северск*



Разработана аналитическая схема процесса дефектообразования, описывающая временную динамику числа атомов, находящихся в узлах кристаллической решетки, точечных и сложных дефектов. На основе схемы составлена система дифференциальных уравнений. Анализ решения системы уравнений и экспериментальных данных по запасенной энергии (энергии Вигнера) для промышленных уран-графитовых реакторов, позволил определить зависимость постоянной рекомбинации точечных дефектов от температуры облучения. Проведено сравнение расчетной и экспериментальной зависимостей критического флюенса от температуры облучения, а также расчетной и экспериментальной асимптот зависимости энергии Вигнера от времени облучения графита.

СОСТОЯНИЕ ПРОБЛЕМЫ

В настоящее время актуальными являются задачи продления срока службы действующих уран-графитовых реакторов и вывода ядерных реакторов из эксплуатации. Решение этих задач требует корректных оценок срока службы реакторного графита и накопленной в нем запасенной энергии (энергии Вигнера).

Нейтронное облучение графита изменяет свойства графита вследствие нарушений структуры его кристаллической решетки. В процессе замедления энергия передается от нейтронов атомам углерода, которые могут быть смещены в кристаллической решетке относительно начального положения. Многие из этих смещенных (первично выбитых) атомов, обладая большой кинетической энергией, в свою очередь могут вызывать смещение других атомов, замедляя свое движение, и т.д. Например, нейтрон с энергией 2 МэВ может вызвать до 1900 смещений, теряя свою энергию до значения энергии теплового нейтрона. Для смещения одного атома в кристаллической решетке графита необходимо около 25 эВ. Многие смещенные атомы тотчас же возвращаются на вакантные места. Большое количество атомов занимает промежуточное положение, причем это могут быть как отдельные атомы, так и их группы. Они оказывают существенное влияние на многие свойства материала, значимость которого зависит от дозы и температуры облучения [1].

© В.Н. Нестеров, И.В. Шаманин, Е.Г. Емец, А.А. Цыганов, С.Г. Котляревский, А.О. Павлюк, 2008

Температура – один из основных факторов, влияющих на степень радиационных нарушений в структуре материалов [2]. Бомбардировка нейтронами приводит к образованию точечных дефектов, дальнейшая судьба которых определяется температурными условиями. Миграция дефектов к местам стоков, аннигиляция парных дефектов Френкеля, образование комплексов и другие диффузионные процессы связаны с температурой. Число первично выбитых атомов в момент взаимодействия излучения с веществом при низкой и высокой температуре практически одинаково, однако их подвижность при высокой температуре больше, т.е. они скорее аннигилируют. Это приводит к уменьшению концентрации дефектов и, следовательно, к меньшему изменению свойств при облучении.

В диапазоне температуры облучения 100–300°C уменьшение температуры облучения и плотности потока сопутствующего γ -излучения, благодаря снижению термического и радиационного γ -отжига, приводит к увеличению концентрации дефектов и, как следствие, к уменьшению критического флюенса нейтронов [3]. Критический флюенс – это флюенс быстрых нейтронов, при котором распухание поликристаллического графита компенсирует усадку. Его значение определяет срок службы реакторного графита и предельную концентрацию дефектов, т.к. при дальнейшем росте флюенса быстрых нейтронов резко ухудшаются теплофизические и прочностные свойства графита.

В более высоком диапазоне температур (выше 300°C) превалируют дефекты, намного более сложные, чем точечные, они мало влияют на параметры кристаллической решетки, но участвуют в формировании дополнительных базисных плоскостей в графите, необратимо изменяя форму кристаллитов графита [3].

В настоящее время исследования в области радиационного повреждения реакторного графита в основном носят экспериментальный характер.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

В работе поставлена цель аналитического описания процесса повреждения и восстановления кристаллической структуры реакторного графита.

При формулировке задачи необходимо выделить 3 вида атомов в структуре графита:

- 1) атомы, находящиеся в кристаллической решетке (их концентрацию обозначим N);
- 2) атомы, относящиеся к точечным дефектам – N_m ;
- 3) атомы, образующие сложные дефекты – N_c .

Их сумма дает концентрацию всех видов атомов и определяется соотношением:

$$N_{\Sigma} = \frac{N_a \cdot \rho}{M} = N + N_m + N_c,$$

где M – молярная масса углерода; ρ – плотность реакторного графита.

Задача формулируется в следующих приближениях:

1) процесс повреждения графита не приводит к значительному изменению удельного объема;

2) число точечных дефектов, образующихся при взаимодействии нейтрона с ядрами атомов углерода, одинаково для атомов, находящихся в кристаллической решетке и образующих сложные дефекты; число дефектов, образующихся на один нейтрон с энергией 1 МэВ, составляет величину порядка 10^3 шт;

3) постоянная рекомбинации точечных дефектов λ образована суммой постоянной доли точечных дефектов, возвращающихся в исходное положение (рекомбинирующих) λ_a , и постоянной доли дефектов, которые преобразуются в слож-

ные λ_c . Постоянная рекомбинации точечных дефектов определяется соотношением:

$$\lambda(T, \Phi_\gamma) = \lambda_a(T, \Phi_\gamma) + \lambda_c(T, \Phi_\gamma),$$

в котором все величины зависят от эквивалентной температуры облучения (T) и плотности потока сопутствующего γ -излучения (Φ_γ).

Схема процесса дефектообразования в графите представлена на рис. 1 и описывается следующим образом.

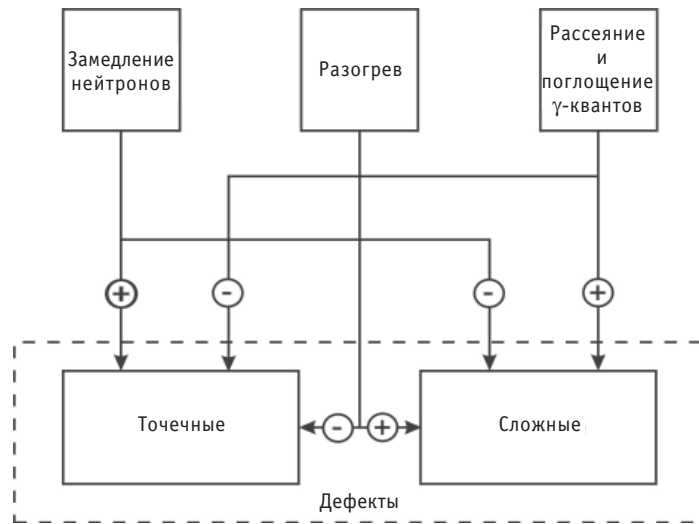


Рис. 1. Схема дефектообразования

1. Изменение числа атомов кристаллической решетки $\left(\frac{dN}{dt}\right)$ происходит под влиянием двух конкурирующих процессов: первый – прибыль за счет процесса рекомбинации точечных дефектов (переход атомов точечных дефектов в узлы кристаллической решетки – $\lambda_a N_m$); второй – убыль за счет воздействия потока нейтронов на кристаллическую решетку (выбивание атомов из узлов кристаллической решетки и образование точечных дефектов – $\Phi \sigma_s n N$).

2. Изменение числа атомов, образующих сложные дефекты $\left(\frac{dN_c}{dt}\right)$, происходит под влиянием двух конкурирующих процессов: первый – прибыль за счет процесса перехода атомов точечных дефектов в сложный дефект ($\lambda_c N_m$); второй – убыль за счет воздействия потока нейтронов на сложные дефекты (переход атомов сложных дефектов в точечные – $\Phi \sigma_s n N_c$).

3. Изменение числа атомов точечных дефектов $\left(\frac{dN_m}{dt}\right)$ происходит под влиянием двух конкурирующих процессов: первый – убыль за счет процесса рекомбинации точечных дефектов и их перехода в сложные дефекты (λN_m); второй – прибыль за счет воздействия потока нейтронов на кристаллическую решетку и сложные дефекты (переход атомов кристаллической решетки и сложных дефектов в точечные дефекты – $\Phi \sigma_s n (N + N_c)$).

Таким образом, система дифференциальных уравнений, описывающих изменение числа атомов кристаллической решетки, сложных и точечных дефектов будет иметь следующий вид:

$$\begin{cases} \frac{dN_m}{dt} = -\frac{dN}{dt} - \frac{dN_c}{dt} = \Phi\sigma_s n(N + N_c) - \lambda N_m; \\ \frac{dN}{dt} = \lambda_a N_m - \Phi\sigma_s nN; \\ \frac{dN_c}{dt} = \lambda_c N_m - \Phi\sigma_s nN_c, \end{cases} \quad (1)$$

где n – число образовавшихся точечных дефектов на один акт рассеяния нейтрона на ядре атома углерода; t – момент времени; Φ – плотность потока повреждающих нейтронов; σ_s – микроскопическое сечение рассеяния повреждающих нейтронов.

Решением данной системы являются выражения:

$$\begin{cases} N_m = k - me^{-(\Phi\sigma_s n + \lambda)t}; \\ N_c = N_{0c} e^{-(\Phi\sigma_s n + \lambda)t} + \frac{\lambda_c k}{\Phi\sigma_s n} (1 - e^{-\Phi\sigma_s n t}) + \frac{\lambda_c m}{\lambda} (e^{-(\Phi\sigma_s n + \lambda)t} - e^{-\Phi\sigma_s n t}); \\ N = N_0 e^{-\Phi\sigma_s n t} + \frac{\lambda_a k}{\Phi\sigma_s n} (1 - e^{-\Phi\sigma_s n t}) + \frac{\lambda_a m}{\lambda} (e^{-(\Phi\sigma_s n + \lambda)t} - e^{-\Phi\sigma_s n t}); \end{cases} \quad (2)$$

где $k = \frac{\Phi\sigma_s n N_\Sigma}{\Phi\sigma_s n + \lambda}$; $m = \frac{\Phi\sigma_s n (N_\Sigma - N_{0m}) - \lambda N_{0m}}{\Phi\sigma_s n + \lambda} = k - N_{0c}$; N_{0m} , N_{0c} , N_0 – концентрации

атомов точечных, сложных дефектов и атомов кристаллической решетки в начальный момент времени соответственно.

ЗАВИСИМОСТЬ КРИТИЧЕСКОГО ФЛЮЕНСА ОТ ТЕМПЕРАТУРЫ ОБЛУЧЕНИЯ

Анализ экспериментальных зависимостей критического флюенса от температуры облучения графита [3] позволяет заключить, что значения λ_a и λ_c должны возрастать с ростом температуры, а максимальное преобладание процесса рекомбинации над процессом перехода точечных дефектов в сложные должно наблюдаться при температуре около 300°C.

Предположим, что при достижении критического флюенса в кристаллической структуре графита накапливается такая доля точечных и сложных дефектов от общего числа атомов, которая является критической, и что она постоянна для любого диапазона температуры облучения. Примем ее значение равным 10% от общего числа атомов.

Зависимости $\lambda_a(T)$ и $\lambda_c(T)$ определялись путем подгонки расчетной зависимости критического флюенса от температуры облучения к экспериментальной по следующей методике:

- 1) начальные условия задаются из предположения несовершенства кристаллической структуры графита: $N_0 = 0,98 \cdot N_\Sigma$, $N_{0m} = 0,01 \cdot N_\Sigma$, $N_{0c} = 0,01 \cdot N_\Sigma$;
- 2) задается полиномиальный вид зависимостей $\lambda_a(T)$ и $\lambda_c(T)$;
- 3) в уравнениях (2) время облучения t увеличивается до тех пор, пока суммарная доля точечных и сложных дефектов $((N_m + N_c)/N_\Sigma)$ не будет равна 10%;
- 4) фиксируются значения долей точечных (N_m/N_Σ) и сложных (N_c/N_Σ) дефектов;
- 5) фиксируется значение критического флюенса повреждающих нейтронов $(\Phi \cdot t)$;

6) подгонка коэффициентов полиномов и следующие за ней вычисления (пп. 2–5) проводятся до тех пор, пока не будет достигнуто совпадение расчетной и экспериментальной зависимостей критического флюенса от температуры облучения на качественном уровне.

Результат представлен на рис. 2–3. Полученные при этом зависимости постоянных рекомбинаций от температуры облучения имеют следующий вид:

$$\lambda_a(T) = 8 \cdot 10^{-8} T + 1 \cdot 10^{-10}; \lambda_c(T) = 1 \cdot 10^{-10} T^2 + 1 \cdot 10^{-10} T; \quad (3)$$

$$\lambda(T) = 1 \cdot 10^{-10} T^2 + 8,01 \cdot 10^{-8} T + 1 \cdot 10^{-10}.$$

Как видно из представленных зависимостей, доля точечных дефектов уменьшается с ростом температуры, т.е. эти дефекты отжигаются, а сложные дефекты отжигу не подвержены, поэтому их доля увеличивается.

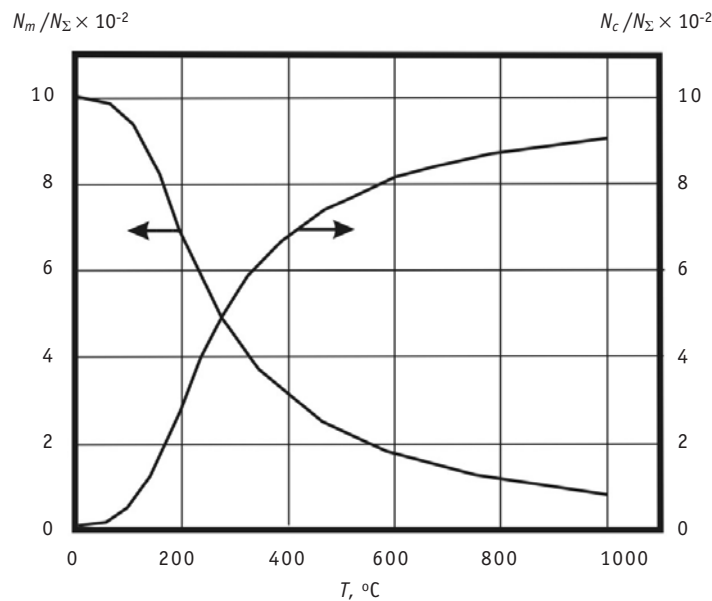


Рис. 2. Изменение концентраций точечных и сложных дефектов от температуры облучения

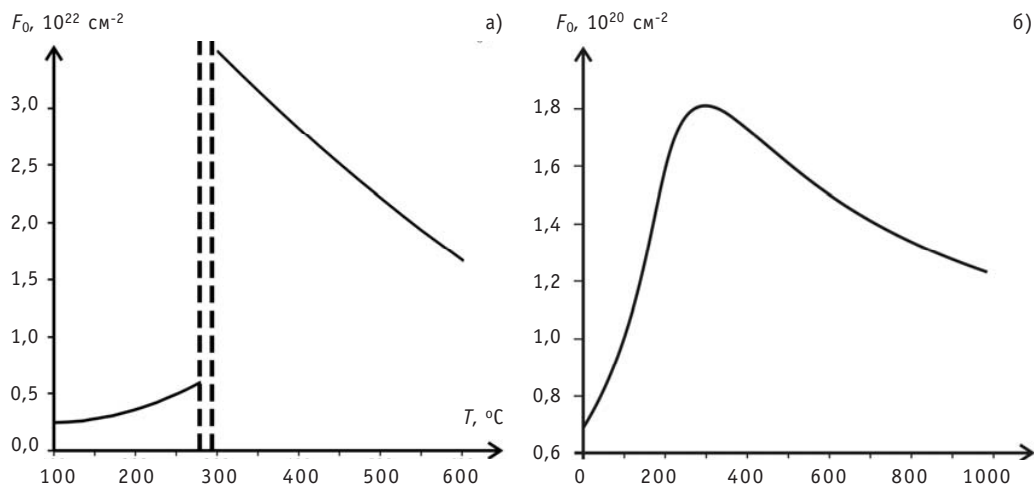


Рис. 3. Зависимость значения критического флюенса от температуры облучения: а – экспериментальная; б – расчетная

Таким образом, разработанные модель и процедура подгонки позволяют как минимум на качественном уровне описывать процессы образования и рекомбинации точечных дефектов. Это дает возможность проследить динамику накопления энергии Вигнера.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЗАПАСЕННОЙ В ГРАФИТЕ ЭНЕРГИИ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ

Количество запасенной графитом энергии прямо пропорционально количеству точечных дефектов, что позволяет определить зависимость постоянной рекомбинации точечных дефектов от температуры облучения. Экспериментальные данные по энергии Вигнера для реакторов Сибирского химического комбината позволили установить эту зависимость.

Для смещения одного атома в кристаллической структуре графита требуется энергия (E_d) около 25 эВ. Можно предположить, что это же количество энергии выделяется при возвращении атома на вакантное место в кристаллической решетке. Решение системы дифференциальных уравнений (1) определяет соотношение для количества точечных дефектов:

$$N_m = \frac{\Phi \sigma_s n N_\Sigma}{\Phi \sigma_s n + \lambda} (1 - e^{-(\Phi \sigma_s n + \lambda)t}) + N_{0m} e^{-(\Phi \sigma_s n + \lambda)t}.$$

В данном соотношении первое слагаемое характеризует увеличение количества точечных дефектов в процессе облучения, а второе – уменьшение числа точечных дефектов, которые находились в графите на момент начала облучения. Таким образом, при достаточно больших временах (~ 1 года) данная зависимость стремится к асимптоте. Зависимость энергии Вигнера на единицу массы графита от температуры облучения для $\Phi = 10^{13} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$ и $N_\Sigma = 5 \cdot 10^{22} \text{ г}^{-1}$ определяется по соотношению:

$$E = E_d \cdot N_m = (25 \text{ эВ}) \cdot \frac{\Phi \sigma_s n N_\Sigma}{\Phi \sigma_s n + \lambda(T)} = \frac{7,4 \cdot 10^{-4}}{15,5 \cdot 10^{-9} + \lambda(T)}, \text{ эВ/г.}$$

Далее задача сводится к определению вида функции, аппроксимирующей зависимость постоянной рекомбинации от температуры $\lambda(T)$. При этом значения E и T известны (экспериментальные данные).

Зависимость энергии Вигнера от температуры облучения.

- При аппроксимации $\lambda(T)$ полиномом второй степени:

$$E = \frac{7,4 \cdot 10^{-4}}{15,5 \cdot 10^{-9} + AT^2 + BT + C},$$

где $A = 1,3 \cdot 10^{-10}$, $B = 4,43 \cdot 10^{-8}$, $C = 1,34 \cdot 10^{-6}$, $[T] = ^\circ\text{C}$.

Полиномиальная зависимость постоянной рекомбинации от температуры, использованная в этой формуле, и зависимость, полученная при подгонке, приведены на рис. 4.

- При аппроксимации $\lambda(T)$ экспоненциальной функцией:

$$E = \frac{7,4 \cdot 10^{-4}}{15,5 \cdot 10^{-9} + \lambda_0 e^{-aT}},$$

где $\lambda_0 = 4,86 \cdot 10^{-6}$, $a = -0,00484$.

- При аппроксимации $\lambda(T)$ степенной функцией:

$$E = \frac{7,4 \cdot 10^{-4}}{15,5 \cdot 10^{-9} + \lambda_0 T^a},$$

где $\lambda_0 = 3,09 \cdot 10^{-9}$, $a = 1,57$.

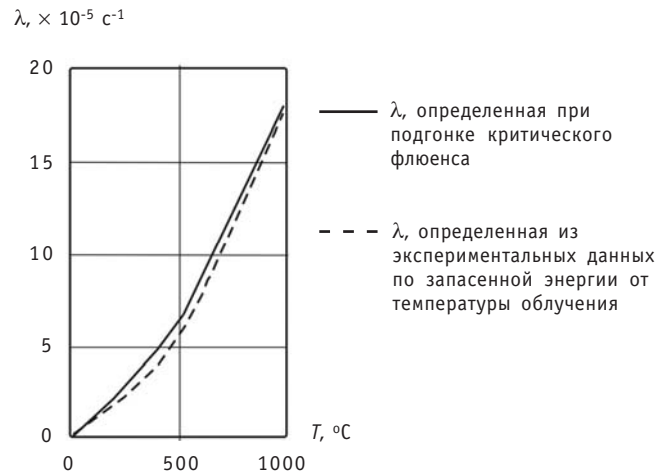


Рис. 4. Сравнение зависимостей постоянных рекомбинаций от температуры облучения

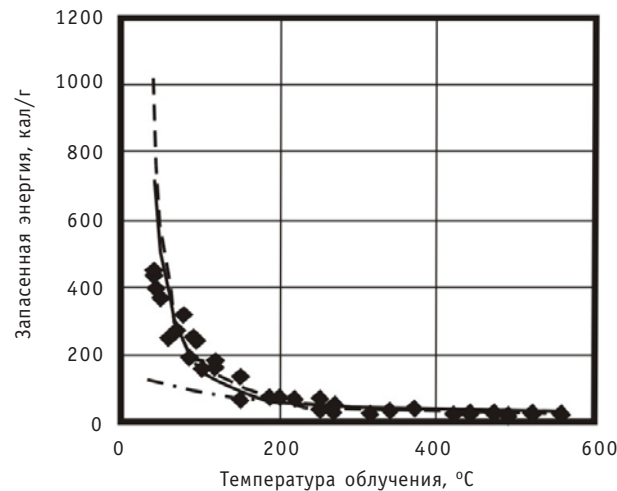


Рис. 5. Зависимость запасенной энергии от температуры для различных функций, аппроксимирующих $\lambda(T)$: \blacklozenge – экспериментальные точки; — — — — — степенная зависимость; — — — — — полиномиальная зависимость; — · — — — — экспоненциальная зависимость

Эти зависимости приведены на рис. 5.

Экспоненциальную зависимость $\lambda(T)$ можно исключить из рассмотрения. Используя полиномиальную и степенную зависимости постоянной рекомбинации от температуры облучения, можно проследить динамику изменения концентрации точечных дефектов от времени облучения для различных температур облучения и соответственно зависимости энергии Вигнера от флюенса при постоянной плотности потока повреждающих нейтронов. На рис. 6 представлена расчетная зависимость энергии Вигнера от флюенса. Зависимость получена в предположении, что все нейтроны являются повреждающими, а условия облучения остаются неизменными. Экспериментальная зависимость запасенной энергии от флюенса нейтронов представлена на рис. 7.

Сравнивая расчетные и экспериментальные данные, можно определить отклонения асимптот зависимостей. Они представлены в табл. 1.

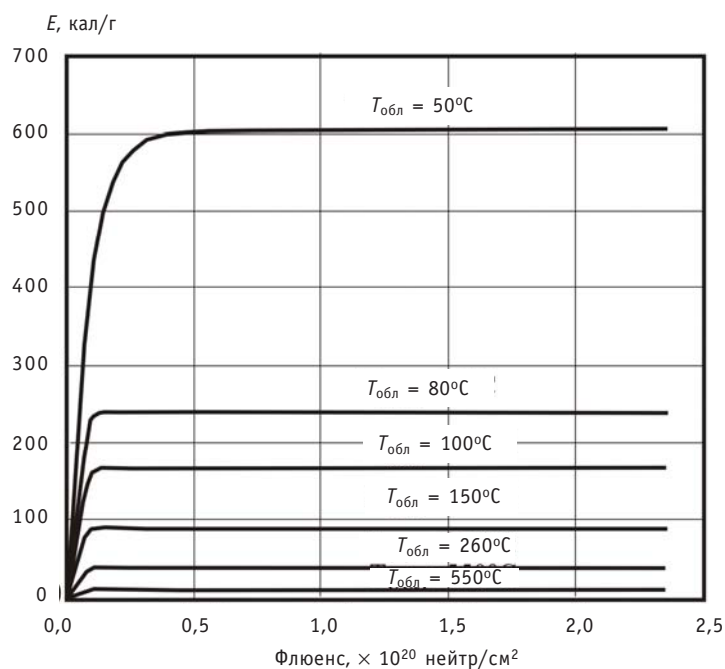


Рис. 6. Расчетная зависимость запасенной энергии от флюенса ($\Phi = 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$)

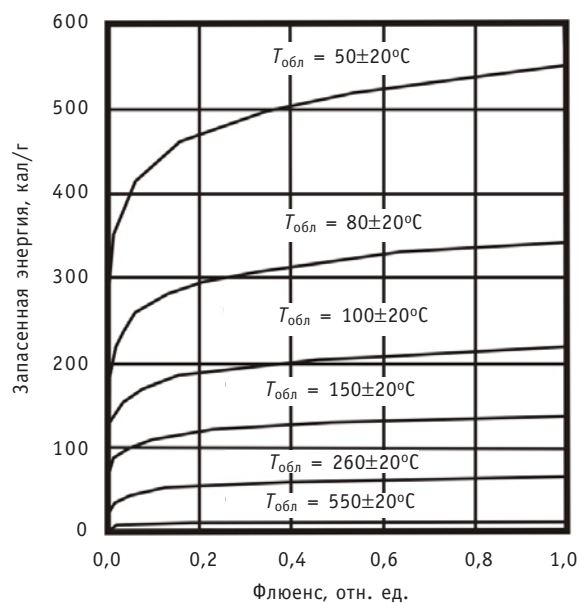


Рис. 7. Экспериментальная зависимость запасенной энергии от флюенса нейтронов

Как видно из результатов, максимальное отклонение расчетного значения от экспериментального соответствует температуре 260°C, что достаточно близко к переходной области (около 300°C). В этой области следовало ожидать значительного отклонения ввиду неопределенности экспериментальных данных по зависимости критического флюенса от температуры облучения.

Таблица 1

Отклонения от экспериментальных данных

| Температура облучения, °C | Погрешность, % | |
|------------------------------|---|------------------------------------|
| | Полиномиальная зависимость $\lambda(T)$ | Степенная зависимость $\lambda(T)$ |
| 50 | 9,6 | 7,1 |
| 80 | 29,0 | 27,6 |
| 100 | 20,4 | 17,6 |
| 150 | 36,4 | 34,3 |
| 260 | 51,0 | 51,0 |
| 550 | 16,7 | 16,7 |

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в работе определена зависимость постоянной рекомбинации точечных дефектов от температуры облучения графита для условий, реализуемых в промышленных уран-графитовых реакторах. Для уточнения вида функциональной зависимости критического флюенса от температуры облучения и плотности потока сопутствующего γ -излучения необходимо провести дополнительный анализ с целью выбора конкретного вида функций, описывающих рекомбинацию точечных дефектов ($\lambda_a(T, \Phi_\gamma)$) и их переход в сложные дефекты ($\lambda_c(T, \Phi_\gamma)$).

Характер зависимости концентрации междоузлий от температуры облучения хорошо согласуется с экспериментальными результатами, полученными при определении величины запасенной энергии в графите блоков и втулок активной зоны уран-графитовых реакторов как функции температуры облучения.

Работа выполнена при поддержке гранта Президента РФ для поддержки молодых российских ученых (проект № МК-3748.2007.8).

Литература

1. *Виргильев Ю.С.* Свойства реакторного графита и его работоспособность в водографитовых реакторах // *Материаловедение*. – 2001. – № 2. – 44 с.
2. *Глушков Е.С., Демин В.Е., Пономарев-Степной Н.Н., Хрулев А.А.* Тепловыделение в ядерном реакторе / *Под ред. Н.Н. Пономарева-Степного*. – М.: Энергоатомиздат, 1985. – 160 с.
3. *Карпунин В.И., Николаенко В.А., Кузнецов В.Н.* Критический флюенс нейтронов как фактор, определяющий ресурс графита кладки РБМК // *Атомная энергия*. – 1997. – Т. 83. – Вып. 5. – С. 325-329.

Поступила в редакцию 20.12.2007

energetica» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2008. – 8 pages, 4 illustrations. – References – 15 titles.

Analytical relationships were obtained for estimating how the distribution of temperature and heat flux vary along a steam-generating tube and how the steam generator power output reduces due to formation and accumulation of deposits.

УДК 621.039.532.21

Analytical Scheme of Defects Evolution in the Crystal Lattice of Graphite at the Reactors Irradiation \V.N. Nesterov, I.V. Shamanin, E.G. Emets, A.A. Tsyganov, S.G. Kotlyarevsky, A.O. Pavlyuk; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2008. – 9 pages, 1 table, 7 illustrations. – References – 3 titles.

The article is devoted to the analytical description of the damage and restoration process in the crystal structure of reactors graphite. The basic criterion of graphite serviceability is the degree of achievement critical fluence of damaging neutrons. The defects formation process analytical scheme describing the change of atoms number of crystal lattice, simple and complex defects was developed. On the basis of the scheme the system of the differential equations is made. The analysis of the solving of equations system and experimental data on the accumulating energy (Wigners energy) for industrial uranium – graphite reactors has allowed determining the dependence of a recombination constant for dot defects from temperature of an irradiation. Comparison of calculated and experimental dependences of the critical fluence from temperature of an irradiation, and also calculated and experimental asymptotes dependences of Wigners energy on time of an irradiation of graphite is carried out.

УДК 621.039.52:615.849.1

Reactor Beam Removal Unit Optimization for Neutron Therapy \Yu.A. Kurachenko; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2008. – 10 pages, 1 illustration. – References – 10 titles.

The REMP1 routine shielding optimization code is described as well as new OPT1D & OPT2D codes are introduced. These newly developed program systems are based on integration of the universal nonlinear programming search technique and well-known transport ROZ-6 (1D) and KASKAD (2D) codes. New software is tested for efficiency on a series of optimization problems of increasing complexity arisen in beam removal unit calculation for the “MARS” neutron therapy reactor facility.

УДК 621.039.52:615.849.1

Neutron Therapy Beams Performance Criteria \Yu.A. Kurachenko, Yu.A. Kazansky, A.V. Eu.S. Matusevich; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2008. – 11 pages, 3 tables, 3 illustrations. – References – 10 titles.

The performance criteria (PCRs) for neutron beams designed for neutron capture therapy (NCT) are classified and replenished. The PCRs differentiation is made to distinct clearly the primary (“in phantom”) & secondary (“in air”) of them. Both kinds of PCRs are tested for existing and designed NPPs, namely, the VVRc, “MARS” and HWR-50 reactors. The PCRs comparison is made with the FCBeam MIT which is stated overall as a reference one for the NCT. A conclusion of the secondary criteria necessary verification by the primary ones is drawn. The designed NCT beams competitiveness, based on calculation performed, is proved. Furthermore, reasonability of the fast neutron therapy enhancement by the NCT is validated.