

УДК 621.039.51

О методике проведения радиационных испытаний материалов в реакторах

БРИСКМАН Б. А., КРАМЕР-АГЕЕВ Е. А.

В результате радиационных испытаний устанавливается зависимость между изменением характеристик объекта и определенной мерой радиационного воздействия (МРВ). Выбор той или иной МРВ может определить достоверность полученных результатов. Такими значениями МРВ могут служить: флюенс быстрых нейтронов с заданной пороговой энергией, флюенс тепловых нейтронов, суммарная поглощенная доза излучения (ее γ - и нейтронный компоненты) *.

Классы материалов и МРВ

Тип корреляции результатов облучения зависит от класса материалов, к которому относится облучаемый объект, и от вида облучения, ответственного за создаваемый эффект.

Как известно, при облучении металлов радиационные эффекты связаны в основном с атомными смещениями, сопровождающимися образованием кластеров дефектов и заполненных газом микрополостей [1]. Если за образование точечных смещений и кластеров ответственны нейтроны с энергией выше нескольких десятков килоэлектронвольт, то за ядерные реакции — тепловые или сверхбыстрые нейтроны. Используемой МРВ здесь является флюенс быстрых нейтронов с энергией больше некоторого порогового значения.

При облучении полупроводников и полупроводниковых приборов в их объеме возникают дефекты структуры, приводящие к уменьшению электропроводности и времени жизни избыточных носителей [2]. В полупроводниковых приборах структурные нарушения вызывают ухудшение их параметров, и прежде всего — уменьшение коэффициента усиления биполярных транзисторов. В настоящее время за МРВ принимается флюенс быстрых нейтронов с энергией больше 0,1 МэВ.

При испытаниях приборов типа металл-диэлектрик-полупроводник установлено, что воз-

* Сюда же следует отнести плотность потока нейтронов, мощность поглощенной дозы, температуру облучения. В настоящей статье эти параметры не рассматриваются.

действие γ -квантов вызывает смещение рабочих характеристик из-за накопления заряда в слоях диэлектрика. Нейтронное облучение изменяет вид характеристик и постепенно выводит прибор из строя, поэтому сейчас трудно сказать, что является преобладающим: образование кластеров дефектов в объеме полупроводника или в слое диэлектрика, хотя влияние γ -излучения, по-видимому, является определяющим [3].

При облучении электронных ламп их ресурс определяется в основном разгерметизацией корпуса вследствие взаимодействия тепловых нейтронов с бором, входящим в состав баллона [4]. Поэтому при проведении исследований необходимо учитывать флюенс не только быстрых, но и тепловых нейтронов.

Облучение полимерных материалов вызывает нарушение имеющихся и образование новых межатомных и межмолекулярных связей. Радиационные эффекты связаны с передачей энергии излучения объекту за счет ионизации и возбуждения атомов и молекул. При таком взаимодействии принято использовать в качестве МРВ суммарную поглощенную энергию излучения. Однако, поскольку в общем случае влияние различных видов излучений на этот класс объектов может существенно различаться, использование суммарной поглощенной энергии в некоторых случаях приводит к некорректной обработке результатов испытаний. Оценка с учетом влияния компонентов поглощенной энергии предполагает предварительное экспериментальное определение радиационного эффекта для нейтронного и γ -излучений.

Недостатки принятых методов корреляции результатов радиационных испытаний

Учитывая реальные условия облучения в современных ядерных реакторах, когда соотношения между плотностями потоков нейтронного и γ -излучений изменяются в широких пределах при одновременном изменении спектров этих излучений, можно заключить, что использование флюенса быстрых нейтронов с энергией для всех классов облучаемых объектов больше $E_{пор}$

в качестве МРВ может привести и приводит к несопоставимости результатов испытаний на различных реакторах (и даже в различных экспериментальных устройствах одного и того же реактора). Рассмотрим причины такого положения.

Изменение спектра нейтронов. Различие типов используемых реакторов обуславливает заметную разницу в спектрах нейтронов. Более того, спектры нейтронов зависят от места измерения в пределах одного и того же реактора. На рис. 1 приведены некоторые типичные спектры. Для широкого набора спектров число атомных смещений (или пар Френкеля) при одинаковом флюенсе нейтронов в зависимости от материала объекта может изменяться в 1,5—4 раза [5]. Международные рекомендации [6] об использовании флюенса нейтронов с энергией выше 0,1 МэВ в качестве независимой от спектра меры нейтронного потока не согласуются с расчетами числа дефектов, созданных в объеме кристаллов [7] нейтронным излучением.

Вклад γ -излучения в радиационные повреждения. Широко распространено мнение о том, что основной причиной возникновения радиационных дефектов в металлах и полупроводниках являются нейтроны, а влиянием γ -квантов можно пренебречь, поскольку в активной зоне число смещенных атомов за счет быстрых нейтронов и выбитых электронов в материалах,

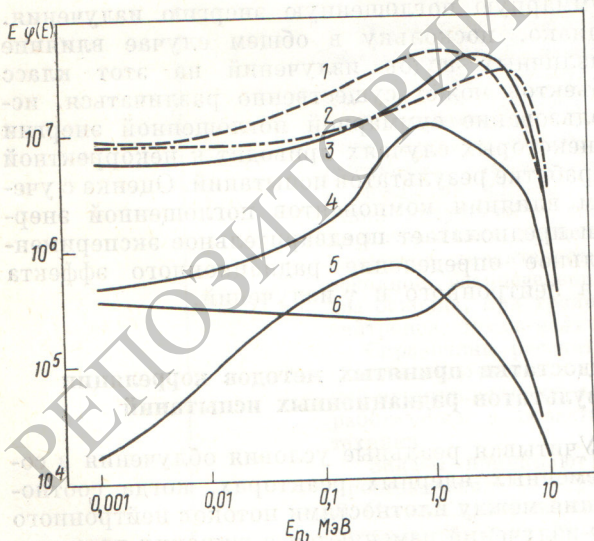


Рис. 1. Некоторые спектры реакторов:

1 — ВЭК-6, $\bar{E} = 0,98$; 2 — ВЭК-12; $\bar{E} = 1,7$; 3 — ГЭК-2, $\bar{E} = 1,7$; 4 — ГЭК-2, свинцовый фильтр, $\bar{E} = 1,4$ МэВ (реактор ИРТ); 5 — критическая сборка типа ТВР, $\bar{E} = 0,83$ [17]; 6 — реактор «Энрико Ферми», $\bar{E} = 0,59$ МэВ [7]

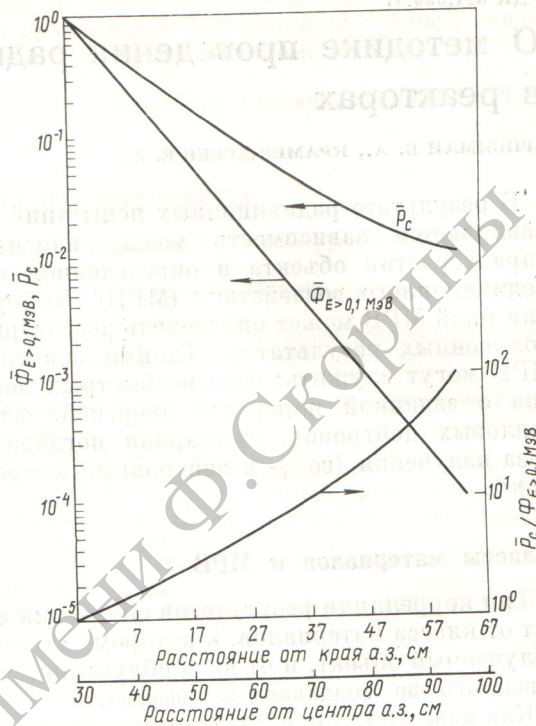


Рис. 2. Изменение относительных значений плотности потока нейтронов $\Phi_{E > 0,1 \text{ МэВ}}$, мощности поглощенной дозы P_c и их отношения с удалением от края активной зоны реактора ВВР-Ц

представляющих практический интерес, отличается на 2—3 порядка. Однако в отражателе, где в современных исследовательских реакторах размещается большое число экспериментальных каналов, соотношение плотностей потоков γ -излучения и быстрых нейтронов быстро изменяется в пользу γ -квантов: при удалении от края активной зоны на 40—60 см плотность потока γ -квантов превосходит плотность потока быстрых нейтронов в 100—1000 раз. Отсюда следует, что вклад γ -излучения в образование радиационных дефектов становится сопоставимым с вкладом нейтронов. Пренебрежение вкладом γ -излучения может привести к серьезным ошибкам, достигающим 100%.

Облучение объектов с сопоставимой чувствительностью к нейтронам и γ -излучению. К таким объектам относятся органические материалы, стекла и т. п. В этом случае наиболее логичной является корреляция радиационных эффектов на основе поглощенной дозы. Однако часто используется и флюенс нейтронов с энергией больше $E_{\text{пор}}$, особенно если такие материалы входят в состав композиционных систем.

На рис. 2 на примере реактора ВВР-Ц показано изменение плотности потока нейтронов $\Phi_E > 0,1$ МэВ и мощности поглощенной дозы в графите P_C с удалением от центра или края активной зоны. Предположим, что облучение какого-то объекта, чувствительность которого к нейтронам и γ -излучению примерно одинакова, проводилось в активной зоне и на расстоянии 63 см от ее края до достижения одинакового флюенса, т. е. одинакового радиационного эффекта. Из рис. 2 следует, что в первом случае поглощенная доза будет в 100 раз меньше, чем во втором. Поэтому экстраполяция результатов, полученных в первом случае, на условия облучения в реальной ситуации, соответствующей второму случаю, приведет к завышенной оценке радиационной стойкости объекта.

Вклад тепловых нейтронов в радиационный эффект. Формальное дополнение дозиметрической информации значениями флюенса тепловых нейтронов не всегда проясняет ситуацию при радиационных испытаниях. Известно, что примеси бора снижают радиационную стойкость материалов при облучении в реакторах на тепловых нейтронах [8]. Например, добавка 5 мас. % бора в натуральный каучук уменьшила его радиационную стойкость в 25 раз. Без дополнительных испытаний в иных условиях облучения остается неясным, то ли указанная добавка бора резко увеличила поглощенную энергию, то ли определяющую роль играет специфическое воздействие α -частиц.

Обзор имеющихся предложений

Вследствие сложности ситуации при внутриреакторном облучении вряд ли возможно подыскать единый универсальный критерий, связывающий радиационный эффект с условиями облучения для любых материалов. Рассмотрим следующие предложения.

1. Оптимальное значение пороговой энергии нейтронов. Минимальное влияние спектра нейтронов на результаты облучения достигается при использовании флюенса нейтронов с порогом 300–400 кэВ [7]. Этот вывод подтверждается более поздними расчетами, в которых учитывалось влияние разупорядоченных областей (кластеров), созданных нейтронами, и непосредственными экспериментами по облучению сплавных транзисторов [9]. Для всех групп транзисторов использование ^{237}Np в качестве порогового детектора является приемлемым компромиссом. В этом случае влияние спектра

нейтронов на изменение коэффициента усиления не превышает 20%.

2. Для материалов, где определяющим является механизм атомных смещений, в качестве МРВ используется «число атомных смещений на атом тормозящей среды» [10]. Такая МРВ в принципе является универсальной для нейтронного, электронного и γ -облучения, но ограничена определенными материалами, изменение свойств которых вызвано нарушением регулярности взаимного расположения атомов.

3. Разнообразные облучаемые объекты подразделяются на классы, например металлы, полупроводники, органические вещества и т. п., и для каждого класса используется своя МРВ. Такой подход широко распространен, но не исключает неопределенности в истолковании результатов облучения.

4. В работах [11, 12] предложено и в [13] аналитически показано, что при облучении металлов и полупроводниковых материалов в качестве МРВ можно принять нейтронный компонент поглощенной дозы, причем в этом случае резко снижается зависимость числа дефектов от спектра нейтронного излучения. Экспериментальное подтверждение этого положения позволило бы унифицировать обработку результатов испытаний практически всех классов материалов с позиций поглощенной дозы.

Существует множество других очень интересных предложений относительно способа описания условий облучения, но все они сводятся к перечисленным выше.

Планирование радиационных испытаний материалов

Для выявления причин возникновения радиационных нарушений и для обеспечения сопоставимости результатов испытаний в различных реакторах необходимо проводить облучение при нескольких заметно различающихся спектрах нейтронов с фильтрацией тепловых нейтронов и без нее, а также при различных соотношениях потоков нейтронов и γ -квантов.

Таким образом, учитывая современный уровень разработки дозиметрических методов и степень обеспечения реакторов соответствующими датчиками и приборами, можно рекомендовать в качестве программы-минимум следующую методику облучения материалов изделий с обеспечением их дозиметрической информацией.

Для металлов и сплавов: реакторное облучение в трех различающихся спектрах нейтро-

нов с фильтрацией тепловых нейтронов и без нее.

Для полупроводников и полупроводниковых приборов: облучение на изотопных гамма-установках дозой в несколько десятков мегарад и реакторное облучение в двух различающихся спектрах нейтронов с фильтрацией тепловых нейтронов и без нее.

Для органических материалов: облучение на изотопных гамма-установках и реакторное облучение в каналах с существенным вкладом быстрых нейтронов в поглощенную дозу (не менее 40—50%) с фильтрацией тепловых нейтронов и без нее.

Дозиметрическая информация: при облучении на гамма-установках — поглощенная доза в воде, либо экспозиционная доза; при облучении в реакторе — интегральный спектр быстрых нейтронов, измеренный пороговыми детекторами [14], флюенс тепловых нейтронов, поглощенная доза и ее γ - и нейтронный компоненты в водородсодержащем материале (например, в полиэтилене). Дополнительная информация — спектр γ -излучения либо поглощенная доза γ -излучения в материале объекта. Косвенная информация о спектре γ -излучения может быть получена с помощью спектрального параметра [15]. Мощность поглощенной дозы во внутри-реакторных условиях рекомендуется измерять с помощью калориметра с поглотителями из полиэтилена и графита, что дает возможность не только определить компоненты дозы в водороде и углероде, но и рассчитать их вклад в дозу в любом материале [16], относительное число смещенных атомов [13] и флюенс нейтронов с порогом 0,3 МэВ.

Можно надеяться, что накопление подобной информации и сопоставление результатов радиационных испытаний в различных условиях облучения приведут в конечном счете к использованию для любых объектов более универсального критерия — эффективного значения поглощенной дозы

$$MPB = aD_{\text{б.н}} + bD_{\text{т.н}} + D_{\gamma},$$

где коэффициенты a и b учитывают относительную (по сравнению с γ -излучением) эффективность воздействия нейтронов на объекты определенного класса.

Поступила в Редакцию 26/VII 1976 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Томпсон М. Дефекты и радиационные повреждения в металлах. М., «Мир», 1971.
2. Коноплева Р. Ф., Литвинов В. Л., Ухин Н. А. Особенности радиационного повреждения полупроводников частицами высоких энергий. М., Атомиздат, 1971.
3. Гирый В. А. и др. «Атомная энергия», 1973, т. 35, вып. 1, с. 48.
4. Хамман Д. и др. В сб.: Влияние облучения на материалы и элементы электронных схем. М., Атомиздат, 1967, с. 324.
5. Попов В. Д. и др. В сб.: Метрология нейтронного излучения на реакторах и ускорителях. Т. 2. М., Изд-во стандартов, 1972, с. 163.
6. Mottef J. In: Proc. IAEA Symp. «Neutron Fluence Measurements». Vienna, 1970, rep. N 107.
7. Ухин Н. А., Хрусталева А. В. Препринт ИАЭ 18—80. М., 1969.
8. Кинг Р. В. и др. В сб.: Влияние облучения на материалы и элементы электронных схем. М., Атомиздат, 1967, с. 75.
9. Knjazev W. e. a. In: Proc. Symp. IAEA «Neutron Monitoring for Radiation Protection Purposes», Vienna, 1973, p. 321.
10. Buswell J. In: Proc. Intern. Conf. «Phys. Met. React. Fuel Elem.» London, 1975, p. 170.
11. Брискман Б. А., Савина В. П. [5], с. 168.
12. Крамер-Агеев Е. А. и др. В сб.: Всесоюз. симп. «Радиационные дефекты в полупроводниках». Минск, изд. БГУ, 1972.
13. Крамер-Агеев Е. А. и др. «Атомная энергия», 1973, т. 34, вып. 4, с. 255.
14. Крамер-Агеев Е. А. и др. «Измерительная техника», 1973, № 1, с. 61.
15. Цоглин Ю. Л., Огородник С. С. «Атомная энергия», 1975, т. 38, вып. 2, с. 96.
16. Брискман Б. А. Компоненты поглощенной энергии реакторного излучения. М., Атомиздат, 1976.
17. Mirić I., Ubović Ž. In: Proc. Third IAEA Nucl. Accident Intercomparison Experiment, Beograd, 14—25 May 1973, p. 6.