

КОНТРОЛЬ ХАРАКТЕРИСТИК НЕЙТРОННЫХ ПОЛЕЙ РЕАКТОРА
С ПОМОЩЬЮ МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКОГО КРЕМНИЯ© 2022 г. В. А. Варлачев^{а,*}, Е. Г. Емец^а, Ю. Му^а,
Е. А. Бондаренко^а, В. А. Говорухин^а^а Национальный исследовательский Томский политехнический университет
Россия, 634050, Томск, просп. Ленина, 30

*e-mail: varlachev@tpu.ru

Поступила в редакцию 01.04.2022 г.

После доработки 25.04.2022 г.

Принята к публикации 29.04.2022 г.

Для измерения плотности потока и флюенса тепловых нейтронов разработан метод, в котором предложено в качестве детектора тепловых нейтронов использовать монокристаллический кремний. Преимущество данного метода состоит в том, что он не требует специальной измерительной аппаратуры. Для измерения абсолютных значений флюенса тепловых нейтронов предлагается облучать кремний в кадмиевом экране и без него, как это делается в активационном методе. Результаты проделанной работы показали, что точность измерения потока тепловых нейтронов не уступает традиционным активационным методам, но, в отличие от них, информация на детекторе может сохраняться бесконечно долго, так как при облучении изменяются электрофизические параметры кремния, которые не зависят от наведенной активности и периода полураспада материала.

DOI: 10.31857/S0032816222050160

ВВЕДЕНИЕ И ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Знание абсолютного значения плотности потока и флюенса тепловых нейтронов в экспериментальных каналах реакторов необходимо при решении многих прикладных и фундаментальных задач. В настоящее время самодостаточными, не требующими калибровки с помощью других методов являются активационные методы [1–3], которые реализуются с помощью активационных детекторов, например, из марганца, кобальта, меди, золота. В этих методах используется связь между наведенной активностью детекторов и плотностью потока (или флюенсом) нейтронов. До настоящего времени их общепринято считать эталонными методами. Однако эти способы трудоемки и требуют специальной аппаратуры. Кроме того, образцы при облучении не всегда могут быть использованы в качестве детекторов сопровождения по двум причинам. Во-первых, это связано с тем, что активность детектора после облучения зависит от флюенса не за все время облучения, а лишь за время, равное 3–4 периодам полураспада. Во-вторых, не всегда возможно определить флюенс нейтронов при меняющемся за время облучения потоке нейтронов, например, из-за остановок реактора при длительном облучении. В меньшей степени это касается кобальтового детектора, который имеет большой период полураспада (5.28 го-

да). Однако из-за длительного периода полураспада после облучения требуется его утилизация как радиоактивного материала.

Целью данной работы являлась разработка метода измерения плотности потока тепловых нейтронов в реакторе с помощью детекторов из монокристаллического кремния, которые избавлены от вышеперечисленных недостатков активационных детекторов. Кроме того, кремниевые детекторы обладают свойством памяти и могут быть использованы как детекторы сопровождения.

ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

При облучении кремния нейтронами за счет реакции радиационного захвата образуется ^{31}Si , который путем β -распада (период полураспада 2.62 ч) превращается в стабильный изотоп ^{31}P . Эта трансмутационная примесь в монокристаллах кремния n -типа увеличивает удельную электрическую проводимость (УЭП), а в монокристаллах p -типа – уменьшает. Изменение УЭП в монокристаллах кремния после их облучения и отжига радиационных дефектов прямо пропорционально флюенсу тепловых нейтронов [4]. Это обстоятельство было положено в основу метода измерения нейтронного потока в относительных единицах [5].

Для измерения абсолютных значений флюенса тепловых нейтронов предлагается облучать кремний в кадмиевом экране и без него, как это делается в активационном способе, используя наработки этого способа по методу кадмиевой разности [1–3]. Применительно к кремнию суть метода заключается в следующем.

Можно представить концентрацию (C) ^{31}P , генерированную за время облучения без кадмиевого фильтра, в виде двух составляющих: генерированную тепловыми (C_t) и надтепловыми (C_{nt}) нейтронами:

$$C = C_t + C_{nt}. \quad (1)$$

Величина C линейно связана с изменением УЭП [5]:

$$C = (\sigma - \sigma_0)/(e\mu_n), \quad (2)$$

где σ_0 , σ – УЭП кремния до и после облучения соответственно; e , μ_n – заряд и подвижность электронов соответственно. Заметим, что измерение σ проводят после отжига радиационных дефектов при температуре 800°C , таким способом исключают влияние радиационных дефектов от быстрых нейтронов на изменение УЭП.

В настоящее время в качестве поглотителя тепловых нейтронов принято использовать ^{113}Cd из-за большого сечения поглощения в тепловой области и его быстрого убывания в эпитепловой. Однако сечение поглощения кадмия не является ступенчатой функцией. Поэтому в активационном методе кадмиевой разности введено понятие граничной энергии поглощения в кадмии E_{Cd} , которая зависит от толщины и формы фильтра. Считают, что нейтроны с энергией ниже E_{Cd} полностью поглощаются фильтром, а выше этой энергии – не поглощаются. Возникающая при этом ошибка (1–4%) компенсируется кадмиевой поправкой F_{Cd} . В таком приближении при облучении кремния в кадмиевом фильтре

$$C_{nt} = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \Sigma(E)\Phi(E)dE = C_{Cd}F_{Cd}, \quad (3)$$

где F_{Cd} – поправочный коэффициент, учитывающий поглощение надтепловых нейтронов в кадмии.

Кадмиевое отношение (C_{Cd}) экспериментально определяется путем измерения УЭП до (σ_0) и после (σ_{Cd}) облучения:

$$C_{Cd} = (\sigma_{Cd} - \sigma_0)/(e\mu_n). \quad (4)$$

В.П. Ярына и Г.Б. Тарновский [6] предложили эмпирическую формулу для расчета E_{Cd} кадмиевого цилиндрического фильтра, помещенного в изотропное поле:

$$E_{Cd} = 0.520 + 0.162 \ln(\xi d_{Cd}), \quad (5)$$

$$d_{Cd} = 0.5 - 1.5 \text{ мм};$$

$$\xi = 1.58 - 0.82(h/(2r)) + 0.38(h/(2r))^2, \quad (6)$$

$$h/(2r) = 0.5 - 1.3,$$

где h и r – высота и радиус цилиндрического фильтра.

Для реакторных нейтронных полей, формирующихся в присутствии хороших замедлителей (вода, графит, бериллий и др.), спектр тепловых нейтронов приближенно описывается распределением Максвелла. В этом случае при использовании детектора, сечение реакции которого в тепловой области спектра меняется по закону $1/v$ (v – скорость нейтрона), генерированная тепловыми нейтронами концентрация (C_t) ^{31}P будет равна:

$$C_t = \chi_t \int_0^{E_{Cd}} \Sigma(E)\Phi(E)dE = \chi_t g_t \Sigma_t \Phi, \quad (7)$$

где Φ – флюенс тепловых нейтронов; Σ_t – макроскопическое сечение реакции при энергии нейтрона, соответствующей некоторой эффективной температуре $T_{эф}$, отличной от температуры среды T_0 ; g_t – фактор Весткотта, учитывающий отличие зависимости сечения тепловых нейтронов (n, γ)-реакции на ^{31}Si от закона $1/v$, χ_t – коэффициент самоэкранирования тепловых нейтронов (отношение числа вылетевших из кремния нейтронов к числу влетевших).

По данным работы [7] сечение (n, γ)-реакции на ^{30}Si в тепловой области строго следует закону $1/v$, т.е. $g_t = 1$. Из-за утечки и поглощения нейтронов $T_{эф} > T_0$, т.е. не все нейтроны достигают термодинамического равновесия с окружающей средой [6]. В частности, при

$$\Sigma_a(kT_0)/(\xi\Sigma_s) < 0.2, \quad (8)$$

где среднелогарифмическая потеря энергии

$$\xi = 1 + [(A-1)^2/(2A)] \ln[(A-1)/(A+1)], \quad (9)$$

Σ_a, Σ_s – макроскопические сечения поглощения и рассеяния замедлителя, k – постоянная Больцмана, A – массовое число ядер замедлителя, выражение для соответствующей некоторой эффективной температуры будет иметь вид:

$$T_{эф} = T_0[1 + 0.73A\Sigma_a(kT_0)/\Sigma_s]. \quad (10)$$

Например, для бериллиевого замедлителя $T_{эф} = 1.0066T_0$, т.е. $T_{эф} > T_0$ примерно на 2 К.

Из выражений (1), (3), (7)

$$\chi_t \Sigma_t \Phi = C - F_{Cd} C_{Cd}. \quad (11)$$

Таблица 1. Коэффициент самоэкранировки χ_t и эффективная оптическая толщина $d_{эф}$ кремниевой пластины радиусом r и толщиной d для тепловых нейтронов

$r, \text{ см}$	0.5			0.6			0.7		
$d, \text{ см}$	0.4	0.5	0.6	0.4	0.5	0.6	0.4	0.5	0.6
χ_t	0.996	0.995	0.995	0.996	0.995	0.994	0.995	0.995	0.994
$d_{эф}, \text{ см}$	0.583	0.657	0.717	0.634	0.720	0.793	0.677	0.774	0.859
$r, \text{ см}$	0.8			0.9			1.0		
$d, \text{ см}$	0.4	0.5	0.6	0.4	0.5	0.6	0.4	0.5	0.6
χ_t	0.995	0.994	0.994	0.995	0.994	0.993	0.995	0.994	0.993
$d_{эф}, \text{ см}$	0.7145	0.821	0.917	0.747	0.863	0.967	0.777	0.902	1.013
$r, \text{ см}$	1.1			1.2			1.3		
$d, \text{ см}$	0.4	0.5	0.6	0.4	0.5	0.6	0.4	0.5	0.6
χ_t	0.994	0.994	0.993	0.994	0.993	0.993	0.994	0.993	0.992
$d_{эф}, \text{ см}$	0.803	0.936	1.054	0.828	0.966	1.092	0.850	0.994	1.126

Тогда

$$\Phi = \frac{C}{\chi_t \Sigma_t} \left(1 - \frac{F_{Cd}}{R_{Cd}} \right). \quad (12)$$

А с учетом выражения (2) получим флюенс тепловых нейтронов, которым облучался кремний без кадмиевого фильтра:

$$\Phi = \frac{(\sigma - \sigma_0)}{e\mu_n \chi_t \Sigma_t} \left(1 - \frac{F_{Cd}}{R_{Cd}} \right). \quad (13)$$

где

$$R_{Cd} = C/C_{Cd} = (\sigma - \sigma_0)/(\sigma_{Cd} - \sigma_0) \quad (14)$$

есть кадмиевое отношение, которое определяется по экспериментальным значениям УЭП. От флюенса тепловых нейтронов легко перейти к среднему (за время облучения τ) значению плотности потока тепловых нейтронов (ϕ). По определению, $\phi = \Phi/\tau$. При этом ϕ является произведением объемной плотности нейтронов с энергией ниже граничной энергии кадмия на скорость нейтронов с энергией $kT_{эф}$, т.е. $\phi = nV$.

Определим значения F_{Cd} , χ_t и E_{Cd} для кремния. Обычно F_{Cd} принимают равным 1.01–1.04 [8]. Поэтому с погрешностью до 2% можно принять $F_{Cd} = 1.02$.

Коэффициент самоэкранирования χ_t тепловых нейтронов (отношение числа нейтронов, вылетевших из шайбы кремния, к числу нейтронов, влетевших в кремний) в изотропном нейтронном поле определяли расчетами. Расчеты были выполнены методом Монте-Карло путем прямого моделирования нейтронных траекторий в природном кремнии. Сечения были взяты из работы [7]. История нейтрона заканчивалась либо его поглощением, либо вылетом из кремния. Варьируемыми параметрами были радиус и толщина шайбы. Для каждого варианта разыгрывалось 10^7 нейтрон-

ных историй. Результаты расчетов приведены в табл. 1. Там же приведены эффективные оптические толщины, т.е. средние значения отрезков в пластине кремния по траектории влета в нее нейтрона.

Граничная энергия поглощения E_{Cd} кадмиевого цилиндрического фильтра, помещенного в изотропное нейтронное поле, определяется выражениями (5), (6). Например, в стандартном наборе детекторов АКН-Т есть фильтр диаметром 15 мм, высотой 10 мм и с толщиной стенки 1 мм. При использовании этого фильтра $E_{Cd} = 0.55$ эВ.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Возможность осуществления способа была подтверждена измерениями плотности потока тепловых нейтронов предложенным и активационными способами. Измерения проводились в канале ГЭК-4 Томского исследовательского ядерного реактора мощностью 6 МВт. Удельное электрическое сопротивление определяли 4-зондовым методом до и после облучения и отжига радиационных дефектов при температуре 800°C в течение 2 ч. Погрешность измерения среднего по торцу шайбы удельного сопротивления не превышала 3%. Непрерывный контроль флюенса тепловых нейтронов осуществляли с помощью штатных камер деления типа КтВ-4, используемых в технологии нейтронно-трансмутационного легирования кремния.

Определяли, как это описано, кадмиевые отношения для кремния $R_{Cd}(\text{Si})$ и для золота $R_{Cd}(\text{Au})$. Для этого образцы кремния в кадмиевом цилиндрическом пенале и без него располагали на оси канала ГЭК-4 симметрично относительно центра активной зоны реактора. Использовался цилиндрический пенал высотой 10 мм, диаметром 15 мм и с толщиной стенки 1 мм. Расстояние

между образцами составляло 15 см. Облучение проводили в течение 4 ч при мощности реактора 6 мВт. Исходное сопротивление образца, облучавшегося в Cd-фильтре, составляло 857 Ом · см, а без фильтра – 772 Ом · см. Конечные сопротивления были равны 593.5 и 99.5 Ом · см, соответственно. Из этого следует $R_{Cd}(Si) = 16.9$, $\Phi = 2.14 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ и $\phi = 1.48 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$. Детекторы из золота в том же кадмиевом пенале и без него облучали при мощности 100 кВт в течение 10 мин. Их размещали точно так же, как и образцы кремния. Кадмиевое отношение по золоту составило 4.36, а плотность потока тепловых нейтронов, приведенная к мощности реактора 6 мВт, была равна $1.44 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложенным в данной работе способом можно определять абсолютные значения плотности потока тепловых нейтронов при любом реакторном спектре нейтронов. При этом не требуется калибровки с помощью других методов, например активационных. Каждый монокристалл можно использовать многократно, в том числе и в качестве детектора сопровождения для контроля за флюенсом тепловых нейтронов в диапазоне $10^{15} - 10^{18} \text{ см}^{-2}$. Погрешность измерения флюенса тепловых нейтронов сопоставима с погрешностью активационных методов. При этом не важно меняется или не меняется плотность потока тепловых нейтронов за все время облучения. Кроме того, физическая информация (удельная электрическая проводимость), в отличие, например,

от активационного метода, сохраняется бесконечно долго. Это позволяет в любой момент времени перепроверить полученные результаты.

Исследования выполнены при поддержке программы повышения конкурентоспособности ТПУ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Бекуриц К.Г., Виртиц К.* Нейтронная физика. М.: Атомиздат, 1968.
2. *Крамер-Агеев Е.А., Трошин В.С., Тихонов Е.Г.* Активационные методы спектрометрии нейтронов. М.: Атомиздат, 1976.
3. *Ярына В.П.* Методика измерений характеристик полей тепловых и надтепловых нейтронов с помощью активационных детекторов // *Материалы нейтронных измерений на ядерно-физических установках (рекомендуемые справочные данные и методики измерений)*, М.: Изд-во ЦНИИАтоминформ, 1976. Т. 2. С. 17–33.
4. *Варлачев В.А., Емец Е.Г., Солодовников Е.С.* // *Известия вузов. Физика.* 2009. № 11/2. С. 409.
5. *Варлачев В.А., Солодовников Е.С.* // *ПТЭ.* 2009. № 3. С. 35.
6. *Тарновский Г.Б., Ярына В.П.* // *Тезисы докладов 3-го Всесоюз. совещания по метрологии нейтронного излучения на реакторах и ускорителях.* М.: Изд-во ЦНИИАтоминформ, 1982. С. 77.
7. *Evaluated nuclear reaction libraries (ENDF).* IAEA Nuclear Data Service. www-nds.iaea.org
8. *Крамер-Агеев Е.А., Лавренчик В.Н., Самосадный В.Т., Протасов В.П.* Экспериментальные методы нейтронных исследований. М.: Энергоатомиздат, 1990.