<u>https://doi.org/10.52676/1729-7885-2023-3-91-95</u> УДК 621.039.84

ИССЛЕДОВАНИЕ НЕЙТРОННО-ФИЗИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ОБЛУЧАТЕЛЬНОЙ КАПСУЛЫ, ПРЕДНАЗНАЧЕННОЙ ДЛЯ РАДИАЦИОННОГО ОКРАШИВАНИЯ ТОПАЗОВ В РЕАКТОРЕ ВВР-К

<u>М. Т. Айткулов</u>, Ш. Х. Гизатулин, А. М. Аханов, Н. К. Романова, К. С. Киселев, А. А. Шаймерденов^{*}, Ж. Т. Буғыбай, А. О. Бейсебаев

Институт ядерной физики, Алматы, Казахстан

*E-mail для контактов: aashaimerdenov@gmail.com

В данной работе представлены результаты исследования нейтронно-физических характеристик облучательной капсулы, предназначенной для радиационного окрашивания топазов. Исследования проведены в активной зоне критического стенда. Использовался сэндвич экран из порошка карбида бора и фольги тантала для отсечения тепловых нейтронов внутри капсулы. Показано, что при использовании сэндвич экрана поток тепловых нейтронов снижается в 8 раз, а плотность потока быстрых нейтронов практически не изменяется. Активация танталового монитора снижается более чем в 2 раза. Эффект реактивности от загрузки облучательной капсулы с экраном в активную зону составляет минус 0,9% $\Delta k/k$.

Ключевые слова: топазы, критический стенд, капсула, сэндвич экран, энергетический спектр нейтронов.

Введение

С целью повышения эффективности радиационного окрашивания топазов в реакторе ВВР-К были рассмотрены несколько разных конструкций облучательной капсулы и на основании проведенных комплексных расчетов была выбрана конструкция облучательной капсулы, позволяющая создать условия для эффективного окрашивания топазов [1]. Однако, только расчетных данных недостаточно для заключения об эффективности конструкции облучательной капсулы. Исходя из этого, были запланированы экспериментальные работы в два этапа. На первом этапе исследуются нейтронно-физические характеристики капсулы на критическом стенде (без проверки активации камней). На втором этапе проводятся полноценные эксперименты на реакторе ВВР-К. Основной целью экспериментов на критическом стенде является определение формирования нейтронного поля внутри облучательной капсулы с заданными характеристиками. В капсуле для отсечения тепловых нейтронов используется порошкообразный карбид бора. Для этого была изготовлена кольцеобразная матрица куда был засыпан порошок карбид бора. Важными аспектами экспериментов на критическом стенде также являются отработка технологии изготовления отсекающего экрана и изучение влияния капсулы на реактивность активной зоны.

Радиационное окрашивание топазов происходит за счет взаимодействия с быстрыми нейтронами (с энергией выше 1 МэВ), что приводит к формированию радиационно-индуцированных дефектов в кристаллической решетке топазов. Тепловые и эпитепловые нейтроны взаимодействуя с примесями, содержащихся в топазах, образуют радионуклиды. Такая активация радионуклидов приводит к увеличению времени охлаждения/отстоя камней и соответственно к увеличению времени оборота камней (время поставки Заказчику). [2–5]. В настоящей работе приведены результаты экспериментальных работ, проведенных на критическом стенде с макетом облучательной капсулы. Полученные результаты будут основой для разработки программы экспериментальных работ на реакторе BBP-K.

Материалы и методы

Облучательная капсула представляет собой капсулу с радиационным сэндвич экраном (рисунок 1). Капсула изготовлена из алюминиевого сплава САВ-1. Радиационный сэндвич экран состоит из внешнего танталового экрана толщиной 0,1 мм и внутреннего экрана из карбида бора толщиной 1 мм. Используются боковые и торцевые экраны. Капсула имеет отверстия для протока теплоносителя и охлаждения топазов. Высота полезного объема в капсуле составляет 50 мм, с учетом установленного экрана.

Карбид бора используется в качестве порошка и для сохранения кольцеобразной и дисковой формы экрана были изготовлены соответствующие матрицы из алюминиевого сплава САВ-1. Кольцеобразная форма экрана представляет собой два коаксиальных цилиндра с зазором 1 мм, в который засыпается порошок карбида бора. Дисковая форма экрана представляет собой два диска с зазором 1 мм, в который также засыпается порошок карбида бора. Засыпная плотность карбида бора составила 1,53 г/см³. После засыпки порошка в формы они герметизировались с помощью аргонодуговой сварки.

Танталовый экран был изготовлен из металлической фольги тантала. Плотность тантала составляет 16,65 г/см³.

Порядок загрузки экранов в капсулу был следующий: загружаются нижние торцевые экраны из карбида бора и тантала, затем устанавливаются боковые экраны и далее сверху устанавливаются верхние торцевые экраны.

ИССЛЕДОВАНИЕ НЕЙТРОННО-ФИЗИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ОБЛУЧАТЕЛЬНОЙ КАПСУЛЫ, ПРЕДНАЗНАЧЕННОЙ ДЛЯ РАДИАЦИОННОГО ОКРАШИВАНИЯ ТОПАЗОВ В РЕАКТОРЕ ВВР-К



Рисунок 1. Компоненты облучательной капсулы: (а) капсула, (б) боковой экран из тантала, (в) торцевой экран из карбида бора, (г) боковой экран из карбида бора, (д) торцевой экран из тантала

Качество изготовленного экрана из карбида бора было проверено с помощью неразрушающего метода нейтронной радиографии на установке TITAN [7]. Проведены радиографические/томографические исследования внутренней структуры экрана и изучено распределение порошка карбида бора в алюминиевой матрице. При нейтронной радиографии исследуемый объект облучается коллимированным потоком нейтронов, где различие в нейтронных сечениях поглощения для разных элементов объекта дает информацию о внутреннем распределении неоднородностей исследуемых материалов [8].

Облучательная капсула была установлена в ячейку 9-9 (центральная позиция) активной зоны критического стенда (см. рисунок 2). Критический стенд является реактором нулевой мощности и предназначен для моделирования активных зон легководных реакторов и исследования нейтронно-физических характеристик различных конфигураций активных зон и конструкций экспериментальных устройств [6]. Критический стенд состоит из критической сборки и комплекса аппаратуры для контроля ядерно-физических процессов. Критическая сборка позволяет моделировать активную зону исследовательского реактора ВВР-К. Основные физико-технические характеристики критического стенда приведены в таблице 1.



Рисунок 2. Активная зона критического стенда

Для измерения энергетического распределения нейтронов в капсуле применялся нейтронноактивационный метод, суть которого заключается в облучении в исследуемом нейтронном поле активационных детекторов и дальнейшем измерении наведенной активности детектора, и последующем определении плотности потока нейтронов [9].

T ~	1	17		~	~
Iannu	ar	Хапакте	тистики	ктитической	COOREN
1 0.0510104		mapane	pucmunu	npuntu teenou	coopma

Тип реактора	баковый
Тепловая мощность, Вт	100
Отражатель	легкая вода и/или бериллий
Замедлитель	легкая вода и/или бериллий
Максимальный поток тепловых нейтронов, см-2с-1	3·109
Максимальный поток быстрых нейтронов, см ⁻² с ⁻¹	2·10 ⁸
Топливная композиция	UO2+AI
Обогащение по изотопу U-235, %	19,7
Диаметр экспериментальных каналов, мм	65, 96, 140

Исследование энергетического спектра нейтронов в капсуле проводилось для двух областей: тепловая область (E_n < 0,625 эВ) и быстрая область (E_n > 1,15 МэВ). Плотность потока тепловых нейтронов измерялась с помощью активационных детекторов из золота, активация которых проходила по ядерной реакции радиационного захвата $^{197}Au(n,\gamma)^{198}Au$. Детекторы из золота облучались в кадмиевых экранах и без них. По разности наведенной активности в золотых детекторах в кадмиевом экране и без него определялась плотность потока тепловых нейтронов. Плотность потока быстрых нейтронов измерялась с помощью активационных детекторов из индия, активация которых проходила по следующей ядерной реакции ¹¹⁵In (n,n')^{115т}In. Детекторы из индия облучались в кадмиевых экранах. При этом индиевый детектор является пороговым. Детекторы располагались внутри капсулы и среди топазов. Плотность потока нейтронов рассчитывалась по следующей формуле:

$$\Phi = \frac{S}{\varepsilon \cdot \varphi \cdot t_{u_{3M}}} \cdot \frac{1}{\eta} \cdot \frac{10^{24}}{\sigma} \times \frac{t_{u_{3M}} \cdot \lambda}{\left(1 - e^{-\lambda \cdot t_{oxs}}\right) \cdot \left(1 - e^{-\lambda \cdot t_{oxs}}\right) \cdot e^{-\lambda \cdot t_{oxs}}},$$
(1)

где η – количество ядер на детектор, $t_{o\delta n}$ – время облучения, λ – постоянная распада, $t_{u_{3M}}$ – время измерения, t_{oxn} – время охлаждения, σ – эффективное сечение, S – площадь пика, ε – эффективность регистрации, ϕ – квантовый выход;

Дополнительно использовался танталовый монитор для оценивания его активации при разных конфигурациях облучательной капсулы. Монитор представляет собой тонкую пластину из фольги тантала с размером 5×2 мм.

Наведенная активность гамма-излучения активационных детекторов измерялась с помощью широкодиапазонного (от 3 кэВ до 3 МэВ) германиевого гамма-спектрометра Canberra GX 2518, с относительной эффективностью 25%. Перед началом работ гаммаспектрометр был откалиброван набором образцовых источников ОСГИ, по изотопам Eu-152, Cs-137, Co-60.

Следует отметить, что при исследовании энергетического спектра нейтронов были использованы натуральные бесцветные топазы (страной происхождения топазов является Бразилия). Они загружались в капсулу. Хотя интенсивности потока нейтронов на критическом стенде недостаточно для их окрашивания, они использовались для формирования реальных условий при радиационном окрашивании топазов в реакторе BBP-K.

Результаты и обсуждение

Неразрушающим методом исследована внутренняя структура экрана из карбида бора. Результаты исследования показали, что получена хорошая однородность распределения порошка карбида бора внутри экрана (рисунок 3). Коэффициент неравномерности засыпки по высоте не превышает 9%.

Исследовано распределение плотности потока нейтронов для двух энергетических групп и для четырех конфигураций капсулы:

 Вариант 1: капсула без экрана, т.е. пустая капсула;

Вариант 2: капсула с топазами;

Вариант 3: капсула с экраном из карбида бора и топазами;

 Вариант 4: капсула с сэндвич экраном и топазами.

Облучение активационных детекторов проводили при мощности критического стенда около 40 Вт и не менее трех раз для каждого типа измерения и дальнейшее определение плотности потока нейтронов осуществлялось по формуле (1). Полученные результаты энергетического распределения нейтронов приведены в таблице 2. Следует отметить, что данные, приведенные в таблице 2, соответствуют усредненным значениям плотности потока нейтронов.



Рисунок 3. Экран из карбида бора: (а) фото бокового экрана, (б) томографический снимок экрана, (в) фото торцевого экрана, (г) радиографический снимок торцевого экрана

Таблица 2. Плотность потока тепловых и быстрых нейтронов в капсуле

Kaudaumanuma	Плотность потока нейтронов, см ⁻² с ⁻¹		
конфитурация	E _n < 0,6259B	E _n > 1,15 МэВ	
Вариант 1	(1,28±0,11)·10 ⁹	(2,38±0,20)·10 ⁸	
Вариант 2	(8,76±0,62)·10 ⁸	(2,45±0,19)·10 ⁸	
Вариант 3	(1,72±0,14)·10 ⁸	(2,15±0,18)·10 ⁸	
Вариант 4	(1,54±0,62)·10 ⁸	(2,28±0,17)·10 ⁸	

Из таблицы 2 видно, что при использовании сэндвич экрана плотность потока тепловых нейтронов снижается более чем в 8 раз (или в 5,7 раз при сравнении с заполненной камнями капсулы), что также приведет к снижению активации примесей, содержащихся в топазах. При этом плотность потока быстрых нейтронов снижается незначительно, на 4%.

Другим важным аспектом проверки эффективности разработанной конструкции капсулы является исследование активации примесей в камнях. Для этого использовался монитор из тантала, а также определялся радионуклидный состав камней, использованных в экспериментах на критическом стенде. Динамика изменения гамма-активности монитора из тантала при изменении конфигурации капсулы показана на рисунке 4.

Из рисунка 4 видно, что использование сэндвич экрана приводит к уменьшению активации монитора из тантала в 2,2 раза, что приведет к уменьшению времени охлаждения (отстоя) камней в 2 раза (по данному радиоизотопу).



Рисунок 4. Динамика изменения наведенной активности монитора из тантала

Проведен радионуклидный анализ топазов. Обнаружены только три эмиттера гамма-излучения: Ga-72, Na-24 и Ta-182 (см. рисунок 5). Количественная оценка приведена в таблице 3.



Рисунок 5. Гамма-спектр топазов, облученных в критическом стенде

Таблица 3. Радионуклидный состав топазов после облучения в капсуле с разными конфигурациями экранов

	Удельная активность, Бк/г				
Тип макета	Ga-72 (Т _{1/2} =14,1 ч)	Na-24 (Т _{1/2} =14,9 ч)	Та-182 (Т _{1/2} =114 д)		
Вариант 1	1290±70	28658±1146	23±3		
Вариант 3	316±16	12600±447	15±4		
Вариант 4	302±43	13666±548	ниже предела обнаружения		

Из данных, приведенных в таблице 3, отчетливо видно снижение активации примесей в топазах (не менее, чем в два раза). Данные, приведенные в таблице 3, соответствуют концу облучения. Наведенная активность тантала (Та-182) ниже пределов чувствительности гамма-спектрометра при использовании сэндвич экрана. Из чего можно сделать вывод, что тантал практически не активировался. Но в случае других нуклидов прослеживается существенное снижение активностей после облучения в капсуле с сэндвич экраном. Конечно же полноценную эффективность разработанного экрана можно будет определить по экспериментам на реакторе BBP-K (такие работы запланированы на следующем этапе работ) так как из-за маленькой мощности критического стенда примеси в топазах активируются незначительно.

Еще одной важной нейтронно-физической характеристикой является эффект реактивности, вносимый от загрузки/выгрузки облучательной капсулы в/из активной зоны. Данная характеристика влияет на ядерную безопасность реактора. Экспериментальное значение эффекта реактивности от загрузки макета облучательной капсулы с сэндвич экраном в активную зону составило минус 0,9% $\Delta k/k_{\perp}$

Выводы

В данной работе приведены результаты исследования энергетического распределения нейтронов в облучательной капсуле с различными конфигурациями. Плотность потока тепловых нейтронов в капсуле с топазами составила $1,3 \cdot 10^9$ см⁻²с⁻¹, а плотность потока быстрых нейтронов 2,4·10⁸ см⁻²с⁻¹. При использовании экрана из карбида бора плотность потока тепловых нейтронов снижается в 7 раз, а плотность потока быстрых нейтронов на 11%. А при использовании сэндвич экрана из карбида бора и тантала плотность потока тепловых нейтронов снижается в 8 раз, а плотность потока быстрых нейтронов на 4%. Кроме того, использование монитора из тантала показывает снижение его активности более чем в 2 раза. Результаты радионуклидного анализа облученных топазов показали, что происходит уменьшение наведенной активности радиоизотопов Ga-72, Na-24 и Та-182 не менее чем в 2 раза. Однако, из-за малой мощности критического стенда топазы не окрашиваются и слабо активируются, что делает невозможным оценивание влияния экрана на активацию камней. Загрузка капсулы с сэндвич экраном и топазами приводит к введению отрицательной реактивности равной 0,9% ∆k/k, что необходимо учитывать при проведении перегрузочных работ.

Финансирование

Данное исследование было профинансировано Комитетом науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (No. BR10965174).

Благодарности

Авторы благодарят Кенесарина Мурата за помощь в проведении нейтроннографических исследований на установке TITAN.

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

- A.M. Akhanov, M.T. Aitkulov, D.S. Sairanbayev, Sh.Kh Gizatulin, N.K. Romanova, A.A. Shaimerdenov, Y.V. Chikhray, Zh Ualzhanov, T.K. Zholdybayev, Irradiation capsule design for neutron coloration of topaz in a WWR-K reactor, Applied Radiation and Isotopes, Vol. 190, 2022, 110472, ISSN 0969-8043 https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2022.110472.
- Leal A.S., Krambrock K., Ribeiro L.G.M., Menezes M.A., Vermaercke P., Sneyers L., 2007. Study of neutron irradiation-induced colors in Brazilian topaz. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 580, 423–426. https://doi.org/doi:10.1016/j.nima.2007.05.069

- 3. International Atomic Energy Authority (IAEA), 2001. The Applications of Research Reactors IAEA-TECDOC-1234. IAEA.
- Mohamed Nader M.A., Gaheen M.A., 2016. Design of fast neutron channels for topaz irradiation. Nuclear Engineering and Design. 310, 429–437. https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2016.11.001
- Baitelesov S.A., Ibragimova E.M., Kungurov F.R., Salikhbaev U.S., 2011. Effect of the VVR-SM neutron spectrum on the radioactivity and color of natural topazes. Atomic Energy. 109, 355–361.
- 6. А. А. Шаймерденов, Ф.М. Аринкин, Ш.Х. Гизатулин, Д.С. Дюсамбаев, С.Н. Колточник, П.В. Чакров, Л.В. Чекушина, И.В. Шаманин Пуск и нейтронно-физические характеристики критического стенда РГП «Институт ядерной физики» РК с низкообогащенной активной зоной // Альтернативная энергетика и экология, № 23 (187), С. 51–59, – Саров, Россия – 2015. [А. А. Shaymerdenov, F.M. Arinkin, Sh.Kh. Gizatulin, D.S. Dyusambaev, S.N. Koltochnik, P.V. Chakrov, L.V. Chekushina, I.V. Shamanin Pusk i neytronno-fizicheskie kharakteristiki kriticheskogo stenda RGP «Institut yadernov fiziki» RK s nizkoobogashchennov aktivnoy zonov //

Al'ternativnaya energetika i ekologiya, No. 23 (187), P. 51–59, – Sarov, Rossiya – 2015. (In Russian)]

- D.S. Dyussambayev, M.T. Aitkulov, A.A. Shaimerdenov, B. Mukhametuly, K. Nazarov, A. Kaestner, N. Pessoa Barradas, D.S. Sairanbayev, A.S. Dikov, E.M. Bazarbayev, TITAN neutron imaging facility performance, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Volume 1039, 2022, 167078, ISSN 0168-9002, https://doi.org/10.1016/j.nima.2022.167078.
- Nazarov K.M., Mukhametuly B., Kichanov S.E., Zholdybayev T.K., Shaimerdenov A.A., Karakozov K.B., Dyussambayev D.S., Aitkulov M.T., Yerdauletov M., Napolskiy P., Kenessarin M., Kalymkhan E.K., Imamverdiyev N.A., Jabarov S.H. Non-destructive analysis of materials by neutron imaging at the TITAN facility / Eurasian Journal of Physics and Functional Materials 2021, 5(1), 6–14
- Aitkulov M.T., Dyussambayev D.S, Romanova N.K., Gizatulin Sh. Kh., Shaimerdenov A.A., Bugybay Zh. T., Kisselyov K.S. and Beisebayev A.O., Measurement of the spatial-energy distribution of neutrons in the irradiation channel of the critical facility / 2022 J. Phys.: Conf. Ser. 2155 012021

ССР-Қ РЕАКТОРЫНДА ТОПАЗДАРДЫ РАДИАЦИЯ АРҚЫЛЫ ТҮСІН ӨЗГЕРТУГЕ ТАҒАЙЫНДАЛҒАН СӘУЛЕЛЕНДІРУ КАПСУЛАСЫНЫҢ НЕЙТРОНДЫҚ-ФИЗИКАЛЫҚ СИПАТТАМАЛАРЫН ЗЕРТТЕУ

<u>М. Т. Айткулов</u>, Ш. Х. Гизатулин, А. М. Аханов, Н. К. Романова, К. С. Киселев, А. А. Шаймерденов^{*}, Ж. Т. Буғыбай, А. О. Бейссбаев

Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан

*Байланыс үшін E-mail: aashaimerdenov@gmail.com

Бұл мақалада ССР-Қ реакторында топаздардың түсін радиация арқылы өзгертуге арналған сәулелендіру капсуласының нейтрон-физикалық сипаттамаларын зерттеудің нәтижелері ұсынылған. Зерттеу сындық стендтің белсенді аймағында жүргізілді. Капсуланың ішіндегі жылу нейтрондарын бөлу үшін ұнтақты карбид борынан және тантал фольгасынан тұратын сэндвич экран пайдаланылды. Сэндвич экранды пайдаланған кезде жылу нейтрондарының тығыздығы 8 есе төмендейтіні, ал жылдам нейтрондар тығыздығы өзгермейтіндігі көрсетілген. Тантал мониторының белсенділігі екі еседен көп төмендейді. Сәулелендіру капсуласын белсенді аймаққа салған кездегі реактивтілік әсерінің мәні минус 0,9% Δk/k құрады.

Түйін сөздер: топаз, сындық стенд, капсула, сэндвич экран, нейтрондардың энергетикалық спектрі.

INVESTIGATION OF NEUTRON-PHYSICAL CHARACTERISTICS OF THE IRRADIATION CAPSULE DESIGNED FOR RADIATION COLORING OF TOPAZ IN THE WWR-K REACTOR

<u>M. T. Aitkulov</u>, Sh. Kh. Gizatulin, A. M. Akhanov, N. K. Romanova, K. S. Kisselyov, A. A. Shaimerdenov^{*}, Zh. T. Bugybay, A. O. Beisebayev

Institute of Nuclear Physics, Almaty, Kazakhstan

*E-mail for contacts: aashaimerdenov@gmail.com

This paper presents the results of the study of neutron-physical characteristics of an irradiation capsule designed for radiation coloring of topazes. The studies were performed in the core of the critical facility. Sandwich screen made of boron carbide powder and tantalum foil was used to cut off thermal neutrons inside the capsule. It is shown that using sandwich screen the thermal neutron flux is reduced by 8 times, and the fast neutron flux density is practically unchanged. The activation of the tantalum monitor is reduced by more than a factor of 2. The reactivity effect from loading the irradiation capsule with the screen into the core is minus 0.9% $\Delta k/k$.

Keywords: topazes, critical facility, capsule, sandwich screen, neutron energy spectrum.