

## НАКОПЛЕНИЕ РАДИАЦИОННЫХ ПОВРЕЖДЕНИЙ В БЕРИЛЛИИ ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ УСКОРИТЕЛЕЙ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ

*А.В. Бабун, А.А. Васильев, К.В. Ковтун, Г.Д. Пугачев, М.П. Старолат, Б.А. Шиляев  
Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,  
Харьков, Украина*

Описан метод накопления радиационных повреждений облучением бериллия с использованием ускорителей заряженных частиц. Под действием пучков высокоэнергетических электронов и  $\gamma$ -квантов имитируются явления, происходящие в материалах ядерных и термоядерных реакторов. Установлена корреляция между реакторными и имитационными экспериментами, что позволяет прогнозировать изменение механических свойств материалов в условиях эксплуатации.

Исследования изменений физических свойств облучаемых материалов, а также воздействие радиации на их структуру являются весьма актуальными проблемами физики твердого тела и радиационного материаловедения [1]. Основными аспектами этих проблем, имеющих практическое значение, являются: создание конструкционных материалов с улучшенными или новыми свойствами, а также возможность управления их радиационной стойкостью. Очевидно, что эти решения зависят от того, насколько полно изучены структурные состояния, реализующиеся в кристаллах с определенной структурой и межатомными связями, и их зависимость от примесей. Все эти факторы определяют характер итоговых дефектов, их форму, размер, ориентацию, расположение по объему облучаемого кристалла и могут играть важную роль в податливости кристаллической структуры к частичной или полной перестройке ее на некотором этапе облучения.

Ранее был предложен и научно обоснован метод облучения реакторных материалов с использованием ускорителей заряженных частиц [2] для имитации и изучения влияния облучения на свойства материалов ядерных и термоядерных реакторов. Эта методика позволяет в дальнейшем реализовать проведение фундаментальных исследований радиационной повреждаемости широкого круга конструкционных материалов.

Преимуществом этого метода является относительная простота конструкций камер-мишеней, их изготовления и проведения экспериментов. Важно также то обстоятельство, что использование систем фокусирования заряженных частиц позволяет облучать только рабочую часть образцов. Поэтому по сравнению с образцами, облученными в реакторе, образцы после ( $e, \gamma$ )-облучения имеют значительно меньший уровень наведенной активности. Эти обстоятельства позволяют существенно сократить срок подготовки имитационных экспериментов и последующих исследований образцов. Кроме того, практика показала, что на 2 ГэВ-ускорителе электронов для достижения на образцах флюенса  $2 \cdot 10^{21}$  эл./см<sup>2</sup> (этот уровень по накоплению гелия эквивалентен  $2 \cdot 10^{23}$  быстр.нейтр./см<sup>2</sup>) при энергии электронов 230 МэВ достаточно ~1000 часов.

Целью настоящей работы была отработка методики, позволяющей в дальнейшем провести изучение радиационной стойкости изотропного бериллия при облучении его пучками электронов и сопоставление такой обработки с условиями нейтронного облучения при равном наборе дозы радиационного повреждения в единицах смещений на атом (сна).

Бериллий обладает малым сечением поглощения и высоким сечением рассеяния нейтронов. Использование бериллия, например, в космических ядерных реакторах в качестве замедлителя и отражателя нейтронов позволяет уменьшить критическую загрузку ядерного топлива и увеличить ресурс энергетической установки космических аппаратов. Кроме того, бериллий обладает наивысшим значением качества по резонансным нейтронам (отношением плотности потока  $\phi_p$  резонансных нейтронов к мощности  $Q$  источника быстрых нейтронов), превосходя по этому параметру графит, легкую и тяжелую воду.

В настоящее время автор работы [3] достаточно подробно систематизировал наиболее важные результаты многолетних реакторных испытаний ряда промышленных и опытных модификаций бериллия. Рассмотрены и обсуждены причины и механизмы основных проявлений их радиационных повреждений. Необходимо отметить, что под воздействием значительных нейтронных потоков многие из практически важных характеристик бериллия претерпевают существенные изменения. А срок его службы в качестве реакторного материала обычно определяется степенью изменения его физико-механических свойств в результате облучения. Кроме того, серьезным недостатком бериллия является заметное растрескивание и охрупчивание при облучении большими дозами нейтронов. Так, например, в реакторе типа СМ [4] металлический бериллий используется в качестве конструкционного материала отражателя и замедлителя нейтронов. Из бериллия изготовлены блоки отражателя, окружающие активную зону по периметру, а также вкладыши нейтронной ловушки, размещенные вокруг центрального канала. В активной зоне реактора бериллий находится под действием интенсивного нейтронного потока с жестким энергетическим спектром. В результате, бериллий подвергается значительному радиационному повреждению.

В работах [5, 6] показано, что к разупрочнению и охрупчиванию бериллия, а также к образованию трещин в блоках приводит эффект так называемой радиационно-свеллинговой анизотропии. Он заключается в различии распухания отдельных зерен по величине в разных кристаллографических направлениях, приводящих к росту зернограничных напряжений и ослаблению границ. При этом распухание материала блоков в состоянии после облучения находится на уровне 0,5...1,5 %. Проведение высокотемпературных отжигов этого материала сопровождается заметным увеличением распухания, которое наблюдается, начиная с 600°C, а при 800...1000°C уже достигает критических значений и составляет несколько десятков процентов.

Физическим механизмом радиационного распухания является образование в объеме материала пор в результате "конденсации пара" избыточных вакансий. Облучение создает в металлической матрице пары Френкеля (вакансия + межузельный атом). Межузельные атомы, имеющие более высокую подвижность по сравнению с вакансиями, поглощаются стоками (дислокации, границы зерен и т.п.), либо образуют межузельные дислокационные петли. В результате, при длительном облучении металлических образцов в их объеме устанавливается некоторая стационарная концентрация избыточных вакансий. При некоторых условиях система избыточных вакансий становится неустойчивой, т.е. вакансии, растворенные в металлической матрице, представляют собой распадающийся раствор. В процессе распада происходит образование новой фазы – фазы пустоты.

Наиболее перспективным с точки зрения объяснения всех основных закономерностей радиационного распухания и деградации бериллия представляется механизм диффузионно-деформационной неустойчивости. Суть этого механизма заключается в предположении, что избыточные вакансии в металлической матрице являются источником макроскопических упругих напряжений растяжения. Учет этих упругих напряжений в энергии Гиббса приводит к возникновению явления восходящей диффузии вакансий, что и приводит к появлению пор.

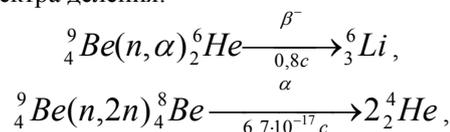
В настоящее время основным направлением создания новых более радиационноустойчивых конструкционных материалов является модифицирование металлов примесями. С этой точки зрения представляет интерес возможность использования экспериментальных сортов изотропного бериллия в качестве современного материала активной зоны реактора.

Для оценки возможности использования в конструкциях ядерных реакторов изотропных сортов бериллия, в том числе, полученных на основе сферических порошков и представляющих собой дисперсионно-упрочненный сплав сложного состава, необходимо проведение длительных реакторных испытаний, когда образцы исследуемых материалов помещают в активную зону реактора для набора необходимого флюенса нейтронов. Подобные испытания можно смоделировать, используя ускоренные пучки заряженных частиц (протонов,  $\alpha$ -частиц, электронов, дейтронов и тяжелых ионов) [7,8].

Образцы изотропного изостатически прессованного (ГИП) бериллия чистотой 99,63 % по бериллию, облучались на ускорителе ЛУ-ННЦ ХФТИ электронами с энергией 30 МэВ при плотности тока пучка 1,5...2,0 мкА/см<sup>2</sup>, что соответствует плотности 10<sup>13</sup> эл./см<sup>2</sup>·с. Во время облучения образцы охлаждались проточной водой. Температура образцов при облучении не превышала 40°C. Флюэнс – 10<sup>19</sup> эл./см<sup>2</sup> был набран за 4 сеанса в течение месяца.

Уровень наведенной активности, измеренный вплотную к поверхности образца, спустя 3 недели после облучения составил 21 мкР/ч. Эта активность создается изотопом <sup>7</sup>Ве (с периодом полураспада 53,3 суток), который образуется согласно реакции <sup>9</sup>Ве( $\gamma$ , 2n)→<sup>7</sup>Ве.

С целью анализа полученных данных и сопоставления их с результатами облучения быстрыми нейтронами ( $E_n > 0,1$  МэВ), для которых существенный вклад в радиационное упрочнение и вакансионное распухание вносят атомы гелия, образующиеся в ядерных реакциях трансмутации в потоке нейтронов спектра деления:



для бериллия был рассчитан энергетический спектр  $\sigma(T)$  первично выбитых атомов (ПВА), определена каскадная функция  $\nu(T)$  и получен выход образования точечных дефектов (пар Френкеля)

$$Y_{\text{вых}} = \int_{2E_d}^{T_{\text{max}}} \sigma(T) \nu(T) dT,$$

что позволило рассчитать скорость набора дозы радиационного повреждения (сна/с) и дозу облучения.

Скорость образования смещений (сна/с) при облучении Ве электронами с энергией 30 МэВ, равная 1·10<sup>-11</sup> сна/с, является типичной радиационной нагрузкой на сталь корпуса реактора ВВЭР-1000 [9, 10].

При взаимодействии электронов с образцом возникают дефекты за счет упругого и неупругого рассеяния электронов, образования нейтронов и ядер гелия как продуктов фотоядерных реакций. Расчеты показывают, что максимальная энергия, передаваемая ядру бериллия электронами с энергией 30 МэВ, не превышает 0,2 МэВ, а для адекватного моделирования взаимодействия реакторных нейтронов с металлом необходима энергия электронов 200 МэВ. Тогда сечение радиационного повреждения смещений  $\sigma_d$  будет соответствовать аналогичному сечению радиационного повреждения бериллия нейтронами деления.

Для оценки степени вакансионного распухания были рассчитаны концентрации каскадных вакансионных кластеров, образуемых при делении сплошной зоны каскадных столкновений на субкаскадные образования [11]. Субкаскадные образования являются зародышами вакансионных пор. Они обогащены вакансиями (средняя локальная плотность вакансий  $\approx 2\%$  для кристаллической ГПУ-решетки бериллия), средний размер кластера  $\sim 16$  решеточных мест (диаметр), или 4...6·10<sup>-3</sup> мкм.

Скорость образования смещений под действием нейтронов спектра деления значительно выше, чем под действием электронов с энергией 30 МэВ. Отсюда можно сделать вывод, что концентрация вакансионных кластеров достигнет равновесного уровня насыщения, определяемого конкуренцией процессов их образования. Скорость термического разложения (диссоциации) при температуре облучения будет низкой. Например, для стали подвижность вакансий заметна лишь при температуре  $> 200^{\circ}\text{C}$ .

Высокая температура облучения является причиной высокой скорости термического разложения вакансионных кластеров, и они становятся источниками вакансий. Термомеханическая обработка материала создает высокую плотность дислокаций, которые являются стоками точечных дефектов, что приводит к увеличению инкубационного периода вакансионного распухания.

Проведенные эксперименты позволяют оценить требуемые параметры электронных пучков при облучении бериллиевых образцов, приводящие к радиационной повреждаемости, адекватной воздействию нейтронов, а также уровни их облучения при больших энергиях и флюенсах электронов в случае проведения модельного облучения.

Тем самым установлена корреляция между реакторными и имитационными экспериментами, что позволяет при последующих исследованиях прогнозировать изменение механических свойств материалов в условиях эксплуатации.

#### БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. А.Д. Амаев, А.М. Крюков, И.М. Неклюдов, А.М. Паршин и др. *Радиационная повреждаемость и работоспособность конструкционных материалов*. С.-Петербург: Изд-во «Политехник», 1997.
2. В.Ф. Зеленский, И.М. Неклюдов, Л.С. Ожигов и др. *Использование ускорителей заряженных частиц для имитации и изучения влияния облучения на механические свойства материалов ядерных и термоядерных реакторов*: Препринт ХФТИ, Харьков, 1990, 31с.
3. Г.А. Серняев. *Радиационная повреждаемость бериллия*. Изд-во «Екатеринбург», 2001, с.395.
4. V.P. Chakin. Radiation Damage of Beryllium Blocks of an SM Reactor // *The Physics of Metals and Metallography*. 1999, v.88, №2, p.200-204.
5. В.П. Гольцев, Г.А. Серняев, З.И. Чечеткина. *Радиационное материаловедение бериллия*. Минск: «Наука и техника», 1977.
6. V.P. Chakin, A.O. Posevin and I.B. Kupriyanov. Swelling, mechanical properties and microstructure of beryllium irradiated at  $200^{\circ}\text{C}$  up to extremely high neutron doses // *Journal of Nuclear Materials*. 2007, v.367-370, part.2, p.1377-1381.
7. А.В. Бабун, А.А. Васильев, К.В. Ковтун, Г.Д. Пугачев, М.П. Старолат, Б.А. Шилиев. Моделирование поведения реакторного изотропного бериллия при облучении его пучками электронов // *Сборник докладов Международной конференции МЕЕ 2010 «Материалы и покрытия в экстремальных условиях: исследования, применение, экологически чистые технологии производства и утилизации изделий»*. Киев, 2010, с.251.
8. Б.А. Шилиев, А.В. Бабун, А.А. Васильев, К.В. Ковтун, Г.Д. Пугачев, М.П. Старолат. Радиационная стойкость бериллия в потоке электронов с энергией 30 МэВ // *Международная конференция по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению*. Алушта, 2010, с.306-307.
9. Г.Н. Кинчин и Р.С. Пиз. Смещение атомов в твердых телах под действием излучения // *Успехи физических наук*. 1956, т.LX, в.4, с.590-615.
10. V.P. Chakin, V.A. Kazakov, R.R. Melder, Yu.D. Goncharenko and I.B. Kupriyanov. Effects of neutron irradiation at  $70...200^{\circ}\text{C}$  in beryllium // *Journal of Nuclear Materials*. 2002, v.307-311, part.1, p.647-652.
11. М. Томпсон. *Дефекты и радиационные повреждения в металлах*. М.: «Мир». 1971.

Статья поступила в редакцию 25.09.2011 г.

#### ACCUMULATION OF RADIATION DAMAGES IN A BERYLLIUM AT USING ACCELERATOR OF THE CHARGED PARTICLES

*A.V. Babun, A.A. Vasilyev, K.V. Kovtun, G.D. Pugachev, M.P. Starolat, B.A. Shilyaev*

The method of accumulation of radiation damage by irradiation of beryllium using charged particle accelerators is described. Under the influence of high-energy beams of electrons and  $\gamma$ -rays simulated phenomena occurring in materials of nuclear and thermonuclear reactors. The correlation between the reactor experiments and simulations, which in enables us to predict the mechanical properties of materials in service conditions.

#### НАКОПИЧЕННЯ РАДІАЦІЙНИХ ПОШКОДЖЕНЬ В БЕРИЛІЇ ПРИ ВИКОРИСТАННІ ПРИСКОРЮВАЧІВ ЗАРЯДЖЕНИХ ЧАСТИНОК

*А.В. Бабун, А.А. Васильєв, К.В. Ковтун, Г.Д. Пугачев, М.П. Старолат, Б.А. Шилиєв*

Описаний метод накопичення радіаційних пошкоджень опромінюванням берилію з використанням прискорювачів заряджених часток. Під дією пучків високоенергетичних електронів і  $\gamma$ -квантів імітуються явища, що відбуваються в матеріалах ядерних і термоядерних реакторів. Встановлена кореляція між реакторними і імітаційними експериментами, що дозволяє прогнозувати зміну механічних властивостей матеріалів в умовах експлуатації.