

УСЛОВИЯ СОЗДАНИЯ НОВЫХ ПРОИЗВОДСТВ ЯДЕРНОГО ЛЕГИРОВАНИЯ КРЕМНИЯ И РАДИАЦИОННОГО ОКРАШИВАНИЯ МИНЕРАЛОВ НА БАЗЕ ИЯР ИВВ-2М

Дьяков А.А., Ланских В.Н., Суров С.В.
(АО «ИРМ», г. Заречный, Свердловской области, Россия)

Введение

Постоянно меняющаяся конъюнктура рынка, рост спроса на новые товары и услуги, включая задачи по импортозамещению в области использования атомной энергии ставят перед поставщиками услуг все новые и новые задачи, решение которых выходит за рамки проектов действующих исследовательских ядерных установок.

Поиск решений данных задач приводит к необходимости оптимизации существующих проектных решений и модернизации исследовательских ядерных реакторов.

Это крайне важно как с точки зрения освоения новых рынков товаров и услуг и повышения эффективности эксплуатации действующих реакторов, так и с точки зрения отработки инновационных решений для проектов будущих исследовательских реакторных установок.

В 2020 году АО «ИРМ» совместно с АО «НИКИЭТ» провели НИОКР на темы:

- Обоснование технических условий для создания лаборатории ядерного легирования кремния (ЯЛК) на базе ИЯУ ИВВ-2М [1];
- Обоснование технических условий для создания каналов ядерного легирования кремния в баке исследовательского ядерного реактора ИВВ-2М [2].

В результате НИОКР предложены проектные решения по оптимизации реакторного пространства бака реактора ИВВ-2М, размещению оборудования производства ЯЛК и технологические режимы производства. На основании результатов работ разработано техническое задание на проектирование облучательных каналов и технологической линии производства ЯЛК на действующем ИЯР ИВВ-2М.

В результате патентных исследований на уровень техники и тенденции развития технологии ЯЛК в ИЯР было установлено, что вне реакторная технологическая линия производства ЯЛК может с успехом использоваться и для налаживания производства радиационного окрашивания минералов. В частности, подобный опыт был изучен в АО «НИИАР» на ИЯР РБТ-6, РБТ-10/2 и ИРТ-Т ФГАОУ ВО НИ «Томский политехнический университет».

В 2022–2023 годах АО «ИРМ» проводит НИОКР по теме «Разработка технологии радиационного окрашивания топазов».

Оба инновационных проекта объединяет то, что проектом ИЯР ИВВ-2М данные технологии предусмотрены не были.

АО «ИРМ» намерен реализовать проект радиационного окрашивания топазов (РОТ) на действующем ИЯР ИВВ-2М, а также использовать результаты НИОКР при разработке проекта новой исследовательской ядерной установки «Урал».

В докладе представлены и обсуждены результаты НИОКР по созданию производств ЯЛК и РОТ на базе ИЯР ИВВ-2М.

Перечень сокращений и обозначений

А.з. – активная зона
ВБО – внутрибаковое оборудование
ВЭК – вертикальный экспериментальный канал
ГЭК – горизонтальный экспериментальный канал
ИЯР – исследовательский ядерный реактор
ИЯУ – исследовательская ядерная установка
КПД – коэффициент полезного действия
МЗА – минимально значимая активность
МЗУА – минимально значимая удельная активность
НФР – нейтронно-физические расчеты
ОТВС – отработавшая тепловыделяющая сборка
ОУ – облучательное устройство
ПК – петлевой канал
ППН – плотность потока нейтронов
ППБН – плотность потока быстрых нейтронов
ППТН – плотность потока тепловых нейтронов
РОТ – радиационное окрашивание топазов
СПП – силовые полупроводниковые приборы
СУЗ – стержень управления и защиты
ТВС – тепловыделяющая сборка
ТЭО – технико-экономическое обоснование
УА – удельная активность
У.Э.С. – удельное электрическое сопротивление
УЯЛК – установка ядерного легирования кремния
ЦЯНТ – центр ядерной науки и технологии
ЯЛК – ядерное легирование кремния, ядерно-легированный кремний

1. Обоснование технических условий для создания каналов ядерного легирования кремния в баке исследовательского ядерного реактора ИВВ-2М

1.1. Техническое задание

Техническое задание на проведение НИОКР было разработано исходя из анализа тенденций развития технологии ЯЛК и рыночных требований к конечному продукту.

В первую очередь, это относится к достижению минимального отклонения от заданного номинала У.Э.С. и минимальной неоднородности легирования в радиальном и аксиальном направлении слитка при одновременном увеличении его диаметра.

К основным тенденциям развития технологии и применению ЯЛК относятся следующие:

- наращивание мощностей по выпуску ЯЛК (по некоторым оценкам ожидается рост рынка от 150 тонн до 500 тонн в год);
- сокращение доли слитков диаметром менее 100 мм, увеличение доли слитков диаметром 125, 150, 203, 229 мм. Ожидается, что в ближайшем будущем произойдет переход к слиткам диаметром 300 мм;
- расширение диапазона требуемых номиналов удельного электрического сопротивления (У.Э.С.) от 5 Ом×см для солнечных элементов с высоким КПД и гибридных автомобильных двигателей до 1500 Ом×см для СПП нового поколения;
- радиальная неоднородность У.Э.С. не более 2 – 3%;
- отклонение от заданного номинала легирования У.Э.С. не более 5 %.

Исходя из данных тенденций и физических характеристик ИЯР ИВВ-2М, в техническом задании на НИОКР были сформулированы следующие требования к конечному продукту ЯЛК:

- форма продукции – слитки либо пластины;
- поверхность – блестящая и ровная;
- химическая формула – Si, кремний;
- легирующая примесь – фосфор;
- тип проводимости – электронный;
- диаметр слитков (пластин) – до 229 мм (9 дюймов);
- длина слитка (пакета пластин) – до 500 мм;
- вес слитка длиной 500 мм – 50 кг;
- удельное электрическое сопротивление (У.Э.С.) задается для каждой партии в интервале от 20 до 800 Ом×см (целевое значение 60 Ом×см);
- время жизни ННЗ не менее 200 мкс;
- радиальная неравномерность У.Э.С. $\leq 8 \%$;
- осевая неравномерность У.Э.С. $\leq 10\%$;
- отклонение от заданного номинала легирования $\leq 10\%$;
- производительность ЯЛК – до 14,4 т/год (при У.Э.С. = 60 Ом×см);
- максимальный флюенс тепловых нейтронов – 3×10^{18} н/см².

Необходимые параметры конечного продукта предполагалось достичь путем разработки эффективной технологии ЯЛК и ее адаптации к условиям действующего реактора ИВВ-2М.

С этой целью были разработаны следующие исходные технические требования к проекту [3]:

1. Оптимальная плотность потока тепловых нейтронов в зоне облучения изделий – $5,0 \times 10^{12}$ см⁻²с⁻¹ - $5,0 \times 10^{13}$ см⁻²с⁻¹.

2. Значение кадмиевого отношения более 10.

3. В состав ВБО УЯЛК должно входить следующее оборудование:

- два укороченных вертикальных канала ЯЛК,
- два стационарных сепаратора для временного хранения ампул со слитками кремния в баке реактора,
- два перегрузочных контейнера для загрузки свежих ампул со слитками кремния в бак реактора и выгрузки облученных ампул из бака реактора, и их перемещения в здании реактора,
- лифт для транспортирования перегрузочных контейнеров с ампулами из бака реактора до уровня центрального зала,
- два перегрузочных устройства для вращения и перемещения (при необходимости) ампул каналах ЯЛК и их внутриреакторного перемещения,
- приводные станции перегрузочных устройств и лифта.

4. Методы обеспечения однородности легирования слитков кремния в процессе облучения должны быть определены и обоснованы расчетом радиационных характеристик.

5. В процессе работы УЯЛК должны обеспечиваться:

- автоматизированная загрузка ампул в бак реактора,
- автоматизированное внутриреакторное перемещение ампул,
- автоматизированное вращение и перемещение (при необходимости) ампул в каналах ЯЛК в процессе их облучения,
- облучение ампул в течение заданного времени,
- охлаждение слитков кремния до температуры менее 100°С в процессе облучения теплоносителем первого контура,
- высвечивание ампул в бассейне реактора в течение заданного времени,

- автоматизированная выгрузка ампул из бака реактора,
- возможность извлечения ампул из бака реактора ручными грузозахватными приспособлениями в случае нарушения технологического процесса,
- ядерная и радиационная безопасность принятых к реализации технических решений по организации технологического процесса в баке реактора в режиме работы ИЯР на мощности.

6. Требования к размещению ВБО УЯЛК:

- укороченные вертикальные каналы ЯЛК должны размещаться в графитовых колоннах за пределами опорной решетки реактора в районе столов кладки и отражателя;
- автоматизированные перегрузочные устройства и приводные станции должны размещаться в верхней части бака реактора;
- в плитах столов кладки и отражателя должны быть предусмотрены сквозные отверстия для организации естественной циркуляции теплоносителя в каналах ЯЛК;
- размещение ВБО УЯЛК не должно препятствовать возможности:
 - а) загрузки облучательных устройств (ОУ) и петлевых каналов (ПК) в реактор в составе стенов ИЯУ,
 - б) загрузки облучательных ампул в мокрые и сухие каналы а.з. реактора в режиме работы на мощности по изотопным и иным программам, кроме ЯЛК,
 - в) выдержки в баке реактора ОУ с топливными композициями после реакторных испытаний,
 - г) загрузки тепловыделяющих сборок (ТВС) в бак реактора и выгрузки отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС) из бака реактора через наклонный перегрузочный канал.

1.2. Анализ конструкции реактора

Общий вид реактора ИВВ-2М со штатным ВБО представлен на рисунке 1.

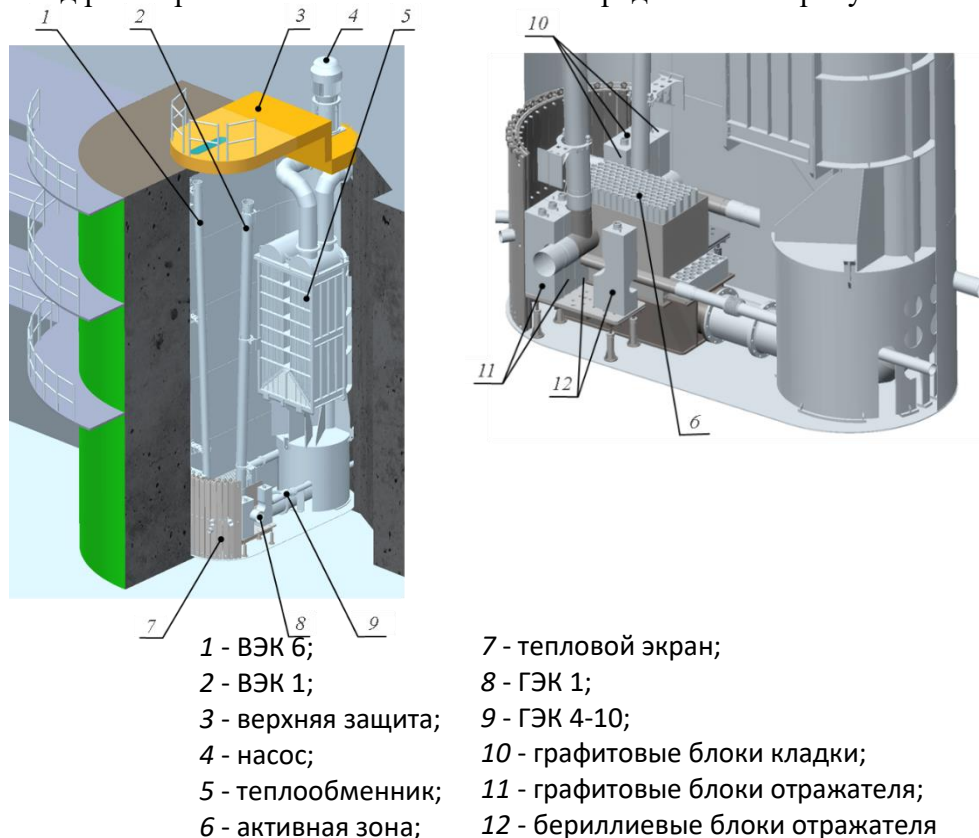


Рис. 1. Общий вид реактора ИВВ-2М (площадка СУЗ условно не показана)

Для наглядности конструкции реактора на рисунке условно не показана площадка СУЗ. Она крепится к платику, расположенному в верхней части бака реактора.

Верхняя защита реактора сформирована из чугунных плит толщиной 120 мм и 230 мм. Одна из плит выполнена откатной и оснащена специальным механизмом перемещения.

Кладка и отражатель, предназначенные для формирования спектра нейтронов в ГЭК, располагаются с трех сторон от а.з. и состоят из:

- графитовых и бериллиевых блоков;
- торцевых графитовых блоков, установленных на специальной подставке корпуса опорной решетки.

В соответствии с техническим решением основная часть графитовых блоков, предназначенных для формирования спектра нейтронов в ГЭК, демонтирована и удалена из бака реактора.

В соответствии с техническим решением проведена герметизация ГЭК 4-10 с обоих торцов канала. ГЭК заполнен теплоносителем первого контура путем выполнения двух сквозных отверстий, обеспечивающих циркуляцию теплоносителя по ГЭК 4-10 и выход продуктов радиолиза теплоносителя в систему специальной вентиляции.

1.3. Размещение каналов ЯЛК

Исходя из текущего состояния конструкции реактора предложено три варианта размещения каналов ЯЛК (Рис. 2):

Вариант 1. Расположение каналов ЯЛК по оси, проходящей через центр а.з. (ячейка 7-8), на месте штатных ВЭК.

Положительной стороной такого расположения каналов ЯЛК является облучение слитков кремния наиболее высоким потоком тепловых и эпитепловых нейтронов, что дает наиболее высокий объем производства ЯЛК.

Отрицательной стороной является необходимость демонтажа как заменяемого, так и незаменимого ВБО реактора.

Вариант 2. Расположение каналов ЯЛК за ГЭК 1 и ГЭК 8 (на месте демонтированных графитовых и бериллиевых блоков) на столах кладки и отражателя.

Положительной стороной является отсутствие крайней необходимости демонтажа существующих ВЭК и ГЭК.

Отрицательной стороной является меньший поток нейтронов и, как следствие, меньшая производительность ЯЛК по сравнению с первым вариантом, а также выполнение технологических операций по демонтажу участков двух кронштейнов в районе ВЭК 1 и ВЭК 6, незадействованных в креплении самих ВЭК, участков площадки СУЗ и одного бериллиевого блока отражателя.

Вариант 3. Расположение каналов ЯЛК за ГЭК 1 и ГЭК 8 (на месте демонтированных графитовых блоков) на дне бака реактора.

Положительной стороной является расположение большего по высоте облучательного объема (канала ЯЛК), и как следствие, формирование более «сглаженного» распределения ППН по высоте канала при облучении ампул со слитками кремния большей высоты (не менее 500 мм).

Отрицательной стороной является необходимость демонтажа части ВБО реактора.

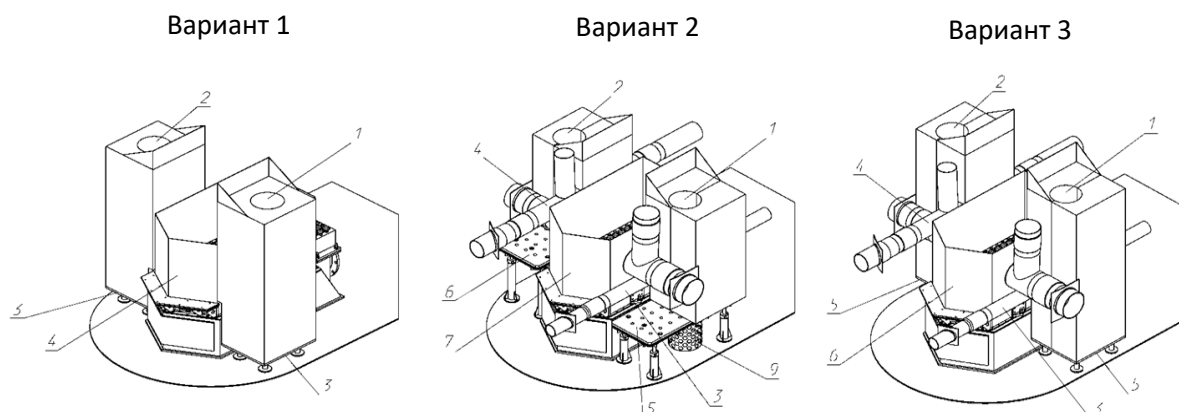


Рис. 2. Варианты размещения каналов ЯЛК в баке реактора ИВВ-2М:
 вариант 1: 1 – канал ЯЛК № 1; 2 – канал ЯЛК № 2; 3 – опоры графитовых блоков;
 4 – кожух опорной решетки; 5 – дно бака реактора;
 вариант 2: 1 – канал ЯЛК № 1; 2 – канал ЯЛК № 2; 3 – циркониевый участок ГЭК 4-10;
 4 – циркониевый участок ГЭК 5-9; 5 – стол отражателя; 6 – стол кладки;
 7 – кожух опорной решетки; 8 – дно бака реактора; 9 – защитные стаканы;
 вариант 3: 1 – канал ЯЛК № 1; 2 – канал ЯЛК № 2; 3 – циркониевый участок ГЭК 4-10;
 4 – циркониевый участок ГЭК 5-9; 5 – опоры графитовых блоков;
 6 – кожух опорной решетки; 7 – дно бака реактора

Самым оптимальным из возможных был выбран вариант № 2 расположения каналов ЯЛК на столах кладки и отражателя, что определялось минимальными рисками для систем важных для безопасности реактора и затратами на его модернизацию.

На рисунке 3 представлен вид реактора сверху с расположением каналов ЯЛК в бассейне реактора. Смещение каналов ЯЛК в сторону от центра активной зоны привело к снижению ППТН до значений $\Phi_1 = 1,87 \times 10^{12} \text{ см}^{-2} \times \text{с}^{-1}$ и $\Phi_2 = 1,31 \times 10^{12} \text{ см}^{-2} \times \text{с}^{-1}$ соответственно.

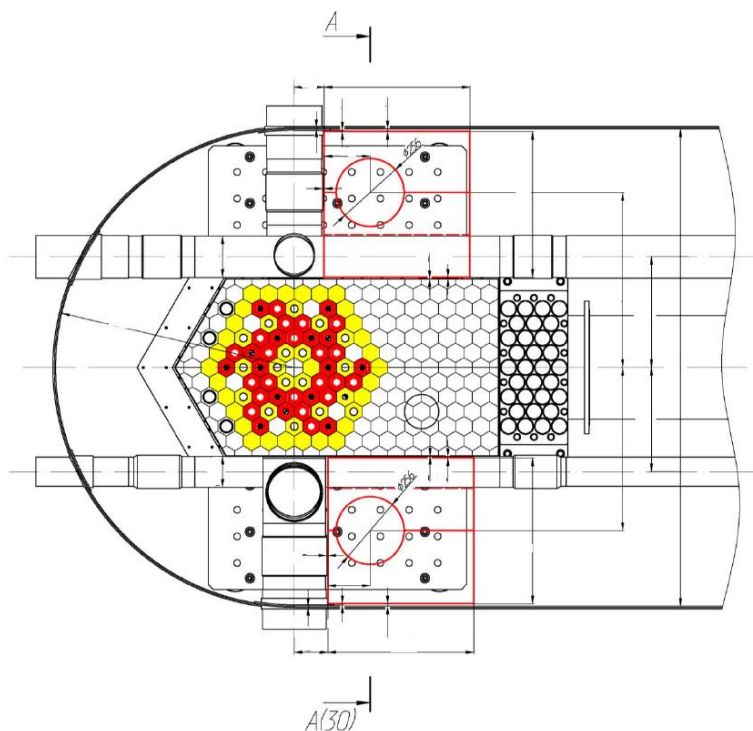


Рис. 3. Вид сверху на каналы ЯЛК и штатное ВБО реактора

1.4. Расположение стационарных сепараторов и перегрузочных контейнеров

На рисунке 4 представлена схема реактора после модернизации с размещением ВБО ЯЛК в районе легирования.

Существующее расположение штатного ВБО реактора ИВВ-2М позволяет разместить стационарные сепараторы для временного хранения ампул со слитками кремния и перегрузочные контейнеры только на месте штатных специального сепаратора и подставки для каналов, при этом потребуются их демонтаж.

При использовании одноканальных сепараторов освобождается место под установку двух вновь разработанных укороченных специальных сепараторов.

Укороченные специальные сепараторы в количестве двух штук возможно разместить вдоль стен бака реактора между вновь смонтированными графитовыми блоками и стационарными сепараторами на дне бака реактора.

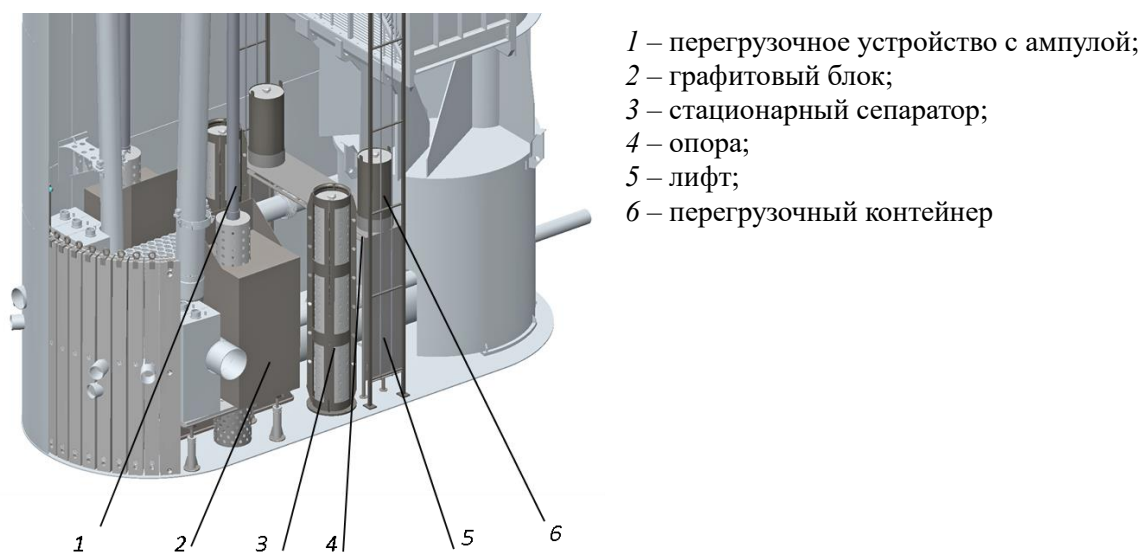


Рис. 4. Расположение ВБО установки ЯЛК в зоне легирования

1.5. Расположение перегрузочных устройств

На рисунке 5 представлена схема реактора после модернизации с размещением ВБО ЯЛК в районе верхней плиты перекрытия.

Данный вариант размещения ВБО УЯЛК в баке реактора позволяет проводить внутриреакторные перегрузочные операции для каждого канала ЯЛК «перегрузочный контейнер – стационарный сепаратор – облучательный канал» по одной оси (вдоль стен бака реактора), что значительно упрощает схему внутриреакторного перемещения, а также позволяет применить консольный способ крепления перегрузочных устройств в баке реактора.

Общий объем модернизации ИЯР ИВВ-2М представлен на рисунке 6.

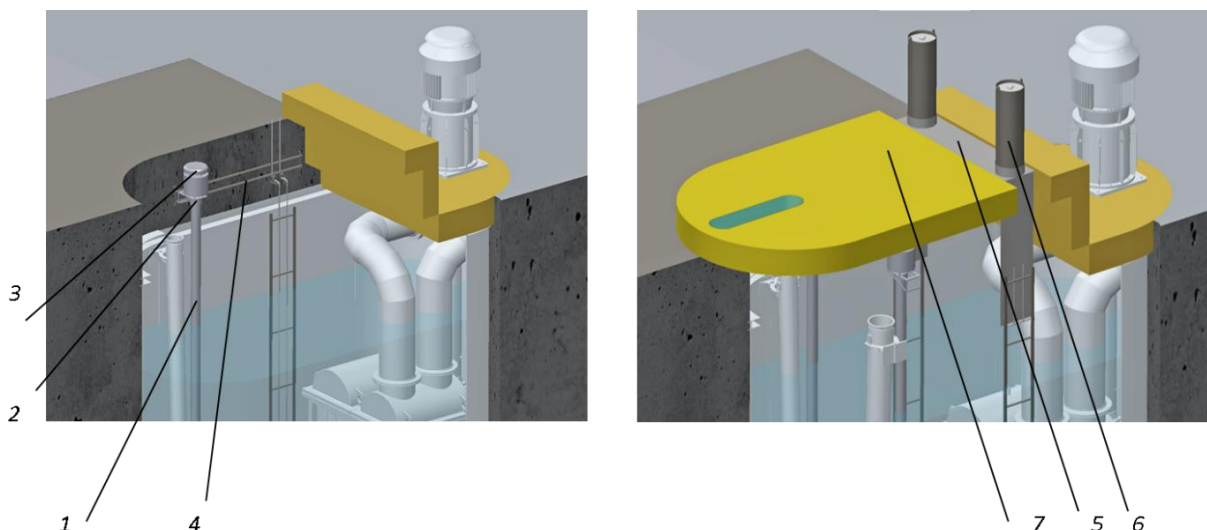
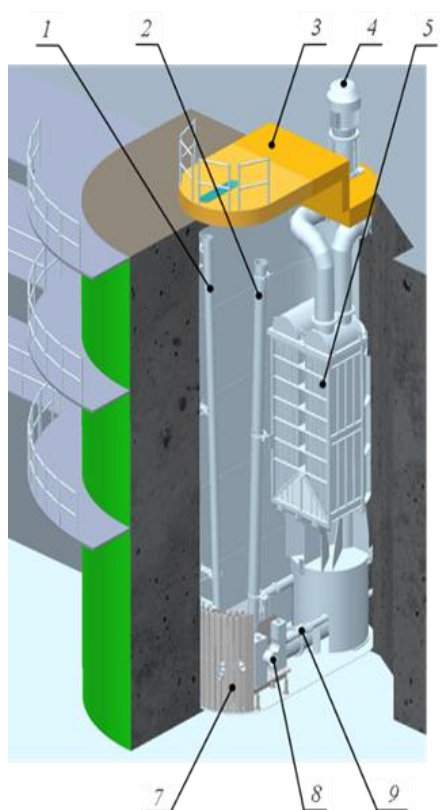
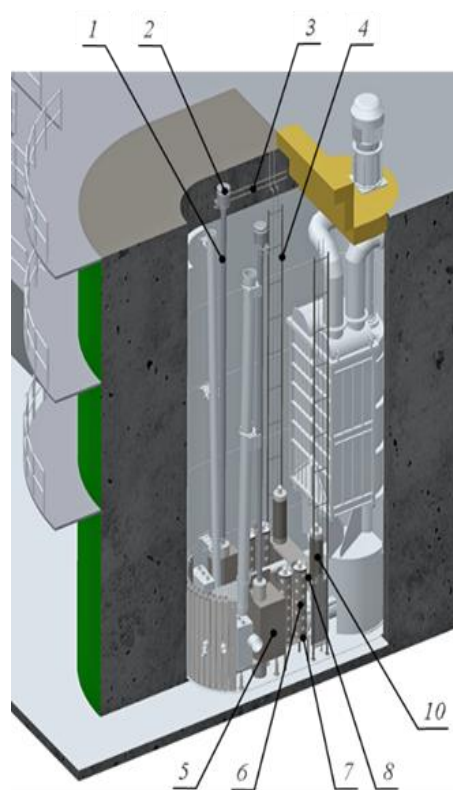


Рис. 5. Расположение ВБО установки ЯЛК в районе верхнего перекрытия:
1 – штанга; 2 – каретка; 3 – манипулятор; 4 – рельсовый путь; 5 – лифтовая платформа;
6 – перегрузочный контейнер; 7 – откатная секция верхнего перекрытия



Конструкция реактора до модернизации

1 – ВЭК 6; 2 – ВЭК 1; 3 – верхняя защита;
4 – насос; 5 – теплообменник;
7 – тепловой экран; 8 – ГЭК 1;
9 – ГЭК 4-10



Конструкция реактора после модернизации

1 – захватная штанга; 2 – манипулятор
с электроприводом; 3 – рельсовый путь;
4 – направляющие лифта; 5 – графитовый
блок в сборе; 6 – стационарный сепаратор;
7 – стол стационарного сепаратора;
8 – лифтовая опора;
10 – перегрузочный контейнер

Рис. 6. Объем модернизации ИЯР ИВВ-2М

1.6. Производительность УЯЛК

В таблице 1, на основании НФР ППТН в каналах облучения ЯЛК, представленных в отчете о НИОКР АО «НИКИЭТ», приведены результаты расчета производительности установки ЯЛК.

Как следует из результатов расчетов, в зависимости от требуемого У.Э.С. производительность УЯЛК меняется весьма существенно – от 11 до 21 тонн кремния в год, среднее значение производительности УЯЛК – 16,0 тонн в год.

Таблица 1

Производительность установки ЯЛК

Φ , $\text{см}^{-2} \times \text{с}^{-1}$	У.Э.С., Ом×см	$\Phi \cdot t$, см^{-2}	t_1 , час	N, слитков	M, кг
$\Phi_1 = 1,87 \times 10^{12}$	100	$2,4 \times 10^{17}$	36	128	6400
	200	$1,0 \times 10^{17}$	14,9	192	9600
	300	$7,0 \times 10^{16}$	10,4	192	9600
	500	$4,0 \times 10^{16}$	5,9	224	11200
$\Phi_2 = 1,31 \times 10^{12}$	100	$2,4 \times 10^{17}$	51	96	4800
	200	$1,0 \times 10^{17}$	21,2	160	8000
	300	$7,0 \times 10^{16}$	14,8	192	9600
	500	$4,0 \times 10^{16}$	8,5	192	9600

1.7. Обсуждение результатов

При наличии положительного заключения АО «НИКИЭТ» о возможности модернизации ИЯР ИВВ-2М для создания производства ЯЛК, решение о начале старте работ не принято.

Лимитирующим фактором в принятии решения стали риски производства работ.

В НИОКР представлены решения для исключения основных технических рисков для реализации проекта на базе действующего реактора ИВВ-2М.

К непреодолимым рискам реализации проекта на реакторе ИВВ-2М отнесены:

1. Близость срока истечения эксплуатационного ресурса ИЯР ИВВ-2М, и связанные с этим риски снижения уровня безопасности реактора при реализации данного сценария модернизации.

В первую очередь это относится к возможности повреждения оборудования и систем важных для безопасности при выполнении работ в стесненном реакторном пространстве (ГЭК, ВЭК, тепловой экран, и т.д.)

2. Недопустимая радиационная обстановка в месте производства работ по модернизации.

Разработка технических мер по снижению данных рисков приведет к необоснованному увеличению стоимости и сделает проект нерентабельным.

Вместе с тем, результаты работы легли в основу «Концепции создания новой ИЯУ с ИЯР «Урал»», а также в ТЭО проектов элементов ЦЯНТ – лаборатория ядерного легирования кремния.

Кроме исключения рисков создания производства ЯЛК, отмеченных при проведении НИОКР, при проектировании и освоении УЯЛК ИЯУ «УРАЛ» предстоит решить задачу достижения радиальной равномерности легирования кремния для слитков большого диаметра до 300 мм.

2. Условия создания производства радиационного окрашивания топазов на базе исследовательского ядерного реактора ИВВ-2М

2.1. Техническое задание

Практическое значение топазов связано с их ювелирными свойствами. Прозрачные, бесцветные или окрашенные в голубой, розовый или винно-желтый цвет топазы относятся к драгоценным камням II класса.

Голубой топаз — один из самых красивых ювелирных камней: топазы Swiss blue (швейцарский голубой) и более насыщенного оттенка London blue (лондонский голубой) являются наиболее востребованными на рынке ювелирных услуг.

В природе формирование кристаллов — процесс долгий и непредсказуемый. С помощью радиационных технологий можно придать топазу нужный цвет нужной насыщенности в течение нескольких часов.

Существенным моментом является устойчивость радиационного окрашивания топазов к внешнему воздействию в течение времени.

С 2022 года специалисты АО «ИРМ» занимаются разработкой технологии радиационного окрашивания топазов в спектре быстрых нейтронов исследовательского реактора ИВВ-2М. Такая технология хорошо изучена и широко применяется в исследовательских реакторах мира.

Известно, что при условиях облучения потоком быстрых нейтронов с энергией больше 0,5 МэВ до достижения флюенса 10^{18} нейтр./см² и температуре 100 – 150 °С, топазы окрашиваются в голубой цвет и другие оттенки.

Лимитирующим фактором процесса радиационного окрашивания топаза является активация вредных примесей, которые могут содержаться в минерале, с образованием радионуклидов с большим периодом полураспада, в т.ч.: ¹³⁴Cs (753,6 сут), ⁵⁴Mn (312,3 сут), ¹⁸²Ta (114,43 сут), и др.

Другим серьезным лимитирующим технологическим фактором является температура кристалла в результате радиационного разогрева. Для получения равномерно окрашенного кристалла в заданном цветовом диапазоне, устойчивого к свету и температуре при будущем использовании, температура в контейнере при облучении не должна превышать 150 °С. Поэтому, для регулирования температуры при облучении необходимо использовать обоснованный метод охлаждения камней.

В этой связи, для исключения или сведения подобных рисков к минимуму, а также повышения эффективности работ, процесс радиационного окрашивания топазов должен быть адаптирован к конкретным условиям любой реакторной установки. Другими словами, процессу промышленного производства радиационного окрашивания топазов должен предшествовать этап НИОКР в результате которой должны быть:

- определены условия радиационного окрашивания топазов в реакторе ИВВ-2М;
- разработан технологический процесс производства, включая разработку и изготовление облучательного устройства минералов;
- обеспечено опытное внедрение технологического процесса;
- обеспечено промышленное внедрение технологического процесса.

2.2. Результаты работ

Цель первого этапа работ заключалась в проведении спектрометрического анализа топазов, облученных в «сухом» канале АК-1, анализе наличия примесей и оценке перспектив облучения минералов до набора флюенса нейтронов с энергией больше 0,5 МэВ величиной 10^{18} нейтр./см².

На этом этапе были проведены исследования химического состава образцов на предмет возможной активации примесных элементов и пробное облучение образцов.

Была проведена полуколичественная оценка элементного состава образцов топазов методами рентгеноспектрального микроанализа (Таблица 2) и вторично-ионной масс-спектрометрии (Таблица 3).

Облучение образцов проводилось в «сухом» канале АК-1 яч. 12–16 в течение 4 часов (Рисунок 7).

Для облучения были взяты 5 образцов из партий 7985, 7978, 7974, 7980, 7983. Данные партии выбраны по причине наименьших размеров топазов, позволяющих упаковать последние в кадмиевые экраны. Конструкция для облучения топазов представляла следующее: каждый из пяти топазов был завернут в алюминиевую фольгу и помещен в кадмиевый контейнер. Кадмиевый контейнер – это полый цилиндр высотой 15 мм, диаметром 9 мм и толщиной стенок 0,5 мм. Контейнеры были составлены в ряд, обернуты фольгой и помещены в алюминиевый пенал, предназначенный для загрузки в АК-1.

Расчетные потоки нейтронов: тепловые – $6,2 \times 10^9 \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$, быстрые с энергией $>0,5 \text{ МэВ}$ – $1,3 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$. Флюенс по быстрым нейтронам за 4 часа облучения достиг значения $1,5 \times 10^{15} \text{ нейтр./см}^2$.

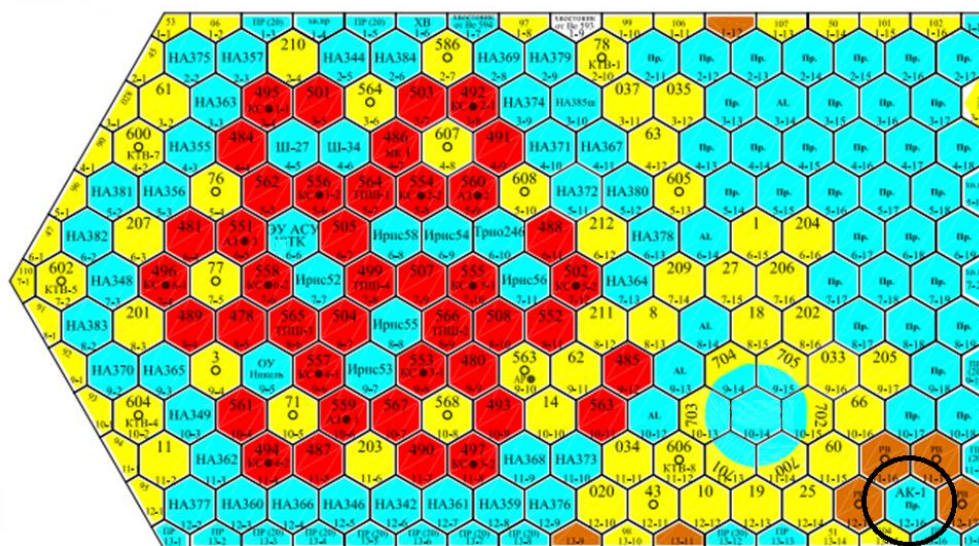


Рис. 7. Картограмма активной зоны 1 этапа

После облучения топазы приобрели неярко-коричневато-оранжевый оттенок. Представленные результаты хорошо коррелируют с результатами облучения топазов в импульсном исследовательском пучковом реакторе на быстрых нейтронах ИБР-2 в Дубне до флюенса $3,9 \times 10^{15} \text{ нейтр./см}^2$ (Рисунок 8) [4].

Но основными результатами работы этапа № 1 следует считать результаты спектрометрического анализа облученных образцов, представленных в таблице 4.

Образцы не содержат продуктов активации с длинными периодами полураспада, за исключением образца из партии № 7985, в котором обнаружен Та-182.

На этапах №№ 2, 3 проводилось исследование топазов, облученных в «мокром» канале № 1 яч. 4–7 (Рисунок 9) и оценка перспектив облучения до набора флюенса нейтронов с энергией больше 0,5 МэВ величиной $1,0 \times 10^{18} \text{ нейтр./см}^2$ и $2,0 \times 10^{18} \text{ нейтр./см}^2$ с целью достижения свойств ювелирного окрашивания топазов.

Таблица 2

Результаты рентгеноспектрального микроанализа

Партия/кристалл	O	F	Al	Si	Примеси*	Примечания
7974/1	33,9	24,2	27,9	14,0	н/о	1. Следы: C, Na, Mg, K, Ca на всех образцах – результат взаимодействия с водой при отмывке и/или механической обработки
7974/2	33,8	23,3	27,8	15,1	н/о	
7975	34,0	24,2	27,7	14,2	н/о	
7976	34,6	23,1	27,4	14,9	н/о	
7977	35,2	23,2	26,5	15,2	Fe – 0,2	
7978	37,0	37,1	17,8	8,1	Na – 0,9; Cl – 0,5; S – 0,3	
7980	35,4	24,1	26,1	14,4	н/о	
7981	34,8	23,8	27,1	14,3	н/о	
7982/1	34,6	21,9	27,2	16,4	Fe – 0,2	
7982/2	35,1	21,7	26,4	16,8	Fe – 0,2	
7983	34,5	22,1	27,8	15,6	н/о	
7985	34,3	23,0	28,4	14,2	In – 0,9	
7986	36,0	27,9	23,7	12,2	н/о	
* Примеси, обнаруженные на отдельных участках образца; н/о – не обнаружено						

Таблица 3

Результаты вторично-ионной масс-спектрометрии

Партия	F	Al	²⁸ Si	⁵⁹ Co	¹³³ Cs	¹³⁸ Ba	¹⁴¹ Pr	²⁰⁸ Pb
7974	1,3E6	>1E7	8,6E6	6,1E4	1100	700	400	700
7975	8,3E6	>1E7	8,7E6	6,4E4	1500	1500	500	1200
7976	8,1E6	>1E7	8,7E6	5,1E4	500	2000	600	900
7977	9,3E6	>1E7	8,8E6	3,3E4	400	1800	400	1400
7978	8,4E5	>1E7	8,6E6	7,2E4	800	1000	500	600
7980	6,5E6	>1E7	8,6E6	9,1E4	800	1600	300	1100
7981	4,8E6	>1E7	8,7E6	4,2E4	600	1900	300	1100
7982	8,0E6	>1E7	8,7E6	3,3E4	600	1300	300	1100
7983	1,2E6	4,2E6	>1E7	7200	1000	1200	фон	1500
7985	5,0E6	>1E7	8,5E6	2,1E4	400	500	фон	400
7986	>1E7	>1E7	8,7E6	1,9E4	600	1100	фон	1200

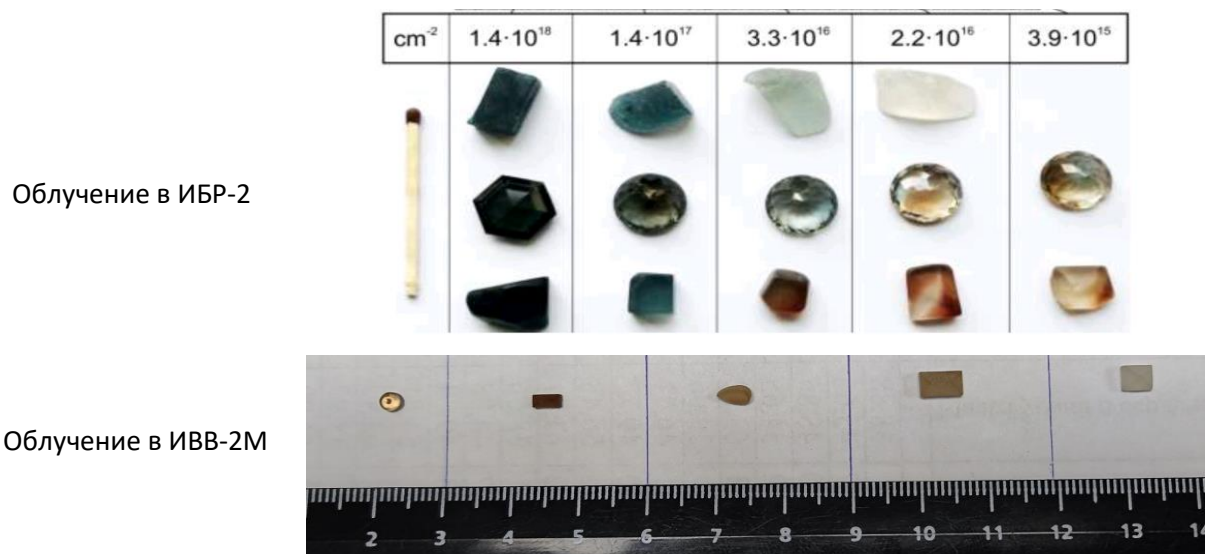


Рис. 8. Результат облучения образцов 1 этапа

Таблица 4

Результаты спектрометрического анализа образцов (этап 1)

№ партии	Нуклид	A, Бк	УА, Бк/г
7985	Ta-182	0,795	22,7
7978			
7974			
7983	Na-24	0,495	14,1
7980	Na-24	0,733	20,9

Облучение проводилось 2 и 4 часа соответственно заданному флюенсу. Для облучения взяты 2 образца из партий 7985, 7978.

Данные партии выбраны по причине размеров топазов, позволяющих упаковать их в кадмиевые экраны. Конструкция для облучения топазов представляла следующее: каждый из топазов был завернут в алюминиевую фольгу и помещен в кадмиевый контейнер. При погружении в «мокрый» канал кадмиевый контейнер был прикреплен к алюминиевой навеске и также обернут фольгой.

Расчетные потоки нейтронов: тепловые – $1,1 \times 10^{14} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$, быстрые с энергией $>0,5 \text{ МэВ}$ – $1,5 \times 10^{14} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$. Флюенс по быстрым нейтронам за 2 часа облучения достиг значения $1,0 \times 10^{18} \text{ нейтр./см}^{-2}$, за 4 часа – $2,0 \times 10^{18} \text{ нейтр./см}^{-2}$.

После облучения топазы приобрели голубой цвет (Рисунок 10).

При оценке ювелирных свойств облученных образцов топазов, заказчиком было подтверждено достижение цветового стандарта голубого топаза Swiss blue (швейцарский голубой) и более насыщенного оттенка London blue (лондонский голубой) при облучении образцов бесцветных топазов до значения флюенсов быстрых нейтронов соответственно $1,0 \times 10^{18} \text{ нейтр./см}^{-2}$ и $2,0 \times 10^{18} \text{ нейтр./см}^{-2}$.

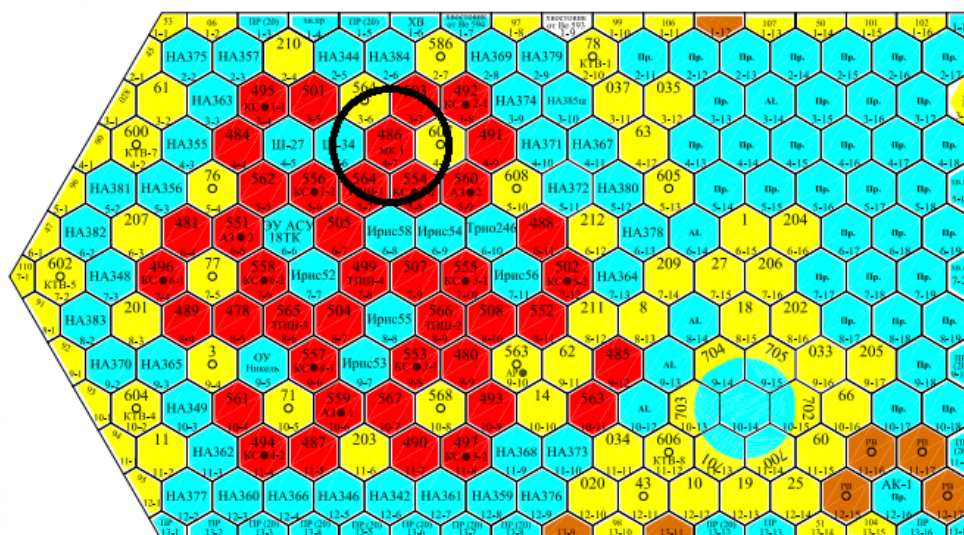


Рис. 9. Картограмма активной зоны 2, 3 этапа

Дата облучения	Флюенс, нейтр./см ² E>0,5 МэВ	Партия № 7985	Партия № 7978
06.12.2022	$1,0 \cdot 10^{18}$		
13.01.2023	$2,0 \cdot 10^{18}$		

Рис. 10. Результат облучения образцов 2 и 3 этапа

Результаты спектрометрического анализа облученных образцов представлены в таблице 5.

Согласно представленным результатам, активность образцов топазов не превышает величины минимально значимой активности для данных нуклидов. Вместе с тем, минимально значимая удельная активность для облученных топазов превышает нормативы Приложения 4 НРБ-99/2009 [5]. Образец из партии 7985 необходимо выдержать в течение 3,03 года до достижения этого уровня, из партии 7978 – 4,88 года. После выдержки в течение указанного времени на обращение с данными топазами не будет требоваться разрешение органов исполнительной власти, осуществляющих государственный санитарно-эпидемиологический надзор, на использование топазов, как источника ионизирующего излучения в помещении или на рабочем месте.

ОСПОРБ-99/2010 [6] предъявляет более жесткие требования к МЗУА, так как в данном документе предъявляются требования по МЗУА, при котором допустимо неограниченное использование тех или иных материалов. Согласно Таблице образец из партии 7985 необходимо выдержать в течение 8,71 года до достижения этого уровня, из партии 7978 – 18,57 года.

Результаты спектрометрического анализа образцов (этапы 2, 3)

7985, масса 44,74 мг						
Нуклид	$T_{1/2}$, сут	A, Бк	MЗА, Бк	УА, Бк/г	MЗУА, Бк/г	Время выдержки, лет
Mn-54	312,12	5,21	1,00E+06	116,46	10	3,03
Te-123m	119,70	0,92	1,00E+07	20,47	100	0,00
Ta-182	114,43	259,00	1,00E+04	5789,33	10	2,88
Cd-115	2,23	15,00	1,00E+06	335,29	100	0,01
In-115m	2,23	12,40	1,00E+06	277,17	100	0,01
La-140	1,68	2,82	1,00E+05	63,03	10	0,01
Au-198	2,69	1,98	1,00E+06	44,26	100	0,00
Sc-46	83,81	15,60	1,00E+06	314,01	10	1,14
Sc-47	3,35	7,47	1,00E+06	150,36	100	0,01
Mn-54	312,12	1,75	1,00E+06	35,23	10	1,55
Cd-115	2,23	110,00	1,00E+06	2214,17	100	0,03
In-115m	2,23	123,00	1,00E+06	2475,85	100	0,03
Cs-134	751,90	2,57	1,00E+04	51,73	10	4,88
Au-198	2,69	12,00	1,00E+06	241,55	100	0,01

2.3. Обсуждение результатов

1. В результате выполненной работы подтверждено, что ИЯР ИВВ-2М возможно использовать для радиационного окрашивания топазов после проведения НИОКР, разработки технологии и ее внедрения на производстве.

Цвет облученных кристаллов соответствует набранному флюенсу нейтронов.

2. При наборе флюенса до 10^{18} нейтр./см² наведенная активность образцов вырастает пропорционально, что требует дополнительных исследований и разработки мер снижения потока тепловых нейтронов в месте облучения кристаллов топаза для исключения активации примесных радионуклидов с большим периодом полураспада.

3. Облучение топазов до флюенса 10^{15} нейтр./см² не приводит к радиационному разогреву кристаллов выше 100 °С (расчетные значения). Вместе с тем, при наборе флюенса до 10^{18} нейтр./см² температура образцов будет пропорционально возрастать, что потребует дальнейших исследований и разработки мер непревышения температуры кристалла выше 150 °С.

4. Предварительная обработка кристаллов имеет огромное значение для исключения поверхностных загрязнений с возможной активацией радионуклидов с большим периодом полураспада.

5. Таким образом, цель дальнейших исследований будет заключаться:

- в выборе оптимального расположения облучательного устройства в реакторе;
- разработке конструкции и изготовлении облучательного устройства, с учетом поглощающего экрана и охлаждения изделий;
- построения нейтронно-физической модели зависимости цвета облученных топазов от набранного флюенса нейтронов;
- выполнения технологических работ по опытному и промышленному запуску производства.

Заключение

Обоснована возможность и условия создания производства ядерного легирования кремния и радиационного окрашивания топазов на базе ИЯР ИВВ-2М.

Актуальность работы связана с необходимостью разработки новых реакторных технологий на базе действующих ИЯР, а также для разработки и использования технических решений при проектировании новых ИЯР, в том числе с точки зрения возможности гибкой адаптации будущих проектов ИЯР к новым реакторным технологиям.

Список литературы

1. Отчет о научно-исследовательской работе «Обоснование технических условий для создания лаборатории ядерного легирования кремния на базе ИЯУ ИВВ-2М». Ф-1320/46 от 27.10.2020, АО «ИРМ», Заречный 2020.
2. Отчет о научно-исследовательской работе «Обоснование технических условий для создания каналов ядерного легирования кремния в баке исследовательского ядерного реактора ИВВ-2М». ИВВ-2М-От-2962. 02.07.2020 г., АО «НИКИЭТ». Москва, 2020.
3. Исходные технические требования к проведению НИОКТР «Модернизация исследовательского ядерного реактора ИВВ-2М для обеспечения производства ядерно-легированного кремния». Т-545/09 от 05.03.2019 г. АО «ИРМ». Заречный, 2019.
4. Study of neutron irradiation-induced color in topaz at the pulsed reactor IBR-2. Yu. Khatchenko (Ural Federal University, 620002 Yekaterinburg, Russia), T. Enik (Joint Institute for nuclear research, 141980 Dubna, Russia).
5. СанПиН 2.6.1.2523-09 «Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009)».
6. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (СП 2.6.1.2612-10. ОСПОРБ-99/2010).