

РАСЧЕТНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ВЫГОРАНИЯ ЭКРАНА ИЗ КАДМИЯ ПРИ ЕГО ДЛИТЕЛЬНОМ ИСПОЛЬЗОВАНИИ ДЛЯ НЕЙТРОННОГО ЛЕГИРОВАНИЯ КРЕМНИЯ

Н.К. Романова¹⁾, Д.С. Сайранбаев¹⁾, А. Ота²⁾, Х. Кавамура²⁾, Х. Каназава²⁾

¹⁾РГП на ПХВ «Институт ядерной физики» Министерства энергетики Республики Казахстан, ул. Ибрагимова 1, 050032 Алматы, Республика Казахстан, romanova@inp.kz, d.sairanbayev@inp.kz

²⁾The company Chiyoda Technol Corporation, 1-7-12, Yushima, Bunkyo-ku, Tokyo, 113-8681, Japan ohta-a@c-technol.co.jp, kawamura-h@c-technol.co.jp, kanazawa-h@c-technol.co.jp

Институт Ядерной Физики (Республика Казахстан) и Chiyoda Technol Corporation (Япония) проводят совместные исследования по разработке технологии нейтронно-трансмутационного легирования кремния большого размера в реакторе ВВР-К. На критическом стенде проведены работы по максимальному выравниванию высотной неравномерности плотности потока нейтронов в облучательном устройстве. Разработанное облучательное устройство позволило снизить аксиальную неравномерность плотности потока нейтронов с 18 % до 4 %.

В настоящей работе представлены результаты расчетных исследований по влиянию выгорания экрана из кадмия на высотное распределение плотности потока нейтронов в слитке кремния. Расчетные исследования были проведены с помощью двух программных комплексов MCU-REA и MCNP6. Показано, что даже при максимально рассмотренной длительности облучения 210 эффективных суток экрана из кадмия, изменение изотопного состава поглотителя нейтронов незначительно, поэтому влияние на высотное распределение плотности потока нейтронов также незначительно.

Ключевые слова: кремний; выгорание; экран из кадмия; реактор ВВР-К.

CALCULATED STUDIES OF CADMIUM SCREEN BURNUP DURING ITS LONG-TERM OPERATION FOR NEUTRON DOPING OF SILICON

N. Romanova¹⁾, D. Sairanbayev¹⁾, A. Ota²⁾, H. Kawamura²⁾, H. Kanazawa²⁾

¹⁾The Institute of Nuclear Physics, Ministry of Energy of the Republic of Kazakhstan, 1 Ibragimov Str., 050032 Almaty, Republic of Kazakhstan, romanova@inp.kz, gizatulina@inp.kz, d.sairanbayev@inp.kz

²⁾The company Chiyoda Technol Corporation, 1-7-12, Yushima, Bunkyo-ku, Tokyo, 113-8681, Japan, ohta-a@c-technol.co.jp, kawamura-h@c-technol.co.jp, kanazawa-h@c-technol.co.jp

The Institute of Nuclear Physics (the Republic of Kazakhstan) and Chiyoda Technol Corporation (Japan) the activities to develop a technology of neutron-transmutation doping for the WWR-K reactor as applied to a large-size silicon ingot. On the critical test facility was developed maximize the alignment irregularity of the neutron flux density in the irradiation device. The irradiation device helped to reduce the axial irregularity factor from 18 % to 4 %.

The article presents the results of cooperation work to research cadmium screen burnup on the irradiation device during the neutron doping of silicon in WWR-K reactor. The calculated studies were conducted with the help of MCU-REA and MCNP6 codes. In the process of irradiation at 6 MW in WWR-K reactor during 210 effective days of operation of a cadmium screen, the isotopic composition of neutron absorber changes insignificantly. In the chosen time of irradiation, the burnup of isotope ¹¹³Cd will be less than 3 %, and the accumulation ¹¹²Cd and ¹¹⁴Cd will be less than 0.1 %. The calculated studies of the axial distribution of the neutron field was conducted in an aluminium imitator of a silicon ingot with the outer diameter of 152.4 mm and the height of 500 mm, which was placed in the irradiation device with a cadmium screen. The comparison of the neutron field distribution with the "fresh" screen and the burnup screen coincides within the limits of statistical theoretical error.

Keywords: silicon; burnup; cadmium screen; WWR-K reactor.

Введение

Рост потребности легированного кремния для полупроводниковой промышленности, обеспечивает рост спроса на нейтронно-трансмутационно легированный (НТЛ) кремний. Для НТЛ кремния применяются ядерные реакторы, как мощные источники нейтронов. Анализ рынка легированного кремния показывает, что происходит постепенное увеличение, как диаметра, так и длины слитка кремния, что позволяет улучшить экономический эффект. Но при таком подходе возникают трудности равномерного распределения легирующей примеси по объему слитка. Проведенные на реакторе ВВР-К пробные облучения двух слитков кремния диаметром 152.4 мм, длиной 202 мм и 278 мм показали достижение объемной неоднородности легирования

5.6% и 12%, соответственно [1]. Оба слитка кремния при облучении вращались только вокруг своей оси без перемещения слитка по высоте и использования экранов с поглотителями нейтронов. С 2017 года начались совместные исследования в рамках международного сотрудничества между Институтом ядерной физики (Казахстан) и Chiyoda Technol Corporation (Япония), по разработке технологии нейтронно-трансмутационного легирования кремния большого размера в реакторе ВВР-К. Для достижения наименьшей объемной неравномерности применяется комплексный подход, который заключается не только во вращении слитка вокруг оси, но и применение экрана для выравнивания высотной неравномерности (статический метод).

Экран был изготовлен из кадмия толщиной 0,5 мм с естественным изотопным составом. Облучательное устройство разработано для облучения слитков кремния диаметром 152,4 мм и длиной 500 мм [2, 3].

Как известно, в процессе облучения любой материал вступает в ядерные реакции с нейтронами и другими частицами, вследствие чего происходит изменение его изотопного состава, т.е. выгорание материала. В нашем случае, кадмий будет взаимодействовать с нейтронами и постепенно выгорать, а это будет влиять на его эффективность. При НТЛ кремния планируется постоянное облучение слитков, а значит и постоянное использование кадмиевого экрана. Поэтому целью настоящей работы является изучение влияния выгорания кадмия на высотное распределение плотности потока нейтронов в облучательном устройстве. Полученные значения по выгоранию кадмия позволяют определить эффективное время использования экрана.

При облучении слитков кремния длиной 500 мм применение динамического метода является не приемлемым, так как высота активной зоны реактора ВВР-К составляет 610 мм.

ВВР-К – это исследовательский реактор, бакового типа. Номинальная мощность реактора составляет 6 МВт. Теплоносителем и замедлителем служит обессоленная вода. Отражателем нейтронов может быть, как обессоленная вода, так и бериллий. Максимальная плотность потока тепловых нейтронов в центральных облучательных каналах активной зоны, составляет $2 \times 10^{14} \text{ см}^{-2} \times \text{с}^{-1}$ [4].

Для организации облучений кремния диаметром 150 мм, предполагается использовать канал К-23. Канал расположен в баке реактора за бериллиевым отражателем. Внутренний диаметр канала составляет 193 мм. Снаружи канала тепло снимается с помощью циркуляции воды первого контура реактора, внутри канала циркуляция воды отсутствует.

Разработанное облучательное устройство представляет собой корзину, на которую по высоте установлены кольца из поглотителя нейтронов (кадмия) толщиной 0,5 мм и высотой от 3 мм до 5 мм (см. рисунок 1).

Основная часть

Все расчетные исследования проводились с помощью программных комплексов MCU-REA и MCNP6 [5, 6]. В обоих программных комплексах уравнение переноса нейтронов решается методом Монте-Карло на основе оцененных ядерных данных для систем с произвольной трехмерной геометрий. В расчетах была смоделирована текущая конфигурация активной зоны реактора с реальным материальным составом, т.е. было учтено выгорание ядерного топлива и «отравление» бериллиевого отражателя. В расчетах не учитывалось влияние стержней компенсации реактивности. Программа MCU-REA использует константное обеспечение банка ядерно-физических данных DLC/MCUDAT [7], а в MCNP6 используется библиотека сечений ENDF-VIII [8].



Рис. 1. Облучательное устройство с кольцами из кадмия
Fig. 1. Irradiation device with cadmium rings

В расчетах каждому кольцу из кадмия соответствовала отдельная регистрационная зона. Рассматривался кадмий с естественным изотопным составом. Из восьми природных изотопов кадмия шесть стабильны (^{106}Cd , ^{108}Cd , ^{110}Cd , ^{111}Cd , ^{112}Cd , ^{113}Cd , ^{114}Cd), для двух изотопов обнаружена слабая радиоактивность. Это ^{113}Cd , (с периодом полураспада $7,7 \times 10^{15}$ лет) и ^{116}Cd , (двойной бета распад с периодом полураспада $3,0 \times 10^{19}$ лет). Все изотопы кадмия имеют множество резонансов ($10^3 - 10^4$ барн) в надтепловой области энергий нейтронов [9]. Основным поглотителем нейтронов в природном кадмии является изотоп ^{113}Cd , с сечением 20615 ± 400 барн в тепловой области [10].

26-ти групповой энергетический спектр нейтронов в облучательном канале К-23 (по центральной плоскости активной зоны) реактора ВВР-К представлен на рисунке 2. Спектр нейтронов рассчитан для пустого канала, и является результатом расчетов на MCNP6 (график 1), и на MCU-REA (график 2).

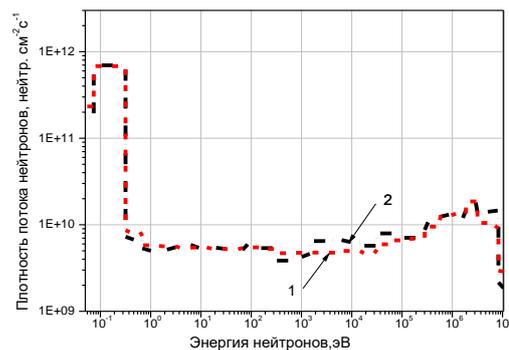


Рис. 2. Энергетический спектр нейтронов по центру облучательного канала

Fig. 2. Neutron spectrum at the center of the irradiation channel

Области действительных значений очень хорошо коррелируют между собой в пределах статических ошибок. Ошибка расчета с помощью MCU-REA в тепловой области энергий нейтронов в интервале $0 \text{ эВ} < E_n < 1000 \text{ эВ}$ составила в среднем

12.4%; для резонансной и быстрой областей энергий в интервале $1000 \text{ эВ} < E_n < 10,5 \text{ МэВ}$, в среднем 15.8%. В выбранных интервалах энергий, расчет на MCNP6 показал следующие статистические ошибки: в тепловой области энергий – 5.1%; для резонансной и быстрой – 6.1%. По результатам обоих расчетов показано, что в зоне облучения кремния, поток нейтронов хорошо термализован и основной вклад вносит тепловая область энергетического спектра.

Согласно рекомендациям МАГАТЭ [11]:

– легирование кремния должно проводиться нейтронами в диапазоне энергий от 0 до 1000 эВ. Нейтроны с энергиями выше 1000 эВ приводят к радиационным повреждениям, что влияет на выходные электрофизические показатели полупроводника;

– минимальное отношение плотности потока тепловых нейтронов к быстрым, должно быть 7:1.

В таблице 1 приведены плотности потока нейтронов в облучательном канале К-23 для двух групп нейтронов, рекомендованных МАГАТЭ [11]. Соотношение тепловых нейтронов к быстрым, соответствует 7.2:1 (по MCU-REA) и 7,8:1 (по MCNP6).

Таблица 1. Плотность потока нейтронов в облучательном канале К-23

Table 1. The neutron flux density in the irradiation channel K-23

Энергия нейтронов, эВ	Плотность потока нейтронов, $\text{см}^{-2}\times\text{с}^{-1}$	
	MCU-REA	MCNP6
$1000 < E_n < 10,5 \times 10^6$	1.3×10^{11}	1.16×10^{11}
$0 < E_n < 1000$	9.3×10^{11}	9.75×10^{11}

Зависимость выгорания кадмия от времени облучения показана в таблице 2. Рассмотрены: одна облучательная кампания, что соответствует 21 эффективному суткам; 3 – 63 эффективные сутки и 10 – 210 эффективных суток работы реактора ВВР-К на мощности 6 МВт.

Таблица 2. Выгорание кадмия-113 в течении нескольких кампаний реактора ВВР-К

Table 2. Burnup of cadmium-113 in during some of the reactor operation cycles

Количество кампаний	Выгорание ^{113}Cd , %	
	MCU-REA	MCNP6
1	0.23 ± 0.11	0.33 ± 0.08
3	0.70 ± 0.34	0.93 ± 0.25
10	2.30 ± 1.11	2.48 ± 0.98

Значительное уменьшение концентрации изотопа ^{113}Cd происходит на кольцах ближайших к центру, что связано с высотным распределением плотности потока нейтронов. Одновременно в кадмии наблюдается и процесс накопление ^{112}Cd и ^{114}Cd , как результат захвата нейтронов на ^{110}Cd и ^{111}Cd с малым сечением поглощения. Как показывают расчеты изменение концентраций этих изотопов не значительно (<0,1% за 10 кампаний реактора).

Изменение высотного распределения плотности потока нейтронов после максимально рассмотренного выгорания кадмия показано на рисунке 3.

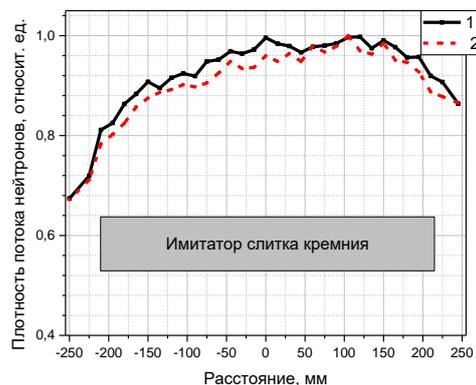


Рис. 3. Влияние выгорания кадмия-113 (~2.3 %) на высотное распределение поля нейтронов в имитаторе слитки кремния диаметром 150 мм и длиной 500 мм. (кривая 1 – выгоревший кадмий (210 эффективных суток), кривая 2 – «свежий» кадмий)

Fig. 3. Influence of cadmium-113 burnup (~ 2.3%) on the axial distribution of the neutron field in the silicon ingot simulator with a diameter of 150 mm and a length of 500 mm. (curve 1 – burnup cadmium (210 effective days), curve 2 - “fresh” cadmium)

Как видно из рисунка 3, влияние выгорания кадмия на высотное распределение плотности потока нейтронов незначительно.

Экстраполяция данных, приведенных в таблице 2, показывает, что после ~ 900 эффективных суток работы, выгорание кадмия-113 составит 10%, что может изменить эффективность кадмиевого экрана.

Заключение

Проведенные расчетные исследования показали, что выгорание кадмия-113 за 210 эффективных суток облучения (соответствует одному календарному году работы реактора ВВР-К), незначительно. Таким образом, выгорание кадмия за рассмотренный период не окажет влияния на высотную неравномерность легирования кремния.

Кадмий, возможно, применять для длительного использования в качестве экрана для выравнивания высотного распределения плотности потока нейтронов при легировании кремния.

Библиографические ссылки

1. Романова Н.К., Гизатулин Ш.Х., Накипов Д.А., Takemoto N., Kimura N., Tsuchiya K. и др. Исследование возможности трансмутационного легирования кремния на реакторе ВВР-К. В кн.: Анищик В.М., редактор. Материалы 11-й Международной конференции «Взаимодействие излучений с твердым телом». (23-25 сентября 2015), г. Минск. Минск: Издательский центр БГУ; 2015. С.147-148.
2. Ota A., Aitkulov M., Dyussambayev D., Gizatulin Sh., Kenzhin Ye., Kanazawa H., and et al. Study of the axial neutron flux distribution in the irradiation device with a cadmium-screen. В кн. Кенжин Е.А., редактор. Тезисы II Международного научного форума «Ядерная наука и технологии» (в печати) (24-27 июня 2019 года), г. Алматы. Алматы: РГП «Институт ядерной физики»; 2019. С. 140.

3. Romanova N., Gizatulin Sh., Dyussambayev D., Shaimerdenov A., Aitkulov M. and Kenzhin Ye. Calculated and experimental studies at critical facility in view of development of a technology for neutron transmutation doping of a large size silicon specimen in WWR-K reactor. 6th International Congress "Energy Fluxes and Radiation Effects" (September 16 - 22, 2018). *IOP Conf. Series: Journal of Physics: Conf. Series* 2018. (1115) 032052.
4. Аринкин Ф.М., Шаймерденов А.А., Гизатулин Ш.Х., Дюсамбаев Д.С., Колточник С.Н., Чакров П.В., и др. Конверсия активной зоны исследовательского реактора ВВР-К. *Атомная энергия* 2017; 123(1): 15-20.
5. Гуревич М.И., Шкаровский Д.А. Расчет переноса нейтронов методом Монте-Карло по программе MCU: Учебное пособие. Москва: Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»; 2012. 154 с.
6. MCNP6 User's Manual. Los Alamos National Laboratory: LA-CP-13-00634; 2013.
7. Абаган Л.П., Алексеев Н.И., Брызгалов В. И., Гомин Е.А., Калугин М.А., Майоров Л.В. и др. Программа MCU-RFFI/A с библиотекой констант DLC/MCUDAT-1.0. *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика ядерных реакторов: научно-технический сборник* 2001; (3): 50-55.
8. Brown D. A., Chadwick M. B., Capote R., Kahler A. C., Trkov A., Herman M.W. end et. al. ENDF/B-VIII.0: The 8th Major Release of the Nuclear Reaction Data Library with CIELO-project Cross Sections. *New Standards and Thermal Scattering Data. Nuclear Data Sheets* 2018; (148): 1–142.
9. Валишин М.Ф. Закономерности выгорания кадмия в органах регулирования реактора РБТ-6. В кн. Мохов В.А., редактор. Сборник трудов 17-ой международной научно-технической конференции молодых специалистов по ядерно энергетическим установкам. (25-26 марта 2015 года), г. Подольск. Подольск: Издательство АО ОКБ «ГИДРОПРЕСС»; 2015. Электронное издание. С.11.
10. Mughabghab S.F. Atlas of Neutron Resonances. Resonance Parameters and Thermal Cross Sections Z=1–100. *Annals of Nuclear Energy ANN NUCL ENERG* 2006; (33): 1157-1158.
11. Neutron transmutation doping of silicon at research reactors. Vienna International Atomic Energy Agency IAEA-TECDOC series ISSN 1011 4289 2012; (1681): 92 p.
2. Ota A., Aitkulov M., Dyussambayev D., Gizatulin Sh., Kenzhin Ye., Kanazawa H., and et al. Study of the axial neutron flux distribution in the irradiation device with a cadmium-screen. V kn. Kenzhin E.A., redaktor. Tezisy II Mezhdunarodnogo nauchnogo foruma «Yadernaya nauka i tekhnologii» (v pechati) (24-27 iyunya 2019 goda), g. Almaty. Almaty: RGP «Institut yadernoj fiziki»; 2019. 140 p. (in Russian).
3. Romanova N., Gizatulin Sh., Dyussambayev D., Shaimerdenov A., Aitkulov M. and Kenzhin Ye. Calculated and experimental studies at critical facility in view of development of a technology for neutron transmutation doping of a large size silicon specimen in WWR-K reactor. 6th International Congress "Energy Fluxes and Radiation Effects" (September 16 - 22, 2018). *IOP Conf. Series: Journal of Physics: Conf. Series* 2018. (1115) 032052.
4. Arinkin F.M., Shaimerdenov A.A., Gizatulin Sh.H., Dyussambayev D.S., Koltchnik S.N., Chakrov P.V., i dr. Konversiya aktivnoj zony issledovatel'skogo reaktora VVR-K [WWR-K research reactor conversion of the core]. *Атомная энергия* 2017; 123(1): 15-20. (in Russian).
5. Gurevich M.I., Shkarovskij D.A. Raschet perenosa nejtronov metodom Monte-Karlo po programme MCU: Uchebnoe posobie [MCU program for calculation of neutron transport by the Monte Carlo method]. Moscow: Nacional'nyj issledovatel'skij yadernyj universitet «MIFI»; 2012. 154 p. (in Russian).
6. MCNP6 User's Manual. Los Alamos National Laboratory: LA-CP-13-00634; 2013.
7. Abagyan L.P., Alekseev N.I., Bryzgalov V. I., Gomin E.A., Kalugin M.A., Majorov L.V. i dr. Programma MCU-REA s bibliotekoj konstant DLC/MCU.DAT-1.0 [MCU-REA program with the constant of library DLC/MCU.DAT-1.0]. *Voprosy atomnoj nauki i tekhniki. Seriya: Fizika yadernyh reaktorov: nauchno-tekhnicheskij sbornik* 2001; (3): 50-55. (in Russian).
8. Brown D. A., Chadwick M. B., Capote R., Kahler A. C., Trkov A., Herman M.W. end et. al. ENDF/B-VIII.0: The 8th Major Release of the Nuclear Reaction Data Library with CIELO-project Cross Sections. *New Standards and Thermal Scattering Data. Nuclear Data Sheets* 2018; (148): 1–142.
9. Valishin M.F. Zakonomernosti vygoraniya kadmiya v organah regulirovaniya reaktora RBT-6 [Patterns burnup of the cadmium control rod on the RBT-6 reactor]. V kn. Mohov V.A., redaktor. Sbornik trudov 17-oj mezhdunarodnoj nauchno-tekhnicheskoj konferencii molodyh specialistov po yaderno energeticheskim ustanovkam. (25-26 marta 2015 goda), g. Podol'sk. Podol'sk: Izdatel'stvo AO OKB «GIDROPRESS»; 2015. Elektronnoe izdanie. P.11 (in Russian).
10. Mughabghab S.F. Atlas of Neutron Resonances. Resonance Parameters and Thermal Cross Sections Z=1–100. *Annals of Nuclear Energy ANN NUCL ENERG* 2006; (33): 1157-1158.
11. Neutron transmutation doping of silicon at research reactors. Vienna International Atomic Energy Agency IAEA-TECDOC series ISSN 1011 4289 2012; (1681): 92 p.

References

1. Romanova N.K., Gizatulin Sh.H., Nakipov D.A., Takemoto N., Kimura N., Tsuchiya K. i dr. Issledovanie vozmozhnosti transmutacionnogo legirovaniya kremniya na reaktore VVR-K. [Investigation of possibility to produce neutron transmutation doping silicon at the WWR-K reactor]. V kn.: Anishhik V.M., redaktor. Materialy 11-j Mezhdunarodnoj konferencii «Vzaimodejstvie izluchenijs s tvjordym telom». (23-25 sentjabrja 2015), g. Minsk. Minsk: Izdatel'skij centr BGU; 2015. С.147-148.