

Нестационарная диффузия нейтронов в гидриде циркония

А. В. Антонов, Б. В. Гранаткин, М. В. Казарновский,
Ю. А. Меркульев, В. Э. Нозик, М. С. Юдкевич

Объёмная концентрация водорода в гидриде циркония ZrH_x при $x = 2$ почти такая же, как в воде. При атмосферном давлении гидрид циркония практически не теряет водород вплоть до температур в несколько сот градусов Цельсия, что позволяет использовать этот замедлитель в высокотемпературных реакторах. С кристаллографической точки зрения, гидрид циркония аналогичен флюориту (CaF_2). Взаимодействие нейтронов с кристаллом может быть рассчитано теоретически. Сравнение полученных результатов с экспериментом может дать материал для уточнения теоретических предположений.

Нестационарная диффузия и заключительный этап термализации нейтронов в гидриде циркония до настоящего времени исследовались только при комнатной температуре^{1,2}. Целью данной работы является экспериментальное и теоретическое исследование процесса нестационарной диффузии нейтронов в гидриде циркония ZrH_x в интервале температур от $77^\circ K$ до $500^\circ K$. Как известно³, плотность нейтронов в замедлителе спустя достаточно большое время после облучения его вспышкой быстрых нейтронов затухает по экспоненциальному закону $\sim \exp(-\lambda t)$. Константа λ определяется выражением

$$\lambda = \overline{\Sigma_a v} + \overline{DB^2} - \overline{CB^4} + \overline{FB^6} + \overline{GB^8} + \dots \quad (1)$$

где v^2 — наименьшее собственное значение оператора Лапласа для замедлителя заданной формы и размера (подразумеваются "экстраполированные" размеры, т.е. увеличенные на $Z_0 = 0,71\lambda_{tr}$) $\bar{\Sigma}_a v$ — вероятность поглощения нейтронов, \bar{D} — усреднённый по распределению скоростей коэффициент диффузии нейтронов, C — коэффициент диффузионного охлаждения, параметры F и G — наглядного физического смысла не имеют. Здесь и в дальнейшем нерасшифрованные обозначения являются общепринятыми (см., например, 3,4). На опыте измеряют значения λ для систем разных размеров (различные v^2) и подгонкой к выражению (1) определяют диффузионные параметры. Однако, аппроксимация экспериментальной зависимости $\lambda(v^2)$ степенным рядом (1) для некоторых замедлителей оказывается практически невозможной ввиду плохой его сходимости. Последнее обстоятельство (имеющее место и для ZrH_x) заставляет определять из эксперимента большое число не связанных друг с другом дополнительных параметров F , G и т.д.

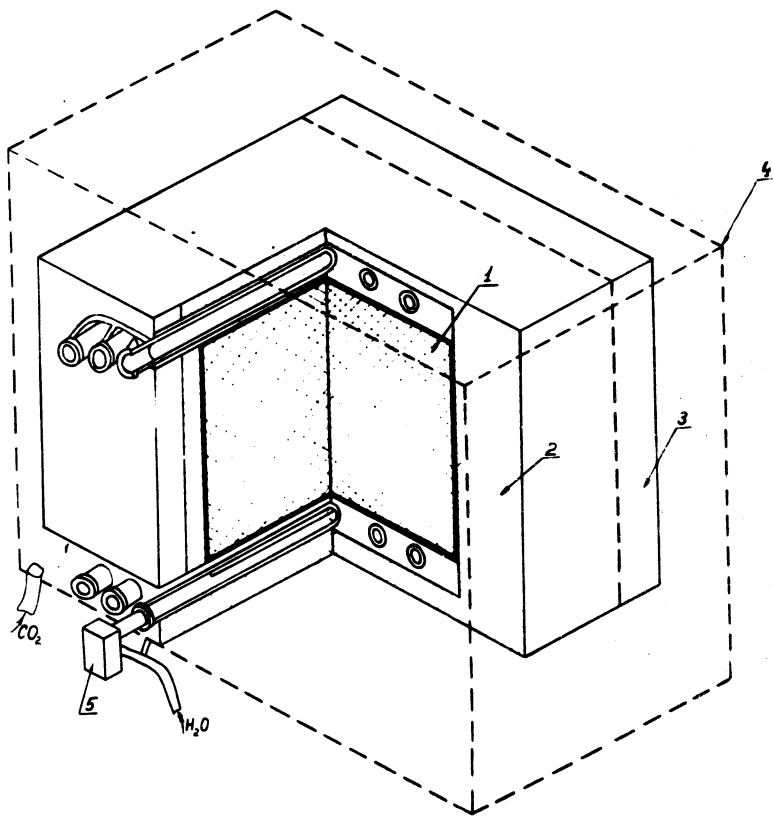
Из простых физических соображений следует, что неубывающая функция $\lambda(v^2) - \bar{\Sigma}_a v$ не может расти быстрее, чем $\bar{D}v^2$. Здесь для простоты считается, что величина λ достигает предела Корнгольда $\lambda^0 = [v \Sigma_t]_{\min}$ при очень больших значениях v^2 . Из приведённых соображений ясно, что попытка аппроксимировать зависимость $\lambda(v^2)$ какой-либо простейшей функцией, не противоречащей приведённым выше ограничениям и при малых v^2 совпадающей с рядом (1), является естественной и достаточно целесообразной. Для данной аппроксимации, в частности, подходит выражение

$$\lambda = \bar{\Sigma}_a v + \bar{D}v^2 \left(1 - \frac{1}{\delta} cv^2\right)^\delta \quad (2)$$

где, $-1 \leq \delta \leq 0$, а коэффициент $c = \frac{C}{\bar{D}}$. При этом параметры C и \bar{D} имеют прежний смысл. Действительно, выражение (2) переходит в (1) при $v^2 \rightarrow 0$; при $v^2 \rightarrow \infty$

величина λ растёт $\sim (v^2)^{1/2}$. Решение кинетического уравнения в диффузионном приближении при выполнении некоторых условий, сформулированных в⁶, даёт зависимость $\lambda(v^2)$, весьма близкую к функции (2). Основным из этих условий является возможность сконструировать ядро рассеяния из произведения двух функций, одна из которых зависит только от начальной энергии нейтрона, а вторая — от конечной⁷ ("сепарабельная модель" ядра рассеяния).

Исследования проводились с гидридом циркония плотности $\rho = 5,05 \text{ г/см}^3$, примеси составляли не более 0,25% по весу. Исследовались объёмы замедлителя, близкие к кубическим. Они собирались из параллелепипедов размером $3 \times 3 \times 1,5 \text{ см}^3$. Общая схема опыта подобна описанной в работе³. На рис. 1 изображено устройство, служившее для нагрева блоков гидрида циркония и размещения нейтронных детекторов, охлаждавшихся водой. Установка, из соображений техники безопасности, накрывалась стальным кожухом, подсоединённым к вытяжной вентиляции. Воздух под кожухом вытеснялся углекислым газом, который медленно обтекал гидридную сборку и отсасывался вентиляцией. Температура контролировалась термомпарами с точностью 1 — 2°. Разница температур между центром сборки и периферийными точками не превышала 5°. Для измерений при температуре сухого льда (195°K) и температуре жидкого азота (77°K) гидрид циркония размещался в пенопластовых кристатах. Периодические анализы показали, что содержание водорода в гидриде циркония соответствовало формуле $ZrH_{1,9}$ и оставалось постоянным в пределах 1-2%. При каждой из исследованных температур снимались кривые затухания нейтронной плотности для 15-30 различных блоков. Для температур выше комнатной значения v^2 варьировались от $0,02 \text{ см}^{-2}$ до $0,35 \text{ см}^{-2}$; при комнатной и ниже изменялись от $0,02 \text{ см}^{-2}$ до $\sim 1 \text{ см}^{-2}$. Экспериментальные значения λ аппроксимировались выражением (2) при $\gamma = -1$. Найденные значения коэффициентов \bar{D} и c в функции от T



Р и с. 1. Установка для температурных измерений в гидриде циркония.

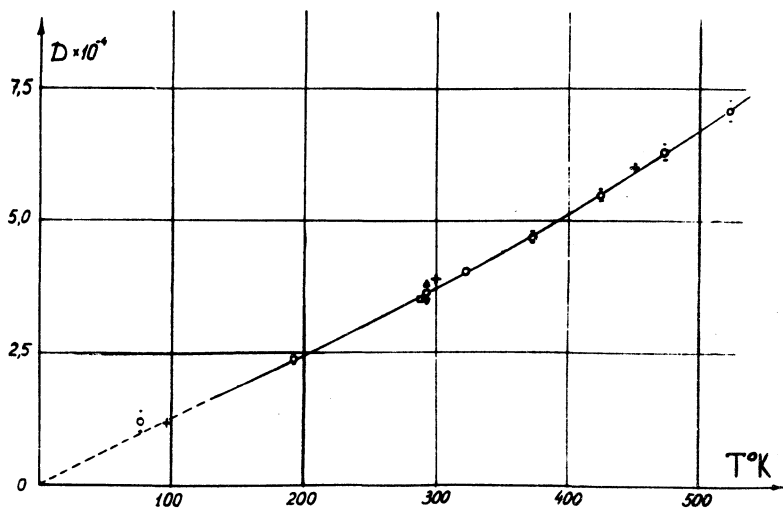
1 - сборка гидрида циркония, завёрнутая в са толщиной 0,6 мм, 2 - защита из V_4C_3 , 3 - электрическая печь, закрытая чехлом V_4C_3 , 4 - герметический стальной кожух, 5 - нейтронный детектор с предусилителем в канале для измерений.

приведены на рисунках 2 и 3, соответственно. Для контроля экспериментальные данные были обработаны также традиционным методом путём аппроксимации функции трёхчленным степенным рядом вида (1). При этом учитывались только экспериментальные точки с $v^2 \leq 0,23 \text{ см}^{-2}$. Полученные значения \bar{D} хорошо совпали с величинами, найденными с помощью аппроксимации (2); значения C при всех температурах оказались меньшими на 20–30%, что, по-видимому, связано с отбрасыванием высших членов разложения в формуле (1).

Экспериментальная зависимость для \bar{D} (при $300^\circ\text{K} \leq T \leq 500^\circ\text{K}$) описывается формулой $\bar{D} = \bar{D}_0 \left(\frac{T}{T_0}\right)^w$, где $\bar{D}_0 = (3,75 \pm 0,08) 10^4 \text{ см}^2/\text{сек}$, $T_0 = 300^\circ\text{K}$, $w = 1,15 \pm 0,1$.

При температурах ниже комнатной, экспериментальные точки лежат выше этой кривой, что свидетельствует о тенденции к уменьшению w с понижением температуры. На рисунке 2 приведены также экспериментальные значения, полученные в работах^{1,2}, и теоретические значения, рассчитанные нами по кристаллической модели, а также расчётные значения из работы⁸. Сечения рассеяния, которые, в основном, определяются спектром нормальных колебаний атомов водорода⁶, рассчитывались в некогерентном приближении по программе Прассив⁹. Оптическая ветвь спектра представлялась в виде равнобедренного треугольника с центром при $\hbar\omega = 0,13 \text{ эв}$ и длиной основания $0,04 \text{ эв}$; акустические колебания описывались дебаевским спектром с температурой Дебая 230°K . Соотношение весов акустической и оптической ветвей принималось равным $1 : 360$. Зависимости $\lambda(v^2)$ для температур 300°K и 450°K , 97°C были рассчитаны в v^2 - приближении. При расчёте использовалась 36-групповая система констант с шириной группы $0,005 \text{ эв}$. Предел Корягольда при $T = 300^\circ\text{K}$ оказался равным $\lambda_* = 11500 \text{ сек}^{-1} + \overline{\Sigma_a v}$ (экспериментальное значение $\overline{\Sigma_a v} = (5850 \pm 100) \text{ сек}^{-1}$).

Вычисленные нами величины удовлетворительно совпадают с экспериментальными (при температурах 300°K и 450°K различие менее 4%). Рассчитанное в⁸ значение \bar{D} при комнатной температуре хорошо согласуется



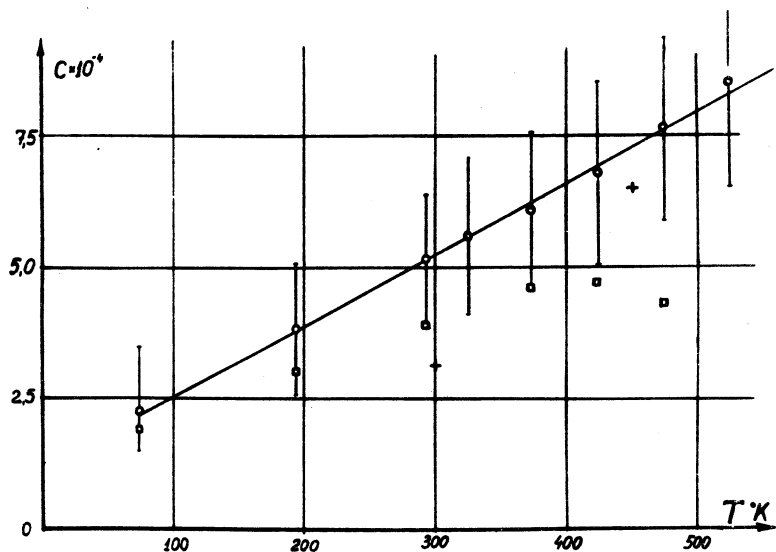
Р и с. 2. Зависимость коэффициента диффузии \bar{D} от температуры.

$$\text{Сплошная кривая } \bar{D} = 3,75 \cdot 10^4 \left(\frac{T}{300} \right)^{1,15};$$

○ - экспериментальные данные; + - расчёт по модели кристалла; ▽ - эксперимент¹, исправленный на плотность, Δ - теоретический расчёт¹⁴.

с вычисленным нами. Расчёт в работе⁸ был проведён по аналогичной модели, но при параметрах, несколько отличающихся от принятых нами - отношение весов акустической и оптической ветвей принималось равным 0,005, а температура Дебая 312°K. Наблюдающееся совпадение можно считать вполне естественным, т.к. коэффициент диффузии определяется главным образом

величиной сечения упругого рассеяния и слабо зависит от температуры Дебая. Однако, значение коэффициента C и предел Корнгольда λ^* , по-видимому, весьма чувствительны к подобному изменению параметров модели. Так, например, рассчитанное в работе ⁸ значение



Р и с. 3. Зависимость коэффициента диффузионного охлаждения C от температуры.

- - экспериментальные значения, рассчитанные по формуле (2) и □ - обработанные по параболе (1),
- + - рассчитанные значения по модели кристалла.

λ^* - $\overline{\Sigma_a v}$ приблизительно в полтора раза меньше полученного нами.

Рассчитанные по кристаллической модели значения C , показанные на рис. 3, лежат ниже экспериментальных; это, по-видимому, связано с недостаточной точностью использованных при расчётах данных по неупругому сечению рассеяния нейтронов для гидрида циркония.

В заключение авторы искренне благодарят за помощь в работе А. И. Исакова и Э. А. Стумбура. Также авторы благодарны И. П. Матвеевко, В. В. Курдеву и А. А. Тихомирову за участие в предварительных измерениях и помощь в создании установки.

Поступила в редакцию
26 февраля 1970 г.

Л и т е р а т у р а

1. Meadows J.W. and Whalen J.F. Nucl. Sci. Eng. 13, 230 (1961).
2. Стумбур Э. А., Матвеевко И. П., Шокодько А. П. Атомная энергия, 23, вып. 2, 154 (1967).
3. Антонов А. В., Гранаткин Б. В., Меркульев Ю. А., Смолик Ч. К. Труды симпозиума по неупругому рассеянию нейтронов. Вена (1960 г.).
4. Турчин В. Ф. Медленные нейтроны. Москва, 1963.
5. N. Corngold et al, Nucl. Sci. Eng. 29, 374 (1967).
6. Антонов А. В. и др. Препринт ФИАН №8, (1969).
7. N. Corngold et al, Nucl. Sci. Eng. 15, 13 (1963).
8. Reichardt W. Proc. Symp. Ann Arbor Neutron Thermalization and Reactor Spectra VII p 411 (1967).
9. Турчин В. Ф. Атомная энергия 19, 428 (1965).