

ДИФфуЗИИ НЕЙТРОНОВ В ГИДРИДЕ ЦИРКОНИЯ
ПРИ ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

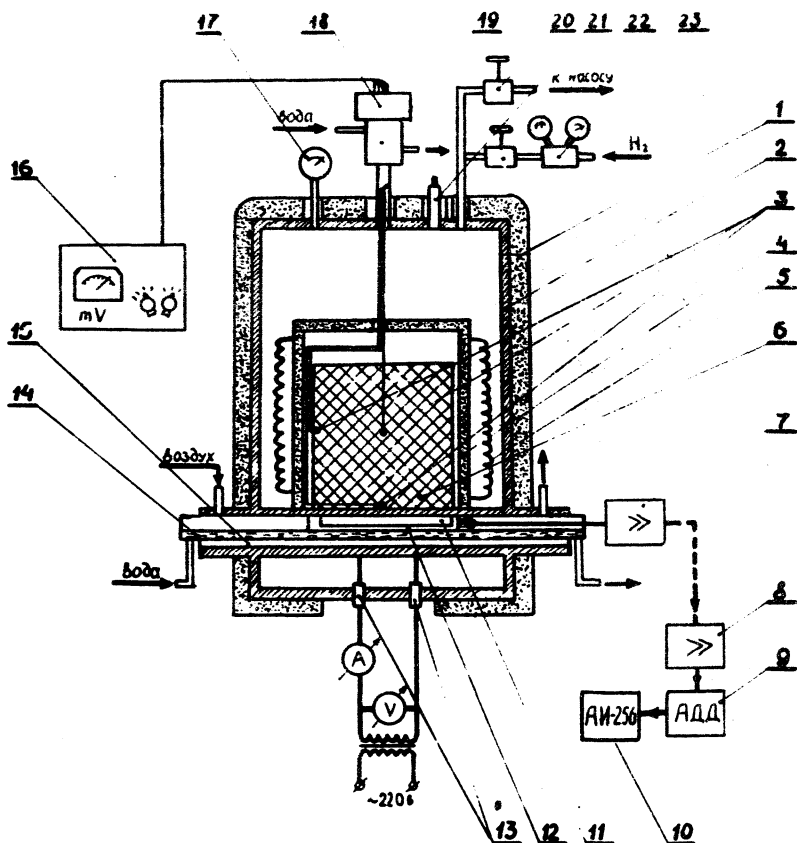
А. В. Антонов, А. И. Исаков, В. И. Куликов,
Ю. А. Меркульев, А. И. Никитенко

УДК 539.125.52

Экспериментально изучена нестационарная диффузия нейтронов в гидриде циркония при температурах от комнатной до 500 С. Впервые измерены коэффициент диффузии нейтронов и коэффициент диффузионного охлаждения С в $ZrH_{1,9}$ при температурах выше 250 С.

Гидрид циркония является перспективным замедлителем нейтронов для малогабаритных ядерных реакторов. Основным преимуществом $ZrH_{1,9}$ является то, что он обладает высокой концентрацией атомов водорода и может работать при температурах 400–600°С, практически, при атмосферном давлении. Однако, до настоящего времени не опубликовано данных о диффузионных константах гидрида циркония при температурах, близких к рабочим в ядерных реакторах. Имеются лишь две публикации [1,4] о температурных зависимостях параметров диффузии при температурах до 250 С.

Данная работа представляет собой развитие выполненных ранее в ФИАНЕ исследований [1] нестационарной диффузии и термализации нейтронов в $ZrH_{1,9}$; она посвящена изучению коэффициентов диффузии и диффузионного охлаждения в $ZrH_{1,9}$ при температурах от комнатной до 500 С. Опыты проводились в специальной установке, схематически изображенной на рис. 1, с образцами циркония, имеющими атомарный состав 1:1,887, т.е. $ZrH_{1,9}$ и плотностью 5,0 г/см³. Основным узлом установки является герметичный контейнер, способный выдерживать нагрев до 600°С и давление до 20 атмосфер. В этом контейнере размещались образцы гидрида циркония, окруженные защитой от фоновых нейтронов (порошок сернистого кадмия cs_2 в алюминиевых коробках). С боковых сторон образца (внутри контейнера) размещалась электрическая печь мощностью 3 квт. Температура образца контролировалась в трех точках термопарами хромель-



Р и с. I. Принципиальная схема установки для измерений с гидридом циркония при высоких температурах: I - чехол, заполненный B_4C ; 2 - стабильногерметичный контейнер; 3 - термопары; 4 - алюминиевые коробки с порошком из CaS ; 5 - электропечь; 6 - исследуемый образец; 7 - предусилитель; 8 - усилитель; 9 - дискриминатор; 10 - анализатор импульсов; 11 - счетчик нейтронов; 12 - защитное кадмиевое покрытие; 13 - электровводы в контейнер; 14 - кожух, охлаждаемый водой; 15 - воздушный зазор для охлаждения; 16 - пульт для регулирования и контроля за температурой; 17 - манометр; 18 - выходы термопар; 19 - водяное охлаждение выводов термопар; 20 - вентиль на откачку объема; 21 - аварийный клапан; 22 - вентиль на наполнение водородом; 23 - водородный редуктор

алюмель. Выводы термопар были сделаны в верхней части контейнера. Давление в контейнере контролировалось по манометру. В нижней части под образцом через контейнер проходила сквозная труба для размещения детектора нейтронов. В защите из CdS напротив детектора был сделан вырез. Детектор — пропорциональный счетчик, наполненный He^3 , окружался кадмием, в котором напротив образца также имелась прорезь. Для того, чтобы не перегреть детектор, он размещался в кожухе с водяным охлаждением; между этим кожухом и нагретой трубой контейнера имелся зазор, через который от специальной помпы продувался воздух. Весь контейнер защищался от фоновых нейтронов специальными коробками с засыпкой из карбида бора (B_4C) толщиной 2,5 см.

Импульсы от детектора нейтронов после усиления и дискриминации регистрировались на многоканальном временном анализаторе АИ-256. Статистическая погрешность нейтронных измерений 0,1-0,2% была почти на порядок ниже относительных ошибок в записи температуры и других возможных систематических ошибок.

Образцы из гидрида циркония облучались вспышками быстрых нейтронов с энергией 14 мэв, которые генерировались по реакции $T(d,n)He^4$ на импульсном нейтронном генераторе с энергией дейтронов в пучке 280 кэв. Длительность импульса быстрых нейтронов составляла 7 мксек. Частота следования импульсов 600 гц.

Быстрые нейтроны, попавшие в блок гидрида циркония во время вспышки, замедляются, диффундируют поглощаются и частично вытекают из него. После прохождения стадий замедления и термализации спад плотности нейтронов со временем $N(t)$ в замедлителе происходит по экспоненциальному закону $N_0 \exp(-\lambda t)$ с постоянной λ , зависящей от свойств среды (вероятности поглощения $\Sigma_a V$, коэффициента диффузии \bar{D} и коэффициента диффузионного охлаждения C) и от геометрических размеров системы, точнее лапласиана или геометрического параметра B^2 .

$$\lambda = \Sigma_a V + \bar{D} B^2 - C B^4 + G B^6 + F B^8 + \dots \quad (1)$$

Однако, как было показано в работе /1/, более удобно пользоваться зависимостью

$$\lambda = \Sigma_a V + \frac{\bar{D} B^2}{1 + \frac{C}{\bar{D}} B^2}, \quad (2)$$

причем зависимость вида (2), имея всего 3 параметра, удовлетворительно описывает экспериментальные точки $\lambda_1(V_1^2)$ во всем доступном для измерений диапазоне V^2 . $\bar{\Sigma}_a V$ принималась равной 5850 сек^{-1} на основании предшествующей работы /1/. Измерения $N(t)$, а следовательно и $\lambda_1(t)$ проводились для каждого из шести исследованных блоков гидрида циркония при температурах от комнатной до 500 C , в среднем, в 25–30 температурных точках. Кривые $\lambda_1(t)$ строились с учетом того, что измеренные λ_1 принадлежат одной гладкой поверхности. Считалось, что производная $d\lambda/dt$ есть линейная функция V^2 (см.рис.2). На рис.2а приведены также значения $d\lambda/dt$, полученные ранее /3/. Вся эта процедура необходима для интерполяции получаемых экспериментальных данных, чтобы получить набор значений λ_1 для выбранных температур (см.рис.2). При одиннадцати температурах были найдены наборы λ_1 для шести значений V_1^2 . По этим значениям были определены коэффициент \bar{D} и коэффициент диффузионного охлаждения C , приведенные в таблице.

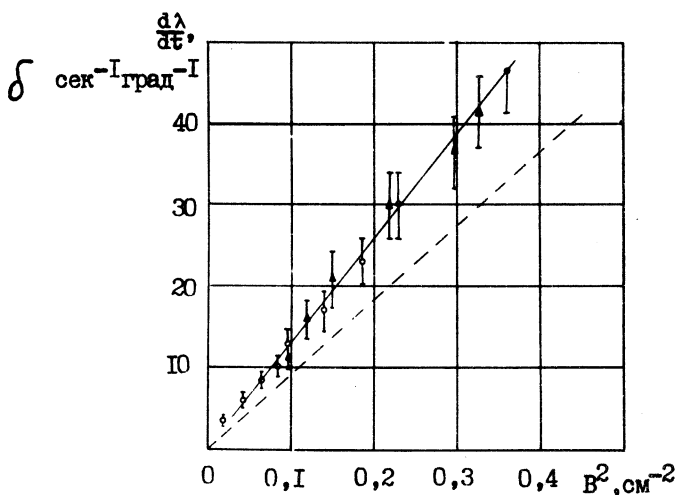
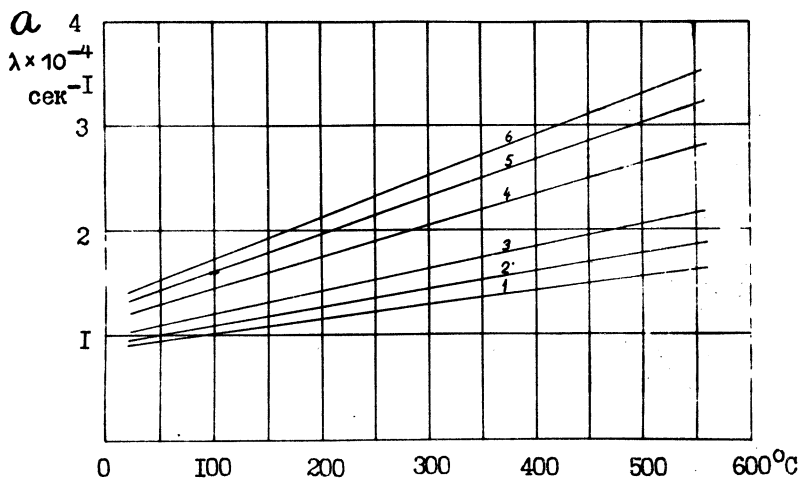
Таблица I

Параметры диффузии и термализации нейтронов для гидрида циркония при различных температурах

| | t, C | $\bar{D} \times 10^{-4}, \text{cm}^2 \text{сек}^{-1}$ | $C \times 10^{-4}, \text{cm}^4 \text{сек}^{-1}$ | α | $\mu_2, \text{барн}$ |
|----|---------------|---|---|----------|----------------------|
| I | 20 | $3,62 + 0,07$ | $4,8 + 0,6$ | 0,45 | 3 |
| 2 | 50 | $4,04 + 0,08$ | $5,1 + 0,7$ | 0,47 | 4 |
| 3 | 100 | $4,78 + 0,09$ | $5,3 + 0,7$ | 0,50 | 5 |
| 4 | 150 | $5,50 + 0,10$ | $5,7 + 0,8$ | 0,53 | 6 |
| 5 | 200 | $6,31 + 0,11$ | $6,1 + 0,9$ | 0,57 | 8 |
| 6 | 250 | $7,15 + 0,12$ | $6,5 + 1,2$ | 0,61 | 10 |
| 7 | 300 | $8,05 + 0,14$ | $7,1 + 1,4$ | 0,66 | 11 |
| 8 | 350 | $8,93 + 0,17$ | $7,6 + 1,6$ | 0,69 | 13 |
| 9 | 400 | $9,85 + 0,20$ | $8,1 + 1,8$ | 0,70 | 15 |
| 10 | 450 | $10,6 + 0,25$ | $8,6 + 2,0$ | 0,71 | 16 |
| 11 | 500*) | $11,6 + 0,3$ | $9,0 + 2,5$ | 0,72 | 18 |
| 12 | 550*) | $12,4 + 0,4$ | $9,3 + 3,0$ | 0,72 | 19 |
| 13 | -79**) | $2,36 + 0,08$ | $3,6 + 0,7$ | 0,38 | 1,9 |
| 14 | -196**) | $1,2 + 0,2$ | $2,4 + 1,2$ | 0,25 | 0,7 |

*) Экстраполированные значения

***) Данные работ /1,3/



Р и с. 2. а) Зависимости от температуры постоянной спада плотности нейтронов со временем для блоков гидрида циркония различных размеров (в см) 1- 15х18х18; 2- 15х18х13,5; 3- 15х18х10,5; 4- 15х18х9; 5- 15х18х7,5; 6- 15х18х6

б) Зависимости наклона $\frac{d\lambda}{dt}$ кривых $\lambda(t)$ от геометрического параметра V^2 при 450°К; пунктиром приведены данные работы /4/ для 300°К

Полученные значения параметров диффузии при температурах меньше 250°C хорошо совпадают с опубликованными ранее (I,2,3) данными. Интересно отметить, что полученные ранее экстраполированием результаты /I,2/ при температуре 523°K хорошо совпали с найденными в настоящих измерениях. Это означает, что подобный метод экстраполяции рационален, и температурную зависимость $\lambda(T)$, найденную в данной работе, целесообразно проэкстраполировать в область более высоких температур, практически, вплоть до точки температурного разложения $ZrH_{1,9} \sim 823$ K, вблизи которой может произойти разрушение блоков гидрида циркония вследствие эвтектоидных превращений.

Измерения проводились с блоками гидрида циркония как в процессе подъема температуры, так и при охлаждении их (до комнатной температуры). Результаты измерений λ при повышении и при понижении температуры блоков совпадали с точностью до статистической ошибки. Это свидетельствует о том, что то незначительное количество водорода, которое выходило из блоков гидрида циркония вследствие высокотемпературной диссоциации (давление увеличивалось до 5 атм), после охлаждения почти полностью адсорбировалось цирконием.

Экспериментальные точки \bar{D} можно описать зависимостью

$$\bar{D} = \bar{D}_0 \left(\frac{T}{T_0} \right)^\gamma \quad (3)$$

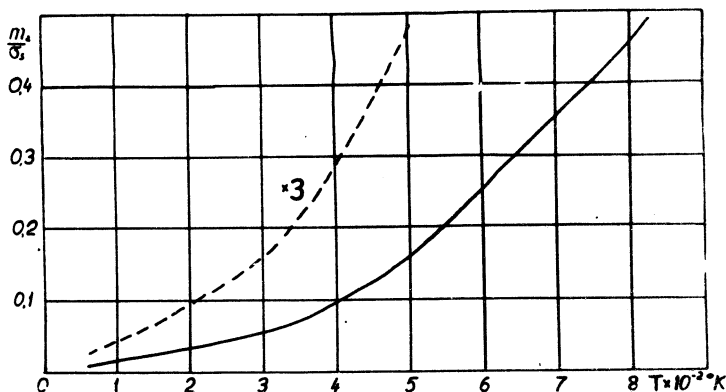
при $\bar{D}_0 = (3,77 + 0,06) \cdot 10^4$ см²/сек и $\gamma = 1,18 + 0,05$. Эти значения находятся в хорошем согласии с результатами, полученными в работе /I/: $\bar{D}_0 = (3,75 + 0,08) \cdot 10^4$ см²/сек и $\gamma = 1,15 + 0,08$ для гидрида циркония того же состава и плотности. При температурах выше 600°K зависимость $D(T)$ более пологая, чем в области 400 - 500°K.

Зависимость коэффициента диффузионного охлаждения от температуры, полученная в настоящем эксперименте, менее резкая, чем в работе /I/, но различие лежит в пределах ошибки опыта. Экспериментальные точки можно описать простой линейной функцией

$$c(T) = c_0 \left(1 + \alpha \frac{T}{T_0} \right),$$

$$\alpha = 1,3; T_0 = 300^\circ\text{C}; c_0 = (2,0 \pm 0,3) \cdot 10^4 \text{ см}^4/\text{сек}.$$

Для анализа процессов обмена энергией между нейтронами и гидридом циркония (термализация) был оценен параметр m_2 - второй энергетический момент сечения рассеяния нейтронов. С измеренными па-



Р и с. 3. Зависимость от температуры термализационного параметра для гидрида циркония

аметрами диффузии он связан следующим соотношением:

$$m_2 = \frac{(\alpha + 1/2)^2 \sqrt{\pi} D^2}{n_A V_0^2}$$

где V_0 - скорость нейтрона, соответствующая температуре вещества, α - показатель степенной зависимости транспортного сечения от энергии ($\lambda_{tr} \sim E^\alpha$), n_A - число ядер вещества в см^3 . При вычислении m_2 значения параметра α оценивались на основании данных, опубликованных в работах /6,7,8/, и результатов настоящих измерений. Полученные значения α и m_2 приведены в таблице. На рис. 3 для разных температур приведены отношения параметра m_2 к σ_s - сечению рассеяния нейтронов на водороде для кристалла гидрида циркония. При повышении температуры от 300°K до 900°K параметр m_2/σ_s возрастает почти в 10 раз, что объясняется, по-видимому, увеличением вероятности возбуждения оптических фононов при нагревании $\text{ZrH}_{1,9}$. Эта вероятность приблизительно пропорциональна $\hbar\omega_{\text{опт}}/kT$, где $\hbar\omega_{\text{опт}}$ - средняя энергия оптических фононов в $\text{ZrH}_{1,9}$; по данным работы /9/ $\hbar\omega_{\text{опт}} \approx 0,14$ эв. Для сравнения укажем, что в воде

параметр m_2/σ_s при повышении температуры от 300°K до 600°K увеличивается всего на 40%.

Таким образом, впервые получены температурные зависимости параметров диффузии нейтронов для гидрида циркония в широком диапазоне вплоть до температуры его разложения. Показано, что вблизи 700°K - 800°K диссоциация существенно не изменяет процессов диффузии и термализации нейтронов.

В заключение авторы выражают благодарность О. Ф. Галкину и Р. Н. Трактирникову за помощь в подготовке измерительного устройства, И. А. Копысову и А. А. Тихомирову за подготовку электроники.

Поступила в редакцию
19 декабря 1973 года.

Л и т е р а т у р а

1. А. В. Антонов и др. Препринт ФИАН, № 9, 1969 г.
2. А. В. Антонов и др. "Атомная энергия", 29, 201 (1970).
А. В. Антонов, Б. В. Гранаткин, М. В. Казарновский, Ю. А. Меркульев, В. З. Нозик, М. С. Юдкевич. Краткие сообщения по физике ФИАН, № 4, 29 (1970).
3. Ю. А. Меркульев. Диссертация, ФИАН, 1972 г.
4. M. Knoche, Nucleonik, 12, 84 (1969).
5. M. Nelkin, Nucl. Sci. Engng., 8, 48 (1958).
6. W. Gläser, Nucleonik, 11, 282 (1968).
7. J. R. Beyster, G. M. Borgonovi, Nucleonik, 12, 143 (1969).
8. J. R. Beyster et al. "Neutron Thermalisation and Reactor Spectra", Proc. Symp. Ann. Arbor, USA, 1967. IAEA, Vienna, 1968, v. I, p. 493.
9. J. G. Couch, O. K. Harling, Lavern C. Clune. Phys. Rev., 4B, 2675 (1971).