

氢化锆-水-铀栅格特性研究

成文华 周菊英 罗璋琳 李文虎 陈金章

张章百 王渭君 赵品台 杨大华 朱国盛

(中国原子能科学研究院, 北京)

本文的目的在于研究氢化锆在增殖系统中的慢化特性, 在 N_H/N_s 为 233—543 范围内做了七个临界实验, 在 $N_H/N_s = 233, 337$ 两个准均匀栅格上做了热谱、通量分布、温度系数、瞬发中子衰减常数、材料的反应性系数等测量。七个临界实验、两个准均匀栅格的热谱与反射层节省等测量结果均与理论计算结果相符合, 计算中用的是一维四群扩散理论, 氢化锆介质的散射核是用晶格结构的声子谱模型获得的, 从而说明这个计算模型是可用的。

关键词 氢化锆, 晶格结构的声子谱模型, 散射核, 反射层节省, 热中子通量谱, 能谱参数, 温度系数, 瞬发中子衰减常数, 裂变径迹法, 堆振荡法, 材料反应性系数。

一、引言

氢原子在氢化锆中处于晶格束缚态, 因此它的中子物理特性与其它含氢介质不同, 在热能化过程中, 中子与氢化锆中的氢原子之间的能量交换具有量子化特征。铀氢化锆是一种特殊的燃料慢化剂混合元件, 用这种元件装载的堆具有较大的负瞬态温度系数, 利用这个特征, 国外已建成了一批可供脉冲工况运行的独特堆型——TRIGA^[1], 日本建成这种堆直接用于核系统安全研究^[2]。

氢化锆与轻水不同, 在常压下可在很高温度下工作, 因此可用来建造小型动力堆, 作为人造地球卫星或其它可移动的电源, 例如 SNAP-10 A。因此对氢化锆堆的中子物理特性进行深入研究是有意义的, 我们建成了一个氢化锆-水-铀栅格的临界装置^[3], 做了一系列物理实验与理论分析, 验证了所选用的氢化锆介质的晶格结构的声子谱散射核是适用的。

二、临界实验与临界计算

为了测定临界质量随 N_H/N_s 的变化规律, 改变氢化锆内的燃料元件和锆管之间排列, 布置了七个不同的 N_H/N_s 栅格方案, 如图 1 所示。

用外推法和断源法测量了两个大的 N_H/N_s 方案的临界质量, 其余五个方案的临界质量都用外推法与内插法确定, 最后以内插临界的结果作为临界质量实验值列入表 1 中。同时, 还用一维四群扩散理论计算了七个方案的临界质量, 在热群参数计算中, 水中束缚氢的散射核是用尼尔金 (Nelkin) 核模型计算的, 氢化锆中束缚氢的散射核是用考虑了晶格结构的声子谱模型计算的, 活性区内其它物质的散射核是用重气体模型计算的。

临界质量的实验值与理论值随 N_H/N_s 变化的趋势是一致的, 除了第六和第七两个方

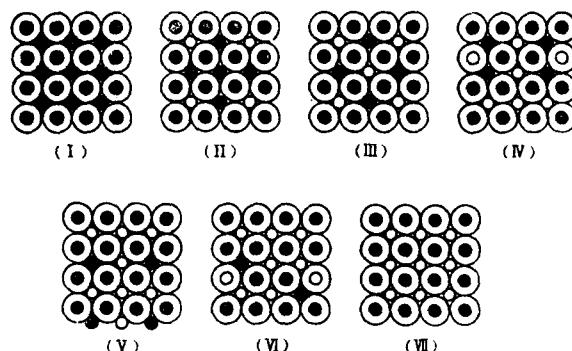


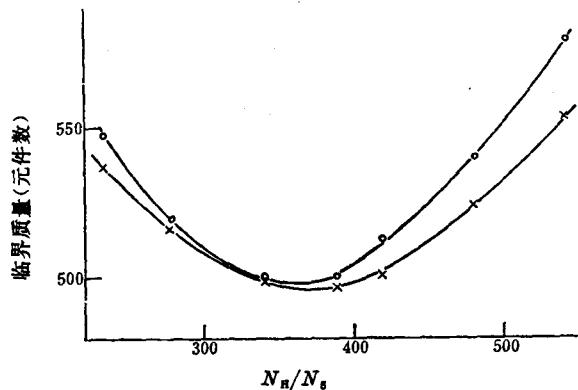
图 1 七个方案的栅格布置

◎——锆管 + 元件；○——锆管 + 水腔；●——元件；○——水腔。

表 1 七个方案的临界质量

方 案 号		I	II	III	IV	V	VI	VII
	$N_{\text{H}}/N_{\text{s}}$	233	278	337	395	419	481	543
	$N_{\text{H}}^{238\text{U}-7}/N_{\text{H}}^{235\text{U}}$	2.79	2.42	2.13	1.97	1.90	1.80	1.72
临界质量	元件质量	547.4	519.3	499.5	499.9	512.4	539.8	578.3
	U_3O_8 , kg	12.31	11.68	11.24	11.25	11.53	12.14	13.01
	U^{238} , kg	2.09	1.98	1.91	1.91	1.95	2.06	2.21
质量	元件根数	537.2	515.6	497.8	496.2	500.0	523.4	551.7
	U_3O_8 , kg	12.09	11.60	11.20	11.15	11.25	11.77	12.41
	U^{238} , kg	2.05	1.97	1.90	1.89	1.91	2.00	2.10
相 对 偏 差, %		1.9	0.7	0.4	0.7	2.4	3.2	4.8

案因为采用了断源法结果偏差较大外，其余五个方案的偏差均在 3% 以内，这说明用晶格结构模型算得的散射核来计算氢化锆堆是可行的。

图 2 临界元件根数随 $N_{\text{H}}/N_{\text{s}}$ 变化曲线

○——实验值，×——计算值。

三、中子通量分布与反射层节省测量

在方案 I 与 III 两个准均匀栅格上，用锰、镝-铝和镧-铝合金做成的三种探测片测量了径向和轴向中子通量分布。探测片的直径为 5 mm，厚 0.2 mm。照射时探测片固定在厚 0.5 mm 的硬铝条支架上的凹槽内，凹槽的直径为 6 mm。用作轴向通量分布测量的探测片

支架插在一根位于活性区中心的元件侧面，由上反射层到活性区底部，每隔 3 cm 或 1.5 cm 测一点。径向通量测点在元件的二分之一高度处，每隔 2.2 cm 布置一个测点。此外还测量了侧面反射层的径向通量。轴向和径向通量分布见图 3 与图 4。

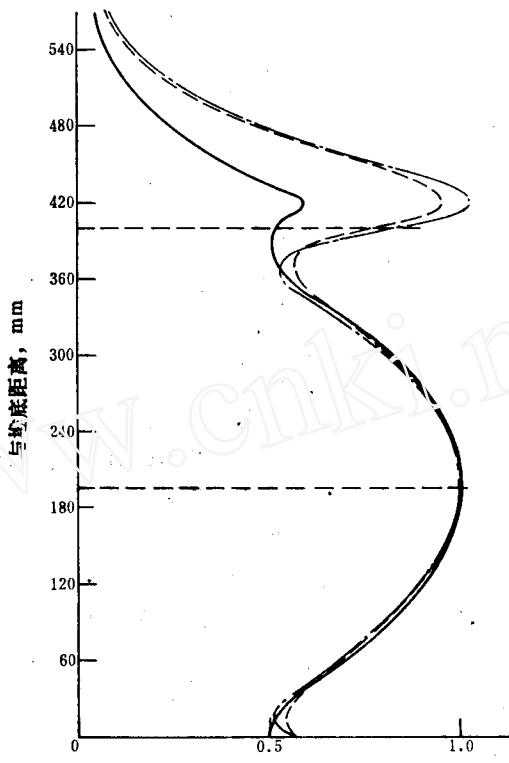


图 3 轴向相对中子通量分布($N_H/N_s=233$)
— In; - - - Dy; - · - Mn.

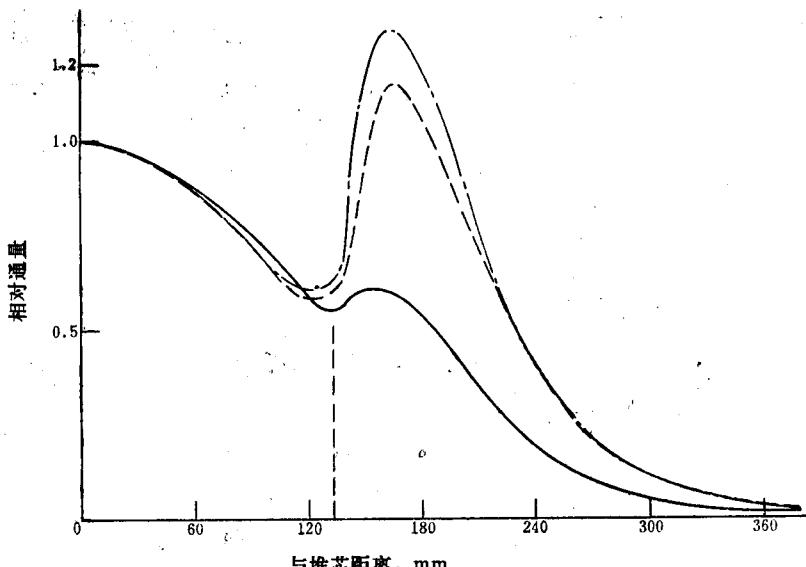


图 4 径向相对中子通量分布($N_H/N_s=233$)
— In; - - - Dy; - · - Mn.

用测镉比方法确定了能谱稳定性，在 $N_H/N_5 = 337$ 方案上，得到的径向镉比平坦区约为 22 cm。

从测得的相对中子通量分布中选取镉比平坦区内的点进行材料曲率的符合计算。除轴向和径向通量分布作单组符合计算外，径向符合计算时需要选用一些靠近反射层的实验点，这将引进较大误差，为考虑反射层的影响，还进行了双组处理，两种方法结果列在表 2。

表 2 在径向符合计算中单组与双组方法的结果比较

	单组计算（取 5 点）	双组计算（取 6 点）
钼片 有厚 ZrH _{1.7} 反射层	$\alpha = 0.118109 \text{ cm}^{-1}$ $\delta_r = 5.9131 \text{ cm}$	$\alpha = 0.119247 \text{ cm}^{-1}$ $\delta_r = 5.7194 \text{ cm}$
钼片 无 ZrH _{1.7} 反射层	$\alpha = 0.120519 \text{ cm}^{-1}$ $\delta_r = 5.5006 \text{ cm}$	$\alpha = 0.122323 \text{ cm}^{-1}$ $\delta_r = 5.2063 \text{ cm}$

表 3 列出了用钼片测量的结果，所列结果是 11 次测量的平均值。

表 3 两个栅格的材料参数及反射层节省的测量结果

方案 N_H/N_5	轴向结果		径向结果		B^2, cm^{-1}
	β, cm^{-1}	λ_b, cm	α, cm^{-1}	λ_r, cm	
233	0.06044 ± 0.00078	6.02 ± 0.33	0.11905 ± 0.00062	5.75 ± 0.10	0.01781 ± 0.00024
337	0.06204 ± 0.00031	5.30 ± 0.13	0.1129 ± 0.0013	5.35 ± 0.24	0.01659 ± 0.00032

用一维四群扩散方法计算了各方案的中子通量分布与反射层节省，将各方案的理论计算值与二个方案的实验值列在表 4 中，两者在 4% 范围内符合。

表 4 各方案反射层节省的理论计算值与实验测量值

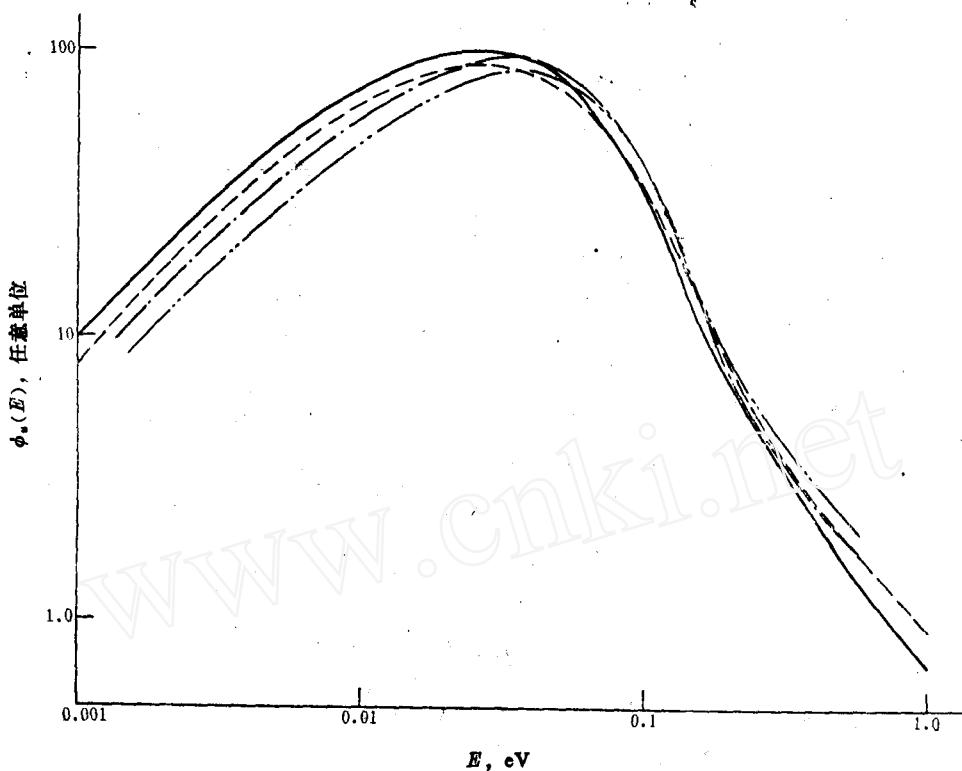
参 数	N_H/N_5						
	233	278	337	388	419	481	543
λ_r, cm	理论计算值 5.92 实验测量值 5.75	5.69 /	5.47 5.35	5.32 /	5.25 /	5.10 /	5.03 /
λ_b, cm	理论计算值 5.83 实验测量值 6.02	5.61 /	5.40 5.30	5.27 /	5.21 /	5.11 /	5.05 /

四、热中子通量谱与能谱参数测量

在 $N_H/N_5 = 233, 337$ 两个准均匀栅格上，用对热能中子灵敏的活化探测片，采用展开谱的解谱方法，测量了栅格内热中子通量谱。

探测片的材料应当是有热谱狭共振峰的。因此，我们选用了镝(¹⁶⁴Dy)，铕(¹⁵¹Eu)，钼(¹¹⁵In)和镥(¹⁷⁶Lu)等四种同位素的铝合金作探测片。测点布置在中心栅元氢化锆管轴向中心的环断面上，用两片锰箔在活性区边缘处作功率监督。

图 5 给出了 $N_H/N_5 = 233$ 与 $N_H/N_5 = 337$ 栅格的理论计算与实验测得的热中子通量谱。

图 5 $N_H/N_s=233, 337$ 样格的热中子通量谱

—— $N_H/N_s=337$, 氢化镁-轻水慢化栅热中子通量谱;
 - - - $N_H/N_s=337$ 晶格热振动声子模型计算的热中子通量谱;
 - - - $N_H/N_s=233$, 氢化镁-轻水慢化栅热中子通量谱;
 - · - - $N_H/N_s=233$, 晶格热振动声子模型计算的热中子通量谱。

在 $N_H/N_s=233$ 方案上; 选择 $^{176}\text{Lu}-^{164}\text{Dy}$, $^{115}\text{In}-^{56}\text{Mn}$ 两组探测片, 采用双箔法技术测得了中子温度 T 和超热指标 γ , 得到的结果为 $T=395\text{ K}$, $\gamma=0.0970$ 。而由测得的热中子谱求得的谱参数是: $T=406\text{ K}$, $\gamma=0.1145$ 。两种方法得到的谱参数基本上是符合的, 理论计算谱与实验测量谱的结果也是符合的(见图 5)。

五、反应性温度系数的测定

温度改变 1 度(°C 或 K)所引起的反应性变化称为反应性温度系数 $\partial\rho/\partial T$

$$\frac{\partial\rho}{\partial T} = \frac{1}{k_{\text{eff}}} \frac{\partial k_{\text{eff}}}{\partial T}$$

$\partial\rho/\partial T$ 是保证堆稳定安全运行的重要参量。 $\frac{\partial\rho}{\partial T}$ 值可以按 $\frac{\partial k_{\text{eff}}}{\partial T}$ 计算求得, 也可以用在不同堆温下测反应性随温度变化的曲线 $\rho(T)$, 然后对 $\rho(T)$ 微分求得, 我们采用了后者。

测量的可靠性与精确度取决于测准反应性 ρ 与堆系统平衡温度 T , ρ 是用周期法测的。安置在活性区周围水反射层内的六根电加热元件使堆系统升温, 通过自然对流, 稍加

搅拌，使系统达到均衡温度，活性区离热源有一定距离，水桶较大，基本上可以使活性区平稳地升温与降温。布置在活性区各点的 12 付测温用的热电偶能测到活性区的平衡温度 T ，在测量反应性过程中连续不断地记录各测点的温度值，各测点之间温差最大不超过 0.5°C ，可近似地认为活性区内温度场是平坦的。把对连续测得的各测点温度值取算术平均作为系统的温度。 $\rho(T)$ 曲线是通过两次降温测得的，两次测得的反应性随温度变化的规律基本上符合， $\partial\rho/\partial T$ 就是用对两次降温测得的 $\rho(T)$ 曲线微分而得。

我们对 $N_{\text{H}}/N_{\text{s}}=233$ 与 337 两个栅格作了测量。测量是在 $20-85^{\circ}\text{C}$ 范围内进行的（见图 6）。

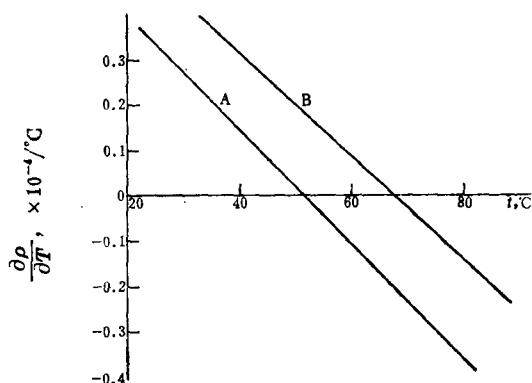


图 6 两种栅格的温度系数
A— $N_{\text{H}}/N_{\text{s}}=337$; B— $N_{\text{H}}/N_{\text{s}}=233$ 。

六、瞬发中子衰减常数 α_0 的测定

不同次临界度的堆有不同值的瞬发中子衰减常数 α ，临界状态下的瞬发中子衰减常数 α_0 是一项重要的动态参量，其表达式为：

$$\alpha_0 = \beta_e/l.$$

其中， β_e 为缓发中子有效份额， l 为瞬发中子寿命。

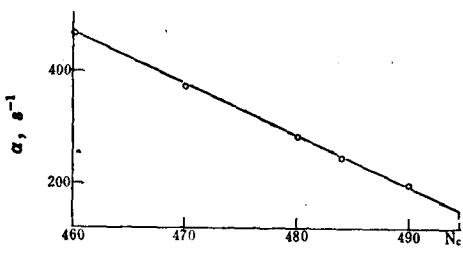
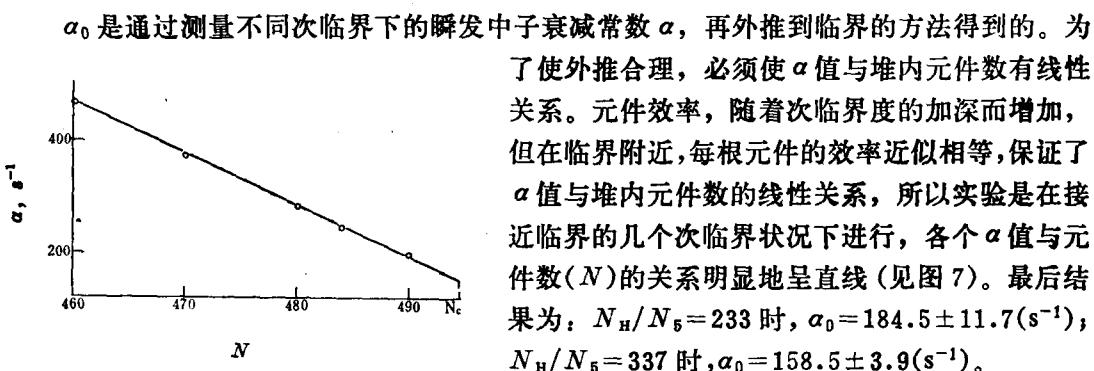


图 7 $N_{\text{H}}/N_{\text{s}}=337$ 栅格的 α 值与元件数的关系

$$\alpha = 4513.2 - 8.8062 N (\text{s}^{-1}), \quad \alpha_0 = 158.5 \pm 3.9 (\text{s}^{-1}).$$

α 值也略有下降。

这个结果是合理的。因为当 $N_{\text{H}}/N_{\text{s}}$ 增大时，堆谱变软，瞬发中子寿命 l 增加，堆体积也增大， B^2 略有下降，致使 β_e 也略有下降，因此

七、用裂变径迹法刻度绝对热中子通量

裂变径迹法的优点是探测效率高，适宜测低功率的绝对热中子通量。

测量是在堆芯热中子通量为 $10^5-10^7 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 范围内进行的，与金箔活化法的结果进

行比较，符合比较好(见表 5)。

表 5 热中子通量与功率水平的关系*

功率表指示		电离室电流 $\times 10^{-6} \mu\text{A}$	$\theta_{\text{不包辐}}$ ($1/\text{cm}^2$)	$\theta_{\text{包辐}}$ ($1/\text{cm}^2$)	热中子通量, $\text{n}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$	
挡 次	指 示				裂变径迹法	金箔活化法
II	0.6	0.06	12921	470	1.21×10^5	/
IV	0.5	0.5	9212	632	1.01×10^6	/
VI	0.4	4	74370	5292	8.88×10^6	/
VII	0.4	12	235515	19085	2.78×10^7	2.94×10^7

* 功率水平用电离室电流或功率表指示来表示。

八、用堆振荡法测定样品的反应性效率

在特定栅格下各类材料单位质量的反应性效率是一项有用的物理量。小反应性测量可用周期法，考虑到测量过程中堆的反应性漂移将引入误差，故用堆振荡法测量。

本实验采用的是方形波振荡法，由压缩空气驱动样品，样品在堆中心与堆外(离活性区边界 20 cm 处)之间作方形波振荡，行程 40 cm，行程时间不超过 0.5 s。

实验是在 $N_{\text{H}}/N_5 = 337$ 栅格上进行的。堆振荡法是通过测量功率实时变化确定反应性的，可用的方法有两个，一是谐波分析法，二是数值逆动态法，我们用的是后一种方法，表(6)给出了四种材料八个样品的反应性效率。

表 6 钨、铕、镝和镥等四种样品在堆中心的反应性效率

样 品	重 量, mg	待测材料含量, mg	$\Delta\rho_s, \times 10^{-4} \frac{\Delta k}{k}$	$\Delta\rho^*, \times 10^{-4} \frac{\Delta k}{k}$	$\Delta\rho_s/10^{20} \text{ 原子数},$ $\times 10^{-4} \frac{\Delta k}{k}$
In-Al	475	142.5	1.46	1.53	0.20
	920	276	2.76	2.89	0.20
Eu-Al	205	8.7	1.27	1.33	3.86
	432	18.3	2.50	2.63	3.82
Dy-Al	388	36.1	1.20	1.20	0.90
	782	72.7	2.35	2.46	0.91
Lu-Al	1218	310.1	1.44	1.48	0.14
	2544	647.7	2.90	3.04	0.14

* $\Delta\rho_s$ 是经过自屏修正后的结果。

郑祖起，张兰锁，王振邦，夏翊，李富民，郭文元，孟宪华等同志参加了实验测量工作。

参 考 文 献

- [1] Massoud T. Simand et al., *Nucl. Tech.*, 28, 31(1976).
- [2] Shinzo Saito et al., *J. Nucl. Sci. and Tech.*, 14, 226(1977).
- [3] 罗尊春等, 原子能科学技术, (2) 180(1981).

(编辑部收到日期：1984 年 5 月 18 日)

INVESTIGATIONS ON $\text{ZrH}_{1.7} - \text{U} - \text{H}_2\text{O}$ LATTICE CHARACTERISTICS

CHENG WENHUA ZHOU JUYIN LUO ZHANGLIN
LI WENHU CHEN JINGZHANG ZHANG ZHANGBAI
WANG MEIJUN ZHAO PINTAI YANG DAHUA ZHU GUOSHENG

(Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275, Beijing)

ABSTRACT

The purpose of this article is to investigate the moderation characteristic of zirconium hydride in the multiplication assembly. Seven critical experiments were performed with the $N_{\text{H}}/N_{\text{S}}$ ratio ranging from 233 to 543. On the two quasi-homogeneous lattices, which have $N_{\text{H}}/N_{\text{S}}$ ratio 233 and 337, series of experiments have been accomplished. Part of the experimental results were compared with the theoretical calculation. The agreement between them indicates that the theoretical model used in calculation is applicable.

Key words Zirconium hydride, Phonon model of crystal structure, Scattering kernel, Reflector savings, Thermal neutron spectrum, Parameters of thermal neutron spectrum, Temperature coefficient, Prompt neutron decay constant, Fission track method, Reactor oscillator method, Reactivity coefficients of materials.