

НОВЫЙ МЕХАНИЗМ НАВОДОРОЖИВАНИЯ МАТЕРИАЛОВ В АКТИВНОЙ ЗОНЕ ВОДО-ВОДЯНЫХ РЕАКТОРОВ

В.В. Ганн, А.В. Ганн

*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,
Харьков, Украина*

E-mail: gann@kipt.kharkov.ua

Методом Монте-Карло рассчитан спектр быстрых протонов, возбуждаемых в воде быстрыми нейтронами активной зоны. Основным механизмом образования быстрых протонов в замедлителе является упругое рассеяние быстрых нейтронов на ядрах атомов водорода. Показано, что при номинальной мощности реактора поток быстрых протонов на оболочку твэла составляет величину порядка $0,1 \text{ мкА/см}^2$, средняя энергия протонов $\sim 1 \text{ МэВ}$, а максимальная энергия достигает 10 МэВ . Рассчитан профиль пробега протонов по толщине оболочки: средняя глубина проникновения составляет 20 мкм , максимальная – достигает 200 мкм , а скорость осаждения водорода в слое составляет $5 \cdot 10^{-5} \text{ ат./нейтр./мкм}$. Обсуждается роль рассмотренного механизма в процессе наводороживания циркониевой оболочки твэлов в воде при реакторном облучении.

Цирконий выбран в качестве конструкционного материала для активных зон водоохлаждаемых энергетических реакторов благодаря малому сечению поглощения тепловых нейтронов. Накопление водорода приводит к изменению свойств конструкционных материалов. Исследования процессов наводороживания реакторных материалов в процессе их эксплуатации имеют важное практическое значение. Роль различных физических механизмов, ответственных за поступление водорода в циркониевые сплавы, обсуждалась во многих работах. В обзоре [1] представлены экспериментальные данные и феноменологические модели, описывающие процессы поглощения водорода циркониевыми сплавами.

Известно несколько путей поступления водорода в конструкционные материалы. Одним из механизмов являются (n, p)-реакции на ядрах этих материалов. Например, сечение выхода протонов при взаимодействии нейтронов деления с ядрами циркония составляет всего $0,38 \text{ мб}$ [2]. В результате за время топливной кампании в оболочке твэла может образоваться порядка 10 ppm водорода. Более мощный механизм – радиолиз воды – взаимодействие катионов H^+ с поверхностью оболочки твэла, растворение и диффузия водорода в объеме материала. Другим механизмом является коррозия материала оболочки в воде, при этом кислород образует окисную пленку, а водород растворяется в металле [3]. Однако до конца механизм поступления водорода в оболочку твэла все еще остается неясным [1].

В данной работе в рамках стандартной схемы «окисление + наводороживание» рассматривается новый механизм поступления водорода в материал оболочки твэла из окружающей его воды; этот механизм актуален для реакторов типа ВВЭР, где вода является теплоносителем и замедлителем нейтронов. Быстрые нейтроны, движущиеся в воде, рассеиваются на протонах, при этом образуются быстрые протоны отдачи, энергия которых оказывается достаточной для имплантации в материал на достаточно большую глубину [4]. Аналогичное явление было изучено в работе [5], где рассматривалось вне-

дрение водорода из полимерной оболочки в кварцевое стекло при облучении быстрыми нейтронами.

ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

Для качественного анализа процесса наводороживания материалов активной зоны водо-водяных реакторов рассмотрим упрощенную гомогенную модель реактора, состоящую из источника нейтронов и замедлителя. Источник испускает нейтроны деления – спектр Ватта:

$$P(E_n) = 0,719 \sqrt{E_n} e^{-E_n/1,35}, \quad (1)$$

которые замедляются в воде без поглощения, при этом будем учитывать лишь упругое изотропное рассеяние нейтронов на ядрах атомов водорода. Дифференциальное сечение рассеяния возьмем в виде

$$\frac{d\sigma(E_n, T)}{dT} = \frac{\sigma}{E_n}, \quad (2)$$

где $T < E_n$ – энергия, переданная в соударении; σ – полное сечение рассеяния нейтрона на протоне. В приближении непрерывного замедления спектральная плотность потока нейтронов выражается формулой:

$$\Phi_n(E) = \frac{Q_n(E)}{S_n(E)}, \quad (3)$$

где $Q_n(E) = A \int_E^\infty P_n(E_n) dE_n$ – плотность источников нейтронов с энергией $E_n > E$; A – активность источника; $S_n(E) \approx En_0\sigma/2$ – тормозная способность замедлителя для нейтронов, n_0 – атомная концентрация водорода в замедлителе.

Спектр энергий протонов отдачи определяется выражением

$$q_p(T) = n_0 \int_T^\infty \frac{d\sigma(E_n, T)}{dT} \Phi_n(E_n) dE_n, \quad (4)$$

а плотность источников быстрых протонов с энергией $T > E_p$ – формулой $Q_p(E_p) = \int_{E_p}^{\infty} q_p(T) dT$.

Используя формулы (1)–(3) и произведя интегрирование, получаем

$$Q_p(E) = 1,438A \int_E^{\infty} dE_n \left(\ln \frac{E_n}{E} + \frac{E}{E_n} - 1 \right) \sqrt{E_n} e^{-En/1,35}. \quad (5)$$

В предельных случаях больших и малых энергий протонов (по сравнению со средней энергией нейтронов деления) получаем из (5) простые выражения для плотности источников протонов:

$$Q_p(E) \approx 2A \left(\ln \frac{2}{E} + \frac{E}{2} - 1 \right) \quad \text{при } E < 1 \text{ МэВ}; \quad (6)$$

$$Q_p(E) \approx 2,36AE^{-3/2} e^{-E/1,35} \quad \text{при } E > 2,5 \text{ МэВ}.$$

В приближении непрерывного замедления протонов отдачи в теплоносителе спектральная плотность потока протонов выражается формулой, аналогичной (3):

$$\Phi_p(E) = \frac{Q_p(E)}{S_p(E)}, \quad (7)$$

где $S_p(E)$ – тормозная способность замедлителя для протонов. Зависимость, описываемая формулами (5) и (7), представлена на рис. 1 пунктиром, а сплошной жирной линией для сравнения приведены результаты численного моделирования методом Монте-Карло. На этом же рисунке изображены асимптотические зависимости, следующие из формул (6) и (7).

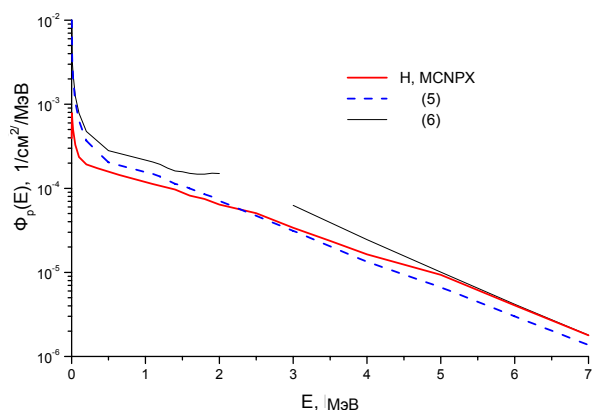


Рис. 1. Зависимости плотности потока протонов от энергии, рассчитанные по формулам (5) (---), (6) (—) и полученные методом Монте-Карло

Протоны с энергией E проникают в оболочку твэла и останавливаются, пройдя расстояние $R_p(E)$. Зная спектр энергий протонов на внешней поверхности оболочки $\Phi_p(E)$, можно определить профиль имплантации водорода по глубине материала:

$$K(x) = \frac{1}{2} \int_{E(x)}^{\infty} \frac{\Phi_p(E)}{R_p(E)} dE. \quad (8)$$

Плотность потока водорода в оболочку твэла через внешнюю поверхность выражается формулой:

$$\Phi_p = \frac{1}{2} \int_0^{\infty} \Phi_p(E) dE, \quad (9)$$

которая дает следующую оценку плотности потока:

$$\Phi_p \approx A \cdot 10^{-3}. \quad (10)$$

Таким образом, скорость наводороживания материала оболочки составляет величину порядка одного атома водорода на 1000 нейтронов деления в топливе.

КОМПЬЮТЕРНАЯ МОДЕЛЬ ПРОЦЕССА

Рассмотрим для конкретности тепловыделяющую сборку типа ТВСА (рис. 2) со средним обогащением 3,53 % по ^{235}U . Сборка содержит твэлы с топливом UO_2 и твечи с топливом UO_2 и выгорающим поглотителем нейтронов Gd_2O_3 , заключенные в оболочку из сплава Zr ; пространство между твэлами заполнено водой, направляющие каналы и центральный канал также заполнены водой. Быстрые нейтроны, образующиеся при делении ядер урана, замедляются в воде, возвращаются в топливо, вызывают деление изотопа ^{235}U или поглощаются в материалах активной зоны.

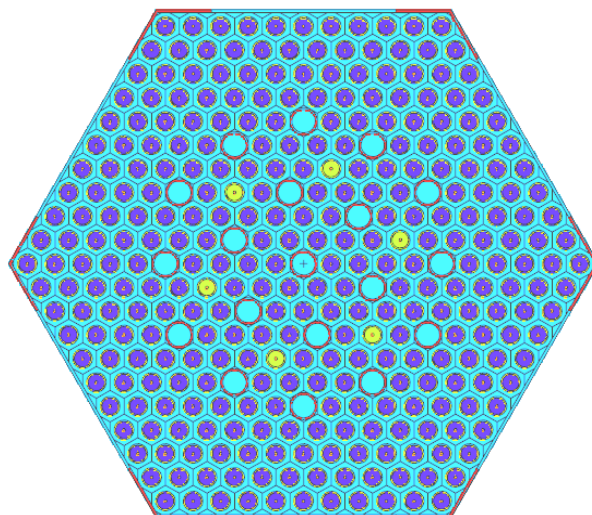


Рис. 2. Модель топливной сборки ТВСА МО 353

На рис. 3 верхняя кривая представляет спектр нейтронов в воде, полученный при стандартном расчете методом Монте-Карло критичности для такой сборки с зеркальными граничными условиями. Вычислялся средний флюенс нейтронов, который набирался в теплоносителе после запуска одного нейтрона деления в расчетной ячейке, представляющей собой шестигранную призму размером 11,86 см под ключ и высотой 12,75 см. Расчет производился процедурой KCODE с использованием температурной библиотеки нейтронных сечений ENDF/B-VII. Температура топлива принималась равной 711 °С, а температура оболочек и теплоносителя – 302 °С; концентрация борной кислоты в воде составляла 6,38 г/кг, при этом значение эффективного коэффициента размножения нейтронов оказались равным 1,153.

Быстрые нейтроны, двигаясь в воде, сталкиваются с ядрами атомов водорода, при этом возникают первично выбитые атомы (ПВА) водорода – быстрые протоны. Основным механизмом образования ПВА водорода является упругое рассеяние быстрых нейтронов на ядрах атомов водорода.

Методом Монте-Карло был рассчитан спектр быстрых протонов, возбуждаемых в воде быстрыми нейтронами. Протоны отдачи замедляются в воде и других материалах активной зоны, при этом их спектральная плотность сдвигается в область более низких энергий и становится такой, как она изображена на рис. 3 (нижняя кривая). Средняя энергия протонов составляет ~ 1 МэВ, а максимальная энергия достигает энергий порядка 10 МэВ.

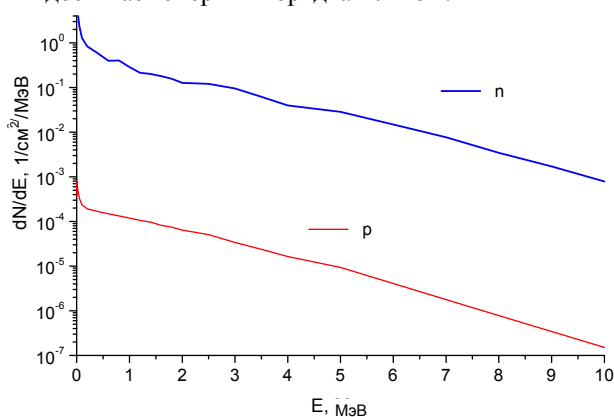


Рис. 3. Спектр нейтронов (—) и протонов (—) в воде

Спектральная плотность потока протонов на оболочку, усредненная по всем твэлам, показана на рис. 4 в единицах протон/нейтрон/мегаэлектрон-вольт. Отношение числа атомов водорода, осевших в оболочке твэла, к числу нейтронов деления, образовавшихся в топливе, равно $N_H / N_n = 0,003$. В таком случае при номинальной мощности реактора плотность тока быстрых протонов на поверхности оболочки будет составлять величину порядка $0,1 \text{ мкА/см}^2$.

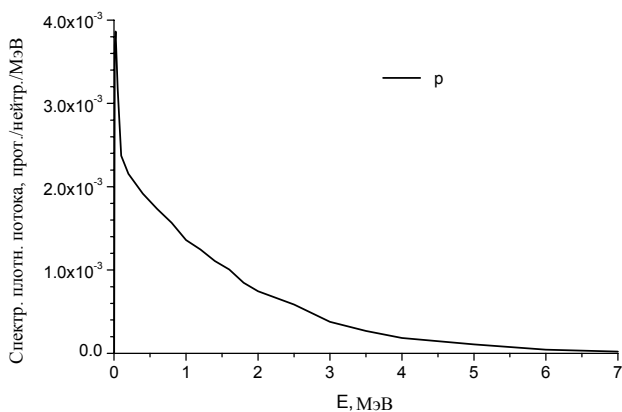


Рис. 4. Спектральная плотность потока протонов на оболочку

ИМПЛАНТАЦИЯ ВОДОРОДА В ЦИРКОНИЕВУЮ ОБОЛОЧКУ

Падающие на поверхность оболочки твэла протоны имеют широкий спектр энергий – до 10 МэВ и, соответственно, большой разброс пробегов по глубине материала оболочки. Протоны малой энергии

останавливаются в приповерхностной области, протоны с большей энергией проникают в оболочку на большую глубину. На рис. 5 показана зависимость от глубины полного потока протонов в оболочке. Протоны проникают на глубину нескольких сотен микрометров, хотя плотность потока быстро падает с глубиной.

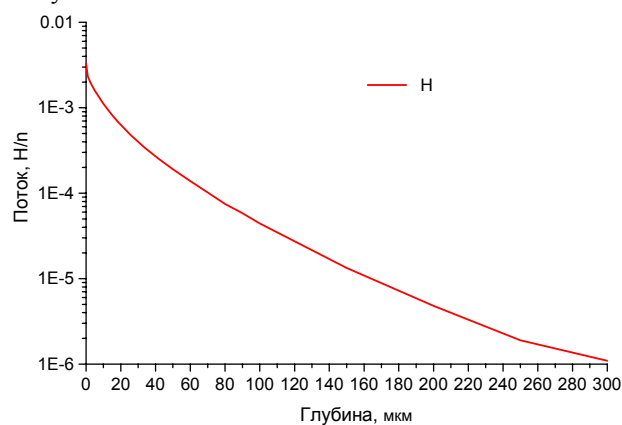


Рис. 5. Зависимость потока протонов от глубины проникновения в цирконий

Используя данные рис. 5, можно рассчитать профиль имплантации водорода в циркониевую оболочку. На рис. 6 приведен профиль пробегов протонов по толщине оболочки. Средняя глубина проникновения быстрых протонов в циркониевую оболочку составляет 20 мкм, а максимальная глубина пробега превышает 200 мкм. Большая скорость имплантации водорода в приповерхностном слое связана с большой долей низкоэнергетических протонов в спектре протонов, падающих на поверхность оболочки. Скорость имплантации водорода быстро падает с глубиной, переходя на больших глубинах в простую экспоненциальную зависимость.

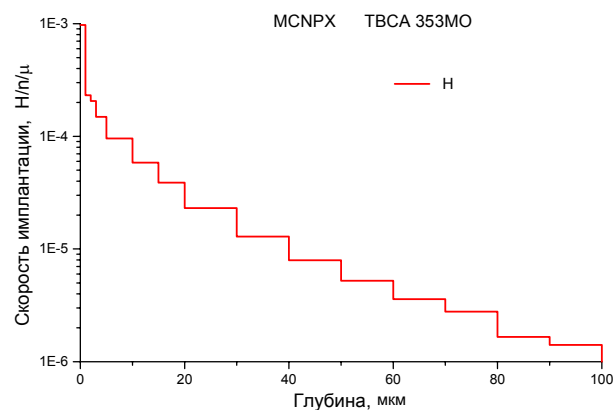


Рис. 6. Зависимость скорости имплантации водорода от глубины в цирконии

ВЫВОДЫ

Средний темп осаждения водорода в 40 мкм слое составляет $5 \cdot 10^{-5}$ ат./нейтр./мкм (см. рис. 6), а общее количество водорода, осажденного в этом слое за топливную кампанию, равно $\sim 3 \cdot 10^{20}$ ат./см³, что соответствует одному атомному проценту водорода.

Таким образом, рассмотренный механизм может играть важную роль в процессах наводороживания

циркониевой оболочки твэлов при реакторном облучении. Изложенные выше результаты могут служить основой для дальнейшего изучения процессов диффузии и накопления водорода в материалах активной зоны с учетом предложенного механизма.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. V.V. Likhanskii, I.A. Evdokimov Review of theoretical conceptions on regimes of oxidation and hydrogen pickup in Zr-alloys // *Proc. of the 7-th International Conference on WWER Fuel Performance, Modelling and Experimental Support, Albena, Bulgaria, 17-21 September, 2007*.

2. В.М. Бычков, В.Н. Манохин, А.Б. Пашенко, В.И. Пляскин. Сечения пороговых реакций, вызы-

ваемых нейтронами: Справочник. М.: «Энергоиздат», 1982, 217 с.

3. Б.А. Калинин, А.А. Шмаков. Поведение водорода в реакторных сплавах циркония // *Материаловедение*. 2005, №10, с. 50-56.

4. A.V. Gann, V.V. Gann. Generation of MeV-energy protons in WWER reactor core // *Problems of Atomic Science and Technology. Series "Nuclear Physics Investigations"*. 2009, №5, p. 30-32.

5. В.А. Бакаев, Я.А. Бердников, С.Д. Богданов, В.Ф. Космач. Влияние воздействия быстрых нейтронов на концентрацию водорода в цилиндрическом слое кварцевого стекла с полимерной оболочкой // *Атомная энергия*. 1997, т. 82, в. 1, с. 61-62.

Статья поступила в редакцию 03.09.2010 г.

НОВИЙ МЕХАНІЗМ НАВОДНЮВАННЯ МАТЕРІАЛІВ В АКТИВНІЙ ЗОНІ ВОДО-ВОДЯНИХ РЕАКТОРІВ

В.В. Ганн, А.В. Ганн

Методом Монте-Карло розраховано спектр швидких протонів, збуджених у воді швидкими нейтронами активної зони. Головним механізмом утворення швидких протонів в уповільнювачі є пружне розсіювання швидких нейтронів на ядрах водню. Показано, що при номінальній потужності реактора потік швидких протонів на оболонку твела складає величину приблизно $0,1 \text{ мкА/см}^2$, середня енергія протонів $\sim 1 \text{ МеВ}$, а максимальна енергія досягає 10 МеВ . Розраховано профіль пробігів протонів по товщині оболонки: середня глибина проникнення складає 20 мкм , максимальна – досягає 200 мкм , а швидкість осадження водню в шарі 40 мкм складає $5 \cdot 10^{-5} \text{ ат./нейтр./мкм}$. Обговорюється роль розглянутого механізму в процесі наводнювання цирконієвої оболонки твелів у водні при реакторному опроміненні.

A NEW MECHANISM OF HYDROGEN ABSORPTION IN WATER-WATER REACTOR CORE MATERIALS

V.V. Gann and A.V. Gann

The spectrum of fast protons, generated in water by fast neutrons of WWER-1000 reactor core, has been calculated using the code MCNPX. The main mechanism of fast proton generation in the moderator is found to be elastic scattering of fast neutrons on hydrogen nuclei. Fast protons with mean energy 1 MeV flow towards the surface of cladding material at flux density $\sim 0.1 \text{ }\mu\text{A/cm}^2$. Proton range distribution profile in cladding material is calculated. The range of fast protons in zirconium averages $20 \text{ }\mu$, the maximal proton range is larger than $200 \text{ }\mu$. The rate of hydrogen deposition in $40 \text{ }\mu$ layer amounts to $5 \cdot 10^{-5} \text{ H/n/}\mu$. A role of the suggested mechanism in process of zirconium clad hydrogenation during reactor irradiation is discussed.