

C276 合金质子辐照损伤模拟及活化分析

靳忠敏, 陈义学, 韩静茹, 陆道纲

(华北电力大学 核科学与工程学院, 北京 102206)

摘要: C276 合金是先进核电站燃料元件包壳的候选材料之一。本工作采用 TRIM 程序分别计算 10 和 20 MeV 质子辐照 C276 所产生的辐照损伤, 比较分析能损、离位原子、DPA 等参数分布。同时使用 FISPACT-2007 程序进行活化计算, 对放射性活度、衰变余热及接触剂量率等参数进行了详细分析。结果表明: 辐照损伤主要来自电子能损的贡献, 高能质子与靶原子发生碰撞的几率较低。C276 经同种能量质子辐照后, 活化特性随着辐照时间的增长而增加。辐照时间相同时, 高能质子会对材料产生更大的影响。本工作为后续的辐照损伤分子动力学模拟及计划开展的质子辐照实验提供支持。

关键词: C276; 质子; 辐照损伤; TRIM 程序; 活化

中图分类号: TL341

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2009)06-0501-04

Simulation of Proton Irradiation Damage and Activation Analysis for C276 Alloy

JIN Zhong-min, CHEN Yi-xue, HAN Jing-ru, LU Dao-gang

(North China Electric Power University, School of Nuclear Science and Engineering, Beijing 102206, China)

Abstract: C276 alloy is one of the candidate cladding materials in advanced nuclear power plants. In this work, the distributions of irradiation damage were calculated by the TRIM code about energy loss, target displacements and DPA of C276 irradiated by protons with energy of 10 and 20 MeV, and there were comparisons among them as well. The activation calculations of C276 were carried out with the FISPACT-2007 code at the same time. The activity, afterheat and contact dose rate during different cooling time after shutdown were described in detail. The result indicates that electronic energy loss is the main part of irradiation damage, high-energy protons get lower probability of collision. In the case of the same energy protons irradiation, the activation characteristics increase with increasing irradiation time. With the same irradiation time, high energy protons would have a greater impact on materials. This work will provide support for the molecular dynamics simulation and the planning of the proton irradiation project.

Key words: C276; proton; irradiation damage; TRIM code; activation

收稿日期: 2009-02-20; 修回日期: 2009-03-05

基金项目: 国家重点基础研究发展计划资助项目(2007CB209803); 北京市科技新星计划资助项目(2007B058); 长江学者和创新团队发展计划资助项目(IRT0720)

作者简介: 靳忠敏(1987—), 男, 河南许昌人, 硕士研究生, 核能科学与工程专业

在反应堆运行过程中,包壳材料通常受到高能中子及射线等苛刻环境因素的直接作用,其中,中子辐照是造成材料性能损伤的主要原因。材料的抗辐照性能直接决定着反应堆的安全和使用寿命,为了研究反应堆材料的辐照损伤,直接在堆内研究材料的辐照损伤是非常复杂的,辐照时间长、试验费用昂贵,因此,模拟堆内多年辐照损伤效果的实验方法,即以带电粒子辐照金属材料模拟中子辐照效应的研究越来越受到人们的重视^[1],其中,质子辐照被认为可在辐照损伤的机理和微观组织的演变方面模拟金属的中子辐照效应。

随着核反应堆朝着高燃耗和长循环燃料周期的方向发展,对燃料元件包壳材料性能提出了更高的要求。镍基合金 C276 因其优良的核性能和适宜的机械性能在核工业中得到了广泛的应用。本工作采用作为核电站燃料元件包壳候选材料的镍基合金 C276,以质子辐照来模拟材料的辐照效应,为后续的辐照损伤分子动力学模拟提供支持。

1 计算程序及方法

1.1 辐照损伤程序及试验方案设计

在模拟质子辐照 C276 的辐照效应时,遵循粒子能谱的等效代换原则。在模拟过程中,分别采用能量为 10、20 MeV 的 $1 \mu\text{A}$ 质子流垂直辐照无限大平板 C276。通过 SRIM2008 程序模拟预测后,选定样品厚度为 1.5 mm,此时,质子不能穿过样品。在用 TRIM 程序计算样品损伤分布时,均采用 10 000 个质子进行模拟,并主要给出能损、离位原子、DPA 等参数分

布,并将这两种能量下 C276 辐照损伤的分布进行比较。计算结果具有统计意义。

1.2 活化程序及计算条件

对质子活化计算,选取注量率为 $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 的 10、20 MeV 两种质子能量,采用 FISPACT-2007^[2] 程序,并使用配套活化数据库 EAF-2007^[3]。除上述质子能谱外,活化计算的输入文件还需包括包壳材料的元素组成和辐照历史。C276 主要含有镍、钼、铬 3 种元素,以及其它一些微量元素^[4],选取辐照时间分别为 0.5、1 和 1.5 a 进行连续辐照,停堆冷却时间为 1 min~ 10^6 a。

2 辐照损伤初步模拟结果与讨论

2.1 辐照能量损失

10、20 MeV 质子辐照 C276 时,通过 TRIM 程序得到入射离子能量的散失分布百分比。可以注意到,对不同能量的入射质子,约 99.9% 的能量消耗于电离,即电子能量损失(非弹性碰撞);仅 0.1% 左右的能量交给弹性碰撞时的反冲原子,即原子核能量损失。可见,原子核能量损失只占总能量损失的约千分之一。不论是弹性碰撞还是非弹性碰撞,均会传递给晶格声子能量,但在单位长度内弹性碰撞传递给晶格声子的能量比非弹性碰撞的多。此外,10 MeV 质子辐照传递给晶格声子的能量为 0.06%,20 MeV 质子辐照为 0.05%,这说明,10 MeV 质子辐照产生的热效应比 20 MeV 质子的显著。

2.2 靶核离位损伤剂量

根据 TRIM 输出结果,可得到图 1。由图

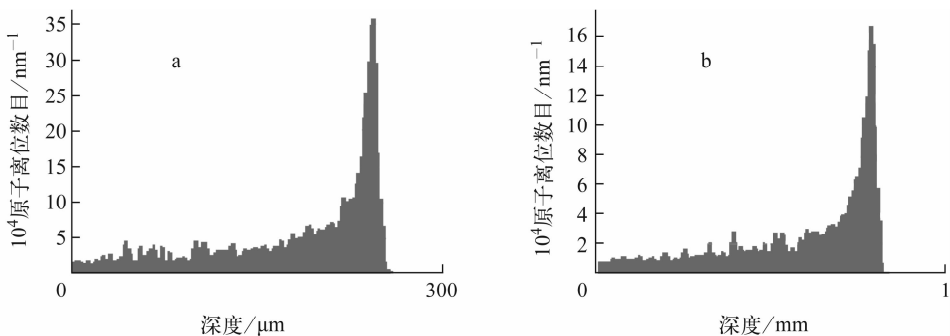


图 1 质子辐照 C276 时离位数目统计

Fig. 1 C276 target displacements by proton irradiation

a—10 MeV; b—20 MeV

1 可见, 10 MeV 时, 在 0.23 mm 处出现了离位峰; 20 MeV 时, 在 0.8 mm 处出现了离位峰。这说明, 20 MeV 的离位峰在入射方向出现的位置更深一些, 但它们的辐照损伤分布相似, 其离位峰峰值均出现在质子径迹的末端。

由图 1 可知: 10 MeV 时, C276 的损伤速率为 2.586×10^{-6} dpa/s; 20 MeV 时, 为 1.256×10^{-6} dpa/s, 即 10 MeV 质子引起更多的靶核离位损伤。这表明, 能量较低的质子与靶原子发生碰撞的几率较高。其原因是, 高能质子在刚进入 C276 时主要是电子能量损失, 当质子速度因能量损失慢化到一定程度后, 质子方与靶核原子发生弹性碰撞而以原子核能量损失为主造成靶核离位损伤。

3 活化计算结果与讨论

以 C276 作为辐照金属材料, 研究计算 C276 分别经 10、20 MeV 质子辐照 0.5、1 和 1.5 a 后的活化情况。结果表明: 经同种能量质子辐照后, 随着辐照时间增加, 活化特性增强且变化趋势相似; 辐照时间相同、经不同能量的质子辐照后, C276 的活化特性变化情况不尽相同, 选取经质子辐照 1 a 后的活化变化情况进行比较分析。

3.1 活度

活度和放射性毒物在长时间内对材料的退役、处理及安全运输起决定作用。C276 的比活度随冷却时间的变化示于图 2。由图 2 可见, 当辐照时间相同时, 经 20 MeV 质子辐照后的比活度高于 10 MeV 下的比活度。

C276 经 10 MeV 质子辐照 1 a, 从开始停堆到冷却 100 a, 比活度(比活度 1)下降了约 6 个数量级。经 20 MeV 质子辐照 1 a、冷却 100 a, 比活度(比活度 2)降了约 4 个数量级。在停堆 1~6 min 内, 比活度 1 主要受核素 ^{60}Cu ($T_{1/2}=23$ min) 和 $^{52}\text{Mn}^m$ ($T_{1/2}=21.2$ min) 的影响, 比活度 2 受核素 ^{57}Co ($T_{1/2}=270$ d) 和 ^{51}Cr ($T_{1/2}=27.8$ d) 的影响; 停堆冷却 1 个月, 比活度 1 主要受核素 ^{56}Co ($T_{1/2}=77$ d) 和 ^{52}Mn ($T_{1/2}=5.7$ d) 的影响, 比活度 2 主要受核素 ^{57}Co 和 ^{51}Cr 的影响; 停堆冷却 $2 \times 10^5 \sim 1 \times 10^6$ a, 比活度 1 主要受核素 ^{98}Tc ($T_{1/2}=1.5 \times 10^6$ a)、 ^{99}Tc ($T_{1/2}=2.12 \times 10^5$ a)、 ^{53}Mn ($T_{1/2}=$

2×10^6 a) 的影响, 比活度 2 主要受核素 ^{59}Ni ($T_{1/2}=8 \times 10^4$ a) 和 ^{97}Tc ($T_{1/2}=2.6 \times 10^6$ a) 的影响。上述结果表明, C276 经高能质子辐照后, 产生了较高的停堆放射性活度, 增加了包壳材料后处理的难度。

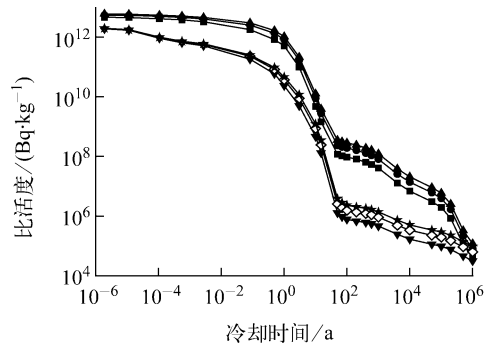


图 2 C276 经质子辐照后的比活度

Fig. 2 Specific activity of C276 irradiated by proton
 ■—20 MeV, 0.5 a; ●—20 MeV, 1 a; ▲—20 MeV, 1.5 a;
 ▼—10 MeV, 0.5 a; ◇—10 MeV, 1 a; ★—10 MeV, 1.5 a

3.2 余热

材料活化后产生的余热及短寿命核素对突发事件的研究是很重要的。C276 余热随冷却时间的变化示于图 3。C276 经 10 MeV 质子辐照 1 a, 从开始停堆到冷却 100 a, 余热(余热 1)下降了约 8 个数量级。经 20 MeV 质子辐照 1 a、冷却 100 a 后, 余热(余热 2)下降了约 6 个数量级。在停堆 1~6 min 内, 余热 1 主要受核素 ^{60}Cu 和 $^{52}\text{Mn}^m$ 的影响, 余热 2 主要受核素 ^{57}Ni ($T_{1/2}=36$ h) 的影响; 停堆冷却 1 个月时, 余热 1 主要受核素 ^{56}Co 和 ^{52}Mn 的影响, 余热 2 主要受核素 ^{57}Ni 的影响; 停堆冷却 $2 \times 10^5 \sim 1 \times 10^6$ a, 余热 1 主要受核素 ^{98}Tc 的影响, 余热 2 主要受核素 ^{59}Ni 、 ^{99}Tc 及 ^{98}Tc 的影响。在上述 3 个时间段内, 余热 1 比余热 2 高, 但在其余冷却时间内, 情况恰好相反。上述结果表明, C276 经高能质子辐照后会产生较高的停堆余热, 需关注包壳材料的安全性。

3.3 接触剂量率

接触剂量率可为运行剂量及维修事件提供数据依据。C276 的接触剂量率随冷却时间的变化示于图 4。在图 4 中, 10 mSv/h 和 10 $\mu\text{Sv/h}$ 分别为远程操作再循环和手工操作再

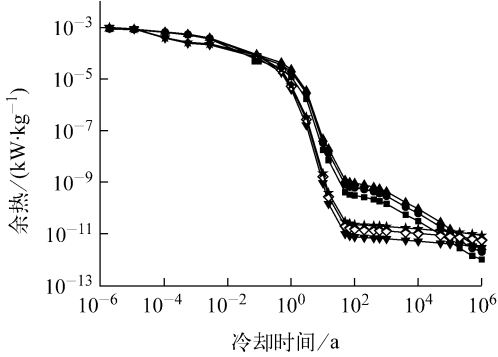


图3 C276 经质子辐照后的余热

Fig. 3 Afterheat of C276 irradiated by proton

■——20 MeV, 0.5 a; ●——20 MeV, 1 a; ▲——20 MeV, 1.5 a;
▼——10 MeV, 0.5 a; ◇——10 MeV, 1 a; ★——10 MeV, 1.5 a

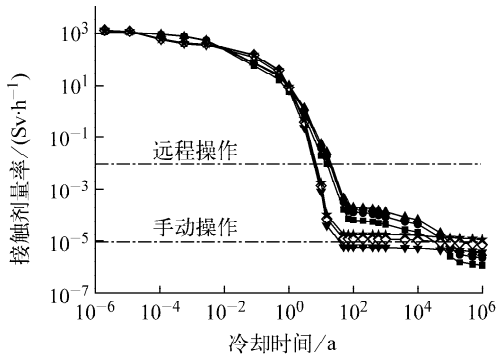


图4 C276 经质子辐照后的接触剂量率

Fig. 4 Contact dose rate of C276 irradiated by proton

■——20 MeV, 0.5 a; ●——20 MeV, 1 a; ▲——20 MeV, 1.5 a;
▼——10 MeV, 0.5 a; ◇——10 MeV, 1 a; ★——10 MeV, 1.5 a

循环剂量率水平标准(简称为远程操作和手工操作)。

C276 经 10 MeV 质子辐照 1 a、冷却 10 a 后,接触剂量率(剂量率 1)已低于远程操作限值约 1 个数量级;停堆 100 a 后,剂量率 1 已接近手动操作限值。经 20 MeV 质子辐照 1 a,接触剂量率(剂量率 2)在停堆 10 a 后已接近远程操作限值。在停堆 1~6 min 内,剂量率 1 主要受核素⁶⁰Cu 和⁵²Mn^m的影响,剂量率 2 主要受核素⁵⁷Ni 的影响;在停堆 30 d~1 a 时间内,剂量率 1 主要受核素⁵⁶Co 和⁵²Mn 的影响,剂量率 2 主要受核素⁵⁶Co 和⁵⁷Ni 的影响;停堆冷却 2 ×

$10^5 \sim 1 \times 10^6$, 剂量率 1 主要受核素⁹⁸Tc 的影响,剂量率 2 主要受核素⁵⁹Ni 和⁹⁸Tc 的影响。在上述 3 个冷却时间内,剂量率 1 比剂量率 2 高,但在其余冷却时间内,情况恰好相反。上述结果表明,需冷却十几年剂量率 2 才能达到远程操作限值,而冷却几年剂量率 1 即能达到远程操作限值。可看出在相同辐照时间下,低能质子辐照后的材料更易采取回收处理。

4 结论

镍基合金 C276 是先进核电站燃料元件包壳材料的候选之一。该材料受质子辐照后的损伤和活化后的初步模拟分析结果表明:辐照损伤主要来自电子能损的贡献,且能量较低的质子与靶原子发生碰撞的几率较高。经同种能量质子辐照后,C276 的活化特性随着辐照时间的增长而增强,随冷却时间的变化趋势相似。当辐照时间相同时,总体说来,高能质子会对材料产生更大的影响。本工作的研究结果为后续的辐照损伤分子动力学模拟及计划开展的质子辐照实验提供了支持。

参考文献:

- [1] 祖小涛,封向东,林理彬,等. Zr-Sn-Nb 合金质子辐照效应研究[J]. 核动力工程, 2001, 22(5): 406-409.
ZU Xiaotao, FENG Xiangdong, LIN Libin, et al. Effect of 18 MeV-proton irradiation on Zr-Sn-Nb alloys [J]. Nuclear Power Engineering, 2001, 22(5): 406-409(in Chinese).
- [2] FORREST R A. FISPACT-2007: User manual [R]. The United Kingdom: UKAEA Fusion, 2007.
- [3] FORREST R A, KOPECKY J, SUBLET J C. The European activation file: EAF-2007 cross section library[R]. The United Kingdom: UKAEA Fusion, 2007.
- [4] 陈宝山,刘承新. 轻水堆燃料元件[M]. 北京:化学工业出版社,2007.
- [5] 郁金南. 材料辐照效应[M]. 北京:化学工业出版社,2007.