

氮化铀热中子截面的第一性原理计算

王立鹏 江新标 吴宏春 樊慧庆

Ab initio calculation of the thermal neutron scattering cross sections of uranium mononitride

Wang Li-Peng Jiang Xin-Biao Wu Hong-Chun Fan Hui-Qing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 202801 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20180834

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180834>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I20>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[石墨烯/BiOI 纳米复合物电子结构和光学性质的第一性原理模拟计算](#)

First-principle calculation on electronic structures and optical properties of hybrid graphene and BiOI nanosheets

物理学报.2018, 67(11): 116301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20172220>

[变形及电场作用对石墨烯电学特性影响的第一性原理计算](#)

First-principles calculation of effects of deformation and electric field action on electrical properties of Graphene

物理学报.2018, 67(7): 076301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20172491>

[扭转形变对石墨烯吸附 O 原子电学和光学性质影响的电子理论研究](#)

Electron-theoretical study on the influences of torsional deformation on electrical and optical properties of O atom absorbed graphene

物理学报.2017, 66(24): 246301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.246301>

[Au\(111\) 表面甲基联二苯丙硫醇盐单层膜的原子结构](#)

Structure of BP3S monolayer on Au(111)

物理学报.2016, 65(21): 216301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.216301>

[CuGaTe₂ 和 CuInTe₂ 的电子和热电性质的第一性原理研究](#)

The first-principles study of electrical and thermoelectric properties of CuGaTe₂ and CuInTe₂

物理学报.2016, 65(15): 156301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.156301>

氮化铀热中子截面的第一性原理计算

王立鹏^{1)2)†} 江新标²⁾ 吴宏春¹⁾ 樊慧庆³⁾

1) (西安交通大学核科学与技术学院, 西安 710049)

2) (西北核技术研究所, 西安 710024)

3) (西北工业大学材料学院, 西安 710072)

(2018年4月26日收到; 2018年7月30日收到修改稿)

氮化铀 (UN) 因其较好的热物性和耐事故容错性成为先进动力堆的候选燃料, 但目前热能区缺少可靠的 UN 热中子截面数据, 这对于热中子反应堆物理计算是很不利的. 本文基于量子力学的第一性原理, 利用 VASP/PHONON 软件模拟计算了 UN 的声子态密度, 以此为积分得到 UN 的定容比热容, 并基于新制作的声子态密度, 采用核截面处理程序 NJOY/LEAPR, 利用热中子散射理论, 得到 UN 的 $S(\alpha, \beta)$ 数据, 进而研究 UN 的热中子散射截面, 并与传统压水堆的二氧化铀 (UO_2) 进行对比. 结果表明: 优化的晶格参数与数据库符合较好, UN 声子态密度的声子项和光子项较 UO_2 的分隔更加明显, 定容比热容计算结果与实验值一致, 基于该声子态密度计算得到的 UN 中 ^{238}U 的非弹性散射和弹性散射截面比相同温度下 UO_2 中 ^{238}U 小, UN 中 N 仅考虑了非相干散射部分, 随着温度升高, UN 弹性散射截面变小, 非弹性散射变大, 并在高能段趋于自由核散射截面. 本文的研究结果填补了 UN 热中子截面数据的缺失, 为下一步系统研究 UN 燃料在轻水堆中的中子学性能奠定了基础.

关键词: 氮化铀, 第一性原理, 声子谱, 热中子散射截面

PACS: 28.20.Cz, 28.20.Ka, 63.20.dk, 63.20.K-

DOI: 10.7498/aps.67.20180834

1 引言

相较于二氧化铀 (UO_2) 燃料, 氮化铀 (UN) 具有铀密度高、熔点高、热导率高、热膨胀系数低、辐照稳定性好、裂变气体释放率低等优点, 成为先进动力堆的候选燃料, 也是新型的耐事故容错燃料, 具有较好的发展前景^[1,2]. 热中子反应堆设计计算使用的核材料的热中子截面对反应堆临界安全特性、中子能谱等都会产生较大影响, 需要较为可靠的热中子截面数据才能准确地计算出堆芯的物理参数. 目前国际上已建立的多种常用慢化剂材料的热中子截面产生技术和处理方法大多数基于半经验提出的简化模型, 再引入较多近似从而得到热中子截面数据. 近年来, 国外发展的先进模拟与仿真技术, 依托高性能计算能力, 以“第一性原理”的

物理学为基础建立模型, 取代经验公式, 已经实现了许多复杂系统的预测性模拟, 包括热中子截面的模拟计算^[3-5]. 以往的热中子截面库仅给出了传统的 UO_2 燃料的热中子截面数据, 比如 MCNP5 自带的热中子截面 ENDF70SAB 数据文件, 缺少 UN 燃料的热中子数据^[6], 这样就会给以 UN 为燃料的先进轻水堆或者其他类型热中子反应堆的物理计算带来较大误差. 最新版的 ENDF/B VIII.0 中, 美国北卡罗来纳州立大学的 LEIP 实验室利用“in-house code”制作了 UN 的 TSL (thermal scattering library) 文件库^[7-9], 相干弹性散射部分归并到 U 核内, 不相干弹性散射归并到 ^{14}N 核内, 并对 NJOY 程序^[10,11] 中 LEAPR 模块进行了大幅度修改, 其中相干弹性散射部分采用了 Cubic approximation 和 Exact Debye-Waller Matrix 方法, 仅依靠现有 TSL 库, 没有相关程序, 无法对其进行更加

† 通信作者. E-mail: wang0214@126.com

深入的研究. 因此, 本文基于UN热中子数据的迫切需求, 研究了UN精确声子态密度的产生方法和验证, 对NJOY现有模型稍加改动, 使其适用于对UN的研究, 以补充UN燃料的热中子截面数据.

热能区的中子散射截面不单纯与中子能量有关, 还与散射介质的温度及物理、化学性质有关, 它反映的是材料自身的声子态密度特征, 热中子截面产生技术与处理方法是一项多学科相互交叉的难题. 在热中子反应堆中, 对于能量低于1 eV的中子, 由于中子能量与散射核的热能是可比较的, 不能简单认为靶核是静止的. 由于热中子与运动的靶核发生碰撞时, 能从靶核获得能量, 所以, 出射中子的能量可能大于入射中子的能量, 这即是热能区中子的向上散射现象. 在分子或固体中, 散射核与邻近核之间存在着相互作用, 原子核处于束缚状态, 与中子发生碰撞时不能自由地反冲. 由于较低能量中子的德布罗意波长可与分子或晶体内核的间距相比较, 与不同核发生散射的中子间可能发生干涉效应^[12,13]. 一般用热散射 $S(\alpha, \beta)$ 来表示热中子截面, ENDF格式评价库中有对热中子截面专门的TSL文件描述^[14], 特定的评价数据库仅给出了少数常用慢化剂材料的TSL文件, 一般用户无法根据自己的需要处理评价库以外的材料, 要制作UN的热中子散射截面数据就需要UN准确的声子态密度和可靠的热中子截面处理方法.

2 热中子散射理论

热中子相干散射和非相干散射包括弹性散射和非弹性散射部分, 弹性散射不会带来系统能量的变化, 但是由于热中子能量与晶格振动能态相当, 认为热中子弹性散射是整个晶格的散射, 这样靶核的有效质量将会很大, 系统中子散射过程中不会失去能量. 相反, 热中子的非弹性散射会带来能量的损失或者增加, 这主要是由碰撞核处于激发态引起的, 即非弹性散射会伴随原子的一个或多个声子的发射或吸收. 虽然热中子的非弹性散射不会引起整个靶核本身的激发态, 但可以引起分子(或晶体)中原子的一个或几个振动量子态的改变.

热中子截面通常可以分为3部分^[15].

1) 非弹性散射: 包括相干和非相干非弹性散射, 对所有物质都重要, 用热散射律表示. 非弹性散射的双微分散射截面是散射律 $S(\alpha, \beta)$ 的函数:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} = \frac{1}{4\pi} \sqrt{\frac{E'}{E}} [\sigma_{\text{coh}} S(\alpha, \beta) + \sigma_{\text{inc}} S_s(\alpha, \beta)], \quad (1)$$

其中 E 和 E' 是实验系中入射和散射中子的能量, Ω 是实验系下的散射角度, σ_{coh} 是材料的束缚核的相干散射截面, σ_{inc} 是材料的束缚核的非相干散射截面, α 为动量转移量, β 为能量转移量, $S(\alpha, \beta)$ 为热中子散射律. 表达式分别为

$$\alpha = \frac{E' + E - 2\sqrt{E'E} \cos\theta}{AkT} = \frac{\hbar^2 \kappa^2}{2MkT}, \quad (2)$$

$$\beta = \frac{E' - E}{kT} = \frac{\varepsilon}{kT}, \quad (3)$$

$$S(\alpha, \beta) = S_s(\alpha, \beta) + S_d(\alpha, \beta), \quad (4)$$

其中 A 表示散射核的原子质量 M 和中子质量的比值; κ 为散射矢量; kT 是温度, 单位是eV; \hbar 为普朗克常数; ε 为能量变化量; $S_s(\alpha, \beta)$ 为不考虑相互作用的自散射律, $S_d(\alpha, \beta)$ 为考虑相干效应的分立散射律. 由(1)式可以看出, 要求非弹性散射截面需要知道束缚核的截面以及相应的散射律. 以往在热中子散射计算中通常引入“非相干近似”, 比如NJOY程序中的LEAPR模块, 即认为(4)式中的 $S_d(\alpha, \beta)$ 为零, 这样(1)式变为

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} = \frac{1}{4\pi} \sqrt{\frac{E'}{E}} [\sigma_{\text{coh}} + \sigma_{\text{inc}}] S_s(\alpha, \beta). \quad (5)$$

对于引入非相干近似后的(5)式, 认为 $S_s(\alpha, \beta)$ 是高斯分布的函数, 这时, 热中子散射律 $S_s(\alpha, \beta)$ 可以写成

$$S_s(\alpha, \beta) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\beta\hat{t}} e^{-\gamma(\hat{t})} d\hat{t}, \quad (6)$$

其中 \hat{t} 是测量时间, 以 $\hbar/(kT) \cdot s$ 为单位, $\gamma(\hat{t})$ 表示为

$$\gamma(\hat{t}) = \alpha \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\rho(\beta)}{2\beta \sinh(\beta/2)} [1 - e^{-i\beta\hat{t}}] \times e^{-\beta/2} d\beta, \quad (7)$$

其中的 $\rho(\beta)$ 是以 β 为单位的声子态密度, 并且是归一化的.

当 α 和 $|\beta|$ 值较大时($\alpha \geq \alpha_{\text{sw}}, |\beta| \geq \beta_{\text{sw}}$), 即在入射能量较高时, α 和 β 已经超出了 $S(\alpha, \beta)$ 范围, 这时就需要引入短时间碰撞近似(SCT)^[10,11,15], 从而热中子的非弹性散射表达变为

$$S^{\text{SCT}}(\alpha, \beta, T) = \frac{e^{-\left[\frac{(\alpha-|\beta|)^2 T}{4\alpha T_{\text{eff}}(T)} + \frac{|\beta|}{2}\right]}}{\sqrt{4\pi\alpha \frac{T_{\text{eff}}(T)}{T}}}, \quad (8)$$

进而得到“短时间碰撞下”的双微分截面为

$$\begin{aligned} & \sigma^{\text{SCT}}(E, E', \mu) \\ &= \frac{\sigma_b}{2kT} \frac{\sqrt{E'/E}}{\sqrt{4\pi\alpha T_{\text{eff}}/T}} \\ & \times \exp\left\{-\frac{(\alpha - |\beta|)^2 T}{4\alpha T_{\text{eff}}} - \frac{\beta + |\beta|}{2}\right\}, \quad (9) \end{aligned}$$

其中有效温度由声子谱计算得到,

$$T_{\text{eff}} = \frac{1}{2} \int_0^{\omega_{\text{max}}} \hbar\omega \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2kT}\right) \rho(\omega) d\omega. \quad (10)$$

2) 非相干弹性散射: 对含氢的固态物质重要, 如 ZrH_x、聚乙烯、固态轻水等. 在含氢固体中, 有一种由于零阶声子项产生的弹性散射(不造成能量损失), 称为“非相干弹性散射”, 对于非相干弹性散射, 其双微分散射截面为

$$\bar{\mu}_i = \frac{\exp\left[-2E(1 - \mu_i) \frac{\gamma(0)}{A}\right] \left[2E\mu_i \frac{\gamma(0)}{A} - 1\right] - \exp\left[-2E(1 - \mu_{i-1}) \frac{\gamma(0)}{A}\right] \left[2E\mu_{i-1} \frac{\gamma(0)}{A} - 1\right]}{2 \frac{E}{N} \frac{\gamma(0)}{A} [1 - e^{-4E \frac{\gamma(0)}{A}}]}, \quad (15)$$

其中

$$\begin{aligned} \mu_i &= 1 + \frac{A}{2\gamma(0)E} \ln\left(\frac{1 - e^{-4E \frac{\gamma(0)}{A}}}{N}\right) \\ &+ \exp[-2E(1 - \mu_{i-1})], \quad (16) \end{aligned}$$

μ_i 是第 i 个等概率区间的散射角余弦的上限, $\bar{\mu}_i$ 是该区间内平均散射角余弦值, N 是等概率区间的个数, 并且 $\mu_0 = -1$.

3) 相干弹性散射: 对晶体重要, 如石墨、铍和 UO₂ 等. 在包含相干散射的固体中, 组成固体的晶体不同平面的原子会发生干涉散射, 在 ENDF 库中, 这一过程被称为“相干弹性散射”, 因为没有能量的损失.

多晶材料的双微分相干弹性散射表达式如下:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma_{\text{coh}}}{d\Omega dE'} &= \frac{\sigma_b}{E} \sum_{E_i < E} f_i e^{-4\gamma(0)E_i/A} \\ & \times \delta(\mu - \mu_i) \delta(E - E'), \quad (17) \end{aligned}$$

其中 $\mu_i = 1 - 2E_i/E$.

积分之后得到

$$\sigma_{\text{coh}} = \frac{\sigma_b}{E} \sum_{E_i < E} f_i e^{-4\gamma(0)E_i/A}, \quad (18)$$

其中 σ_b 是材料有效的束缚核相干散射截面, E_i 是所谓的布拉格阈值, f_i 是对应的晶格学结构因子, 不同晶格结构的 f_i 不同.

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} &= \frac{\sigma_b}{4\pi} \exp\left(-2E(1 - \mu) \frac{\gamma(0)}{A}\right) \\ & \times \delta(\mu) \delta(E - E'), \quad (11) \end{aligned}$$

相应的双微分截面为

$$\sigma(E, \mu) = \frac{\sigma_b}{2} \exp\left(-2E(1 - \mu) \frac{\gamma(0)}{A}\right), \quad (12)$$

积分后的弹性散射截面为

$$\sigma(E) = \frac{\sigma_b A}{4E\gamma(0)} \left[1 - \exp\left(-4E \frac{\gamma(0)}{A}\right)\right], \quad (13)$$

其中 Debye Waller 积分 $\gamma(0)$ 由声子态密度计算得到,

$$\gamma(0) = \int_0^{\omega_{\text{max}}} \frac{\rho(\omega)}{\hbar\omega} \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2kT}\right) d\omega, \quad (14)$$

并且有

3 计算方法与建模

氮化铀燃料的原子结构如图 1 所示, 它与碱金属卤化物 NaCl, KCl 和 MgO 的结构类似, 这种结构被称之为面心立方结构 (FCC), 它的原胞结构中只包含两个原子, 每个原子被 6 个其他原子所包围. UN 燃料结合了金属燃料和氧化物燃料的双重优点, 既有像金属燃料一样的高热导率和高密度, 又有像氧化物燃料一样的高熔点和较高的结构完整性.

利用美国 Material Design 公司研制的 Medea^[16] 材料计算平台, 通过调用平台下的 VASP 和 PHONON 软件完成 UN 材料的声子态

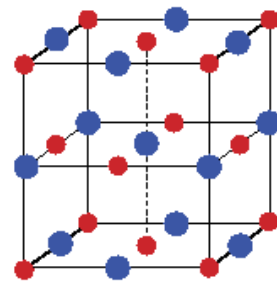


图 1 UN 原子结构图

Fig. 1. Atom structure of UN.

密度计算. 本文首先计算了UN在基态时的能量与结构, 交换关联函数使用Perdew在1991年提出的梯度密度修正近似GGA (Gradient Corrected Approximation) [17], U和N的截断能量选取为400 eV, 计算采用周期性超晶格方法, UN立方相的布里渊区积分在 $6 \times 6 \times 6$ 的Monkhost-Pack格子中进行. 根据体系的周期性, 移动每个原子的位置, 计算出原胞中所有原子受力, 利用第一性原理线性响应理论计算Hellmann-Feynman (HF) 力常数, 进而得到UN的声子谱, 流程如图2所示.

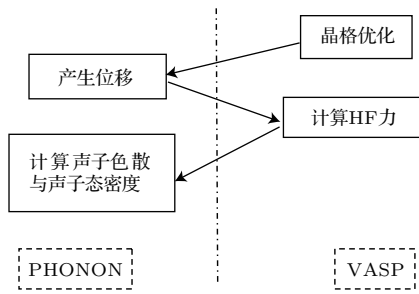


图2 VASP/PHONON产生声子态密度的流程图
Fig. 2. Flowchart of phonon density of states generation in VASP/PHONON code.

热力学函数内能(E)、熵(S)、自由能(F)、恒容热容(C_v)与声子谱密切相关, 一旦得到了UN的声子谱, 这些热力学参数就可以在简谐近似的模型下确定, 因为这些参数主要采用了声子谱作为它们积分的权重谱, 其中 C_v 是比较重要的参数, 因为它可以在实验中准确测量, 通常用它来检验声子谱计算的准确性, 在PHONON/VASP程序的计算中, 比热容有如下表示:

$$C = r k_B \int_0^\infty d\omega \rho(\omega) \left(\frac{\hbar\omega}{k_B T} \right)^2 \times \frac{e^{\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right)}}{\left(e^{\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right)} - 1 \right)^2}, \quad (19)$$

其中 r 是晶胞内的自由度个数, k_B 是玻尔兹曼常数, T 是温度, \hbar 是简化普朗克常数.

因为 ^{14}N 在热能区具有较高的热中子吸收截面, 而且还会产生半衰期较长的 ^{14}C , 所以在UN的实际应用中, 多采用高富集度的 U^{15}N . UN中U的热中子分析采用和 UO_2 一致的方法, 仅处理UN中U的 ^{238}U 核素, 表1所列为UN中 ^{238}U , ^{14}N 和 ^{15}N 各核素原子量以及各自束缚核的相干和非相干散射截面[18], 其中自由散射截面由下式得到:

$$\sigma_{\text{free}} = \left(\frac{A}{A+1} \right)^2 \sigma_b. \quad (20)$$

从表1中数据可以看出, ^{238}U 采用相干弹性散射截面和非相干非弹性散射, ^{14}N 和 ^{15}N 采用非相干弹性散射截面是比较合理的. 因此, 在NJOY/LEAPR的计算中, 仅需要对UN中 ^{238}U 的相干弹性散射截面的晶格学结构因子进行重新构造, 其他参数按照表中数据和声子态密度进行输入, 而对于非弹性散射截面部分, 则采用程序自带的“非相干近似”忽略其中的相干部分.

表1 UN各核素束缚核的不同反应截面
Table 1. Different cross sections of isotopes in UN.

原子	原子量	σ_a / barns	σ_{coh} / barns	σ_{inc} / barns	σ_b / barns	σ_{free} / barns
^{238}U	236	2.68	8.87	0	8.87	8.80
^{14}N	13.9	1.91	11.0	0.50	11.5	10.0
^{15}N	14.9	0	5.21	0	5.21	4.57

4 计算结果与讨论

4.1 晶格参数的比较

UN的几何结构优化采用平面波赝势程序VASP进行, 初始参数选取Pearson数据库中的实验值, 对晶格参数和原子位置进行模拟, 利用VASP程序包中的structure optimization选项将UN结构松弛到它的最低能量状态, 电子能量收敛的标准选取为 1×10^{-5} eV, 平面波截断能为400 eV, 分别用广义梯度近似GGA和局域密度泛函LDA进行计算, 结果如表2所列. 可以看出, 采用GGA的赝势优化得到的晶格参数更符合真实值. 因此, 接下来基于GGA赝势优化得到的结构进行声子谱的计算.

表2 晶格参数的对比
Table 2. Comparison in lattice parameters.

方法	GGA	LDA	Pearson数据库
$a = b = c$	4.84	4.77	4.89
误差	-1.0%	-2.3%	—

4.2 声子谱的比较

UN声子色散关系在布里渊区不同方向的计算结果如图3所示, 较低分支为声子项, 较高的分支为光子项. 声子态密度的计算结果如图4所示, 与声子色散关系结论一致, 低频的声学支主要是体系的整体运动, 光学支是原子间的相互运动, 而且

UN的声子项和光子项分隔较为明显. 将 UO_2 的分声子态密度与UN进行比较^[19], 如图5和图6所示. 由图5可以看出两者的U分声子态密度相差不多, 而由图6可以看出 UO_2 中O的分声子态密度比UN中N的分声子态密度作用范围更广, 但绝对值有所降低, 同时 UO_2 的声子项和光子项分隔不明显, 说明声子态密度不仅与核素相关还与其晶体结构密切相关.

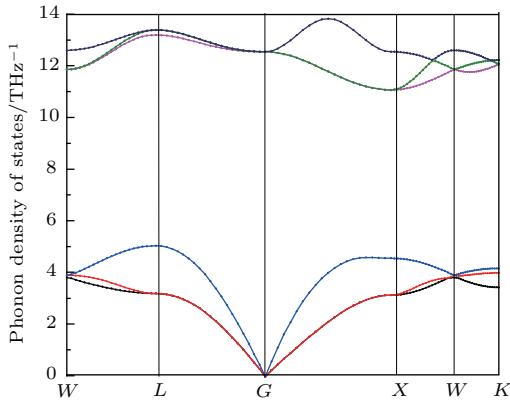


图3 UN声子色散关系
Fig. 3. Phonon dispersion of UN.

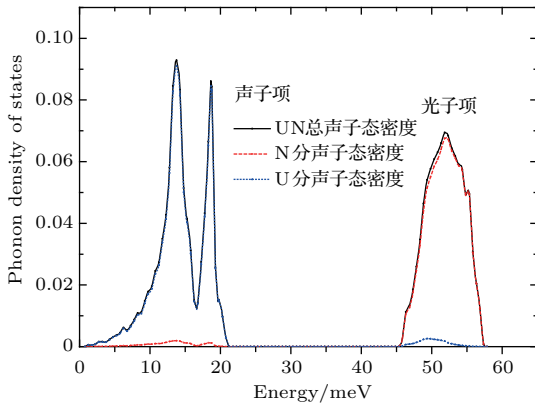


图4 UN声子态密度图
Fig. 4. Phonon density of states in UN.

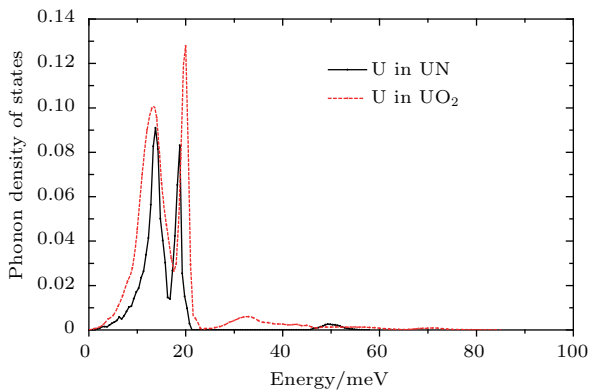


图5 UN和 UO_2 中U的分声子态密度
Fig. 5. Phonon spectrum of U in UN and UO_2 .

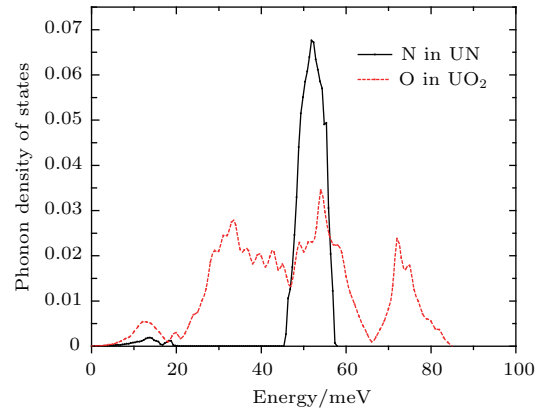


图6 UN中N和 UO_2 中O的分声子态密度
Fig. 6. Phonon spectrum of N in UN and O in UO_2 .

4.3 比热容的比较

图7所示为本文利用VASP+PHONON软件计算的UN比热容随温度的变化, 同时与文献^[20]中分子动力学(molecular dynamics, MD)的模拟结果以及文献^[21]中的实验结果进行了比较. 从图7可以看出, 本文模拟的 C_v 较文献^[20]中MD模拟的值更接近实验结果, 同时, 高温下三者都趋近于佩蒂特杜隆极限. 通过比较可以看出, 本文计算得到的UN声子态密度是较为准确的.

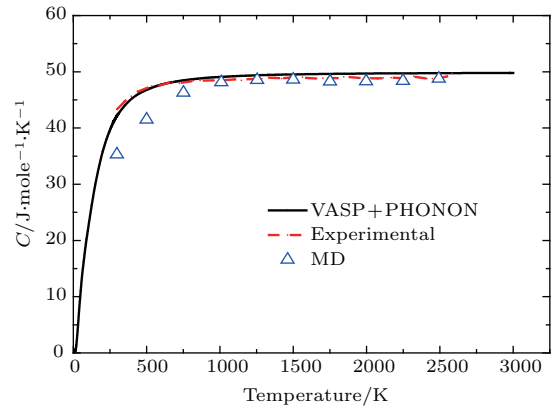


图7 UN比热容随温度的变化
Fig. 7. Heat capacity changes of UN with temperature.

4.4 热中子散射律、Debye Waller积分和 T_{eff}

UN中N和U的 $S(\alpha, \beta)$ 随 β 的变化情况如图8所示, 图中给出了 $\alpha = 0.5$, $\alpha = 1.33$ 和 $\alpha = 10$ 的计算结果. 从图8(a)中可以看出, 在 α 较小时, $S(\alpha, \beta)$ 随 β 变化明显, 表现出显著的振动, 这种振动是声子谱导致的, 随着 α 值的增大, β 的变化范围慢慢增大, 同时振动减弱, 这就要求在较大动量

变化情况下进行计算时, β 的取值范围要尽可能大一些, 这样能更好地反映振子情况. 从图 8 (b) 可以看出, UN 中 U 的 $S(\alpha, \beta)$ 随 β 变化的振荡特性不明显, 这主要是因为 U 原子质量比较大, 散射中的最大能量损失很小, 这种情况下就没有必要扩展 β 到比较高的能量.

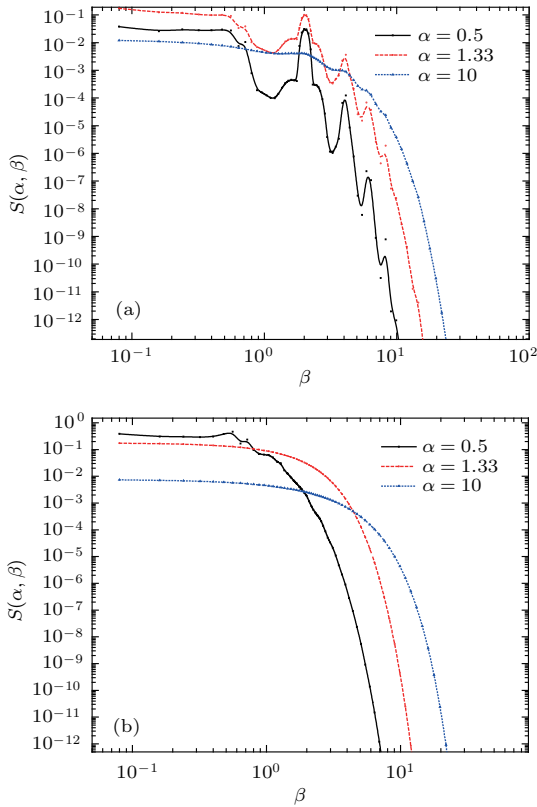


图 8 (a) UN 中 N 的 $S(\alpha, \beta)$ 随 β 的变化情况; (b) UN 中 U 的 $S(\alpha, \beta)$ 随 β 的变化情况
Fig. 8. (a) $S(\alpha, \beta)$ of N in UN changes with β ; (b) $S(\alpha, \beta)$ of U in UN changes with β .

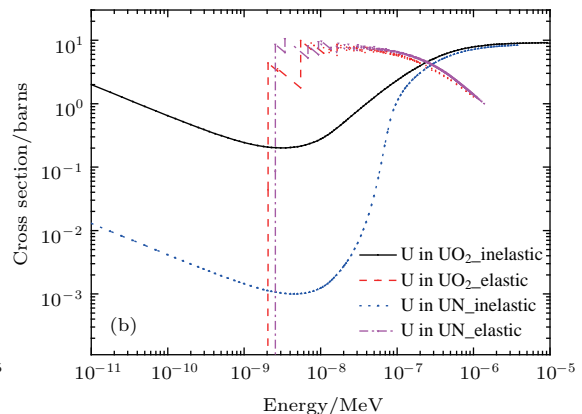
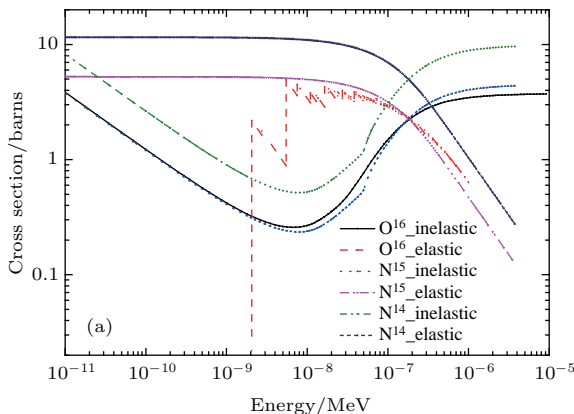


图 9 (a) 293.6 K 温度下 UO_2 中 ^{16}O 和 UN 中 ^{15}N (^{14}N) 的非弹性散射和弹性散射截面; (b) 293.6 K 温度下 UO_2 中 U 和 UN 中 U 的非弹性散射和弹性散射截面
Fig. 9. (a) Inelastic and elastic cross sections of ^{16}O in UO_2 and ^{15}N (^{14}N) in UN at 293.6 K; (b) inelastic and elastic cross sections of U in UO_2 and UN at 293.6 K.

由 (8) 式—(10) 式可以得到, 较高的入射能量超出了 $S(\alpha, \beta)$ 范围, 引入 SCT 后, 热中子的非弹性散射由 T_{eff} 决定, 由 (11) 式—(16) 式可以得到, 非相干弹性散射截面由 Debye Waller 积分 $\gamma(0)$ 决定. 表 3 给出为 UN 中 ^{238}U 和 ^{14}N (^{15}N) 的 Debye Waller 积分和 T_{eff} 数值, 从表 3 可以看出有效温度要略高于实际温度.

表 3 Debye Waller 积分和 T_{eff}
Table 3. Debye Waller integral and T_{eff} parameters.

温度/K	^{238}U		^{14}N (^{15}N)	
	德拜积分 / eV^{-1}	有效温度 T_{eff} /K	德拜积分 / eV^{-1}	有效温度 T_{eff} /K
293.6	9.200	304.0	0.9780	387.8
400.0	16.94	407.7	1.686	471.3
500.0	26.37	506.2	2.546	557.7
600.0	37.90	605.2	3.595	648.5
700.0	51.52	704.4	4.835	741.7
800.0	67.24	803.9	6.265	836.6
1000.0	105.0	1003.0	9.697	1029.0
1200.0	151.1	1203.0	13.891	1225.0

4.5 热中子截面

为了比较 UO_2 和 UN 热中子截面的差异, 分别对比了 293.6 K 温度下 UO_2 中 ^{16}O 和 UN 中 ^{14}N , ^{15}N 以及 UO_2 中 U 和 UN 中 U 的非弹性散射截面和弹性散射截面, 如图 9 所示. 同时给出了不同温度下 UN 中 ^{14}N 以及 UN 中 U 非弹性散射截面和弹性散射截面, 如图 10 所示. 由图 9 和图 10 可以看出,

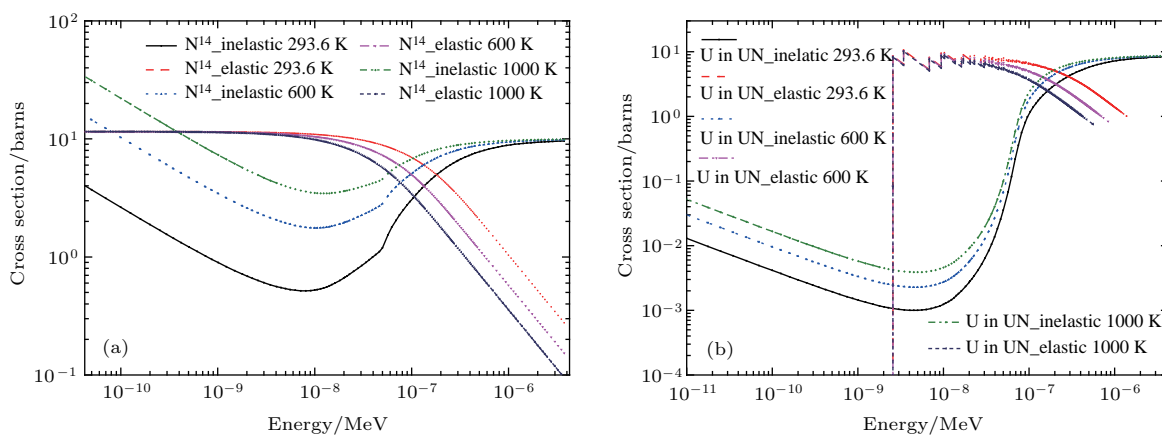


图10 非弹性散射和弹性散射截面随温度的变化 (a) UN中¹⁴N; (b) UN中U

Fig. 10. Inelastic and elastic cross sections changes with temperatures: (a) N in UN; (b) U in UN.

UO₂中¹⁶O考虑了相干弹性散射部分, UN中¹⁴N和¹⁵N忽略了弹性散射的相干部分, 并且¹⁴N的非弹性散射和弹性散射截面略高于¹⁵N, ¹⁴N的非弹性散射截面与¹⁶O较为接近, 相同温度下UN中²³⁸U非弹性散射和弹性散射截面比UO₂中²³⁸U偏小. 随着温度的升高, UN中N和U的非弹性散射截面升高, 中子与UN作用更激发晶格态, 从而获得声子; 相反, 弹性散射截面随温度的升高是降低的, 当能量为1 eV左右时弹性散射截面基本为零, 总截面主要是非弹性散射截面的贡献, 等于自由核散射截面, 与自由气体模型一致.

5 结论与展望

本文采用第一性原理, 基于热中子散射理论分析制作了氮化铀的热中子截面, 提出合适的UN热中子截面的预测方法. 从UN晶格参数出发, 利用第一性原理晶格动力学的直接方法得到了UN声子态密度, 补充了热能区多温度点的UN热中子散射截面, 填补UN热能区数据的缺失; 分别将影响较大的中子热散射律、热中子弹性和非弹性散射截面与传统UO₂进行对比, 相同温度下, UN中²³⁸U非弹性散射和弹性散射截面比UO₂小, UN中N忽略了相干散射部分; 随着温度升高, UN弹性散射截面变小, 非弹性散射变大; 弹性散射截面在高能段等于零, 非弹性散射截面在低能区主要通过声子的吸获得能量, 截面的变化符合1/v规律, 在中能区, 通过与UN核碰撞产生或发射声子, 随着能量的升高截面增加, 在热能区符合自由核模型. 本文的研

究结论揭示了UN在热中子反应堆中的热中子散射特性, 为以UN为燃料的热中子反应堆的研究奠定了基础.

参考文献

- [1] Choi J, Ebbinghaus B, Meier T 2006 *UCRL-TR-218931* (Lawrence Livermore National Laboratory)
- [2] Zakova J, Wallenius J 2012 *Ann. Nucl. Energy* **47** 182
- [3] Hawari A I 2014 *Nucl. Data Sheets* **118** 172
- [4] Wang L P, Jiang X B, Zhao Z M, Chen L X 2013 *Nucl. Eng. Des.* **262** 365
- [5] Wang L P, Jiang X B, Zhao Z M, Chen L X 2015 *Proceedings of the 23th International Conference on Nuclear Engineering* Chiba, Japan, May 17–21, 2015 ICONE23-TP046
- [6] X-5 Monte Carlo Team 2003 *LA-03-1987-M* (Los Alamos National Laboratory)
- [7] Brown D A, Chadwick M B, Capote R, et al. 2018 *Nucl. Data Sheets* **148** 1
- [8] Zhu Y W, Hawari A I 2015 *Proceedings of International Conference on Nuclear Criticality Safety* Charlotte, North Carolina, September 13–17, 2015 p874
- [9] Zhu Y W, Hawari A I 2018 *Proceedings of the PHYSOR 2018* Cancun, Mexico, April 22–26, 2018
- [10] Macfarlane R E, Muir D W 1994 *LA-12470-M* (Los Alamos National Laboratory)
- [11] Macfarlane R E, Muir D W 2012 *LA-UR-12-27079* (Los Alamos National Laboratory)
- [12] Bell G I, Gasstone S (translated by Qian Li) 1970 *Nuclear Reactor Theory* (Beijing: Science Press) pp235–243 (in Chinese) [贝尔 G I, 格拉斯 S 著 (千里译) 1970 核反应堆理论 (北京: 原子能出版社) 第 235—243 页]
- [13] Xie Z S, Yin B H 2004 *Nuclear Reactor Physics Analysis* (Beijing: Atom Press) p120 (in Chinese) [谢仲生, 尹邦华 2004 核反应堆物理分析 (北京: 原子能出版社) 第 120 页]
- [14] McLane V 2009 *BNL-NCS-44945-01/03-Rev* (Brookhaven National Laboratory)

- [15] Mattes M, Keinert J 2005 *INDC(NDS)-0470* (International Nuclear Data Committee)
- [16] MedeA_221 2017 *Materials Design* Inc., Angel Fire, NM, USA.
- [17] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [18] Sears V F 1992 *International Tables for Crystallography* (Vol. C) *Mathematical, Physical and Chemical Tables* (Dordrecht: Kluwer Academic Publishers)
- [19] Koppel J U, Houston D H 1968 *GA-8774 Revised* (U. S. Atomic Energy Commission)
- [20] Kurosaki K, Yano K, Yamada K 2000 *J. Alloys Compd.* **297** 1
- [21] Hayes S L, Thomas J K, Peddicord K L 1990 *J. Nucl. Mater.* **171** 262

Ab initio calculation of the thermal neutron scattering cross sections of uranium mononitride

Wang Li-Peng^{1)2)†} Jiang Xin-Biao²⁾ Wu Hong-Chun¹⁾ Fan Hui-Qing³⁾

1) (School of Nuclear Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

2) (Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China)

3) (School of Materials Science and Engineering, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

(Received 26 April 2018; revised manuscript received 30 July 2018)

Abstract

Nuclear design and neutronic analysis of thermal neutron reactor need high reliable thermal neutron cross sections. Uranium mononitride (UN) is a candidate fuel material for advanced power reactor with its better thermodynamics and accident tolerance. However, in thermal neutron region, reliable thermal neutron scattering cross sections are lacked for UN, which is disadvantageous to reactor physics simulations. The scattering law of the UN fuel material may impact the thermal neutron spectrum and criticality of the reactor systems. Neutron cross sections in thermal range are correlated with energy, temperature, physical and chemical properties of the scattering medium, reflecting the phonon spectra of material itself. In this paper, based on the *ab initio* method of quantum mechanics, phonon density of states in UN are calculated by VASP/PHONON code, and used for integral to obtain UN heat capacity at a constant volume. Adopting this new phonon density of states, NJOY/LEAPR code is used to generate $S(\alpha, \beta)$ data by thermal neutron scattering theory and NJOY/THERMR utilizes these data to produce thermal scattering matrix in order to investigate thermal kernel effect of UN. Subsequently, thermal neutron scattering cross sections of UN are generated with NJOY code system. Comparison with uranium dioxide (UO₂) in the traditional PWR is done. Results indicate that optimized lattice parameter are in good agreement with the database; the optical modes are well separated from the acoustic modes compared with UO₂; heat capacity at a constant volume is consistent with experimental value; the inelastic and elastic cross sections of ²³⁸U in UN are lower than those of ²³⁸U in UO₂. N in UN only deals with incoherent part in elastic cross sections. As the temperature increases, elastic cross sections of UN decrease while inelastic ones increase, and cross sections approach to free atom cross section at high energies. Considering the limitations of ¹⁴N, the scattering law and inelastic scattering cross sections are also under investigation using ¹⁵N in UN compound. This paper's conclusion fulfill the vacancy of thermal neutron scattering cross sections of UN, which laid a foundation for systematic study on the neutronics properties of UN fuel in the light water reactors as well as for the design of new neutron moderators and neutron filter.

Keywords: UN, *ab initio*, phonon spectrum, thermal neutron scattering cross section

PACS: 28.20.Cz, 28.20.Ka, 63.20.dk, 63.20.K-

DOI: 10.7498/aps.67.20180834

† Corresponding author. E-mail: wang0214@126.com