

核物理主题数据: 实验、理论与应用专题

亚化学计量金属氢化物热散射律数据计算分析*

马宇图 祖铁军† 吴宏春 曹良志

(西安交通大学核科学与技术学院, 西安 710049)

(2025年7月13日收到; 2025年8月20日收到修改稿)

金属氢化物是先进反应堆研发中具有重要应用前景的中子慢化剂材料, 其热中子散射数据对反应堆设计精度具有重要影响. 本文通过准随机结构和第一性原理晶格动力学方法, 计算了亚化学计量氢化锆和氢化钇的声子态密度等参数, 以此为基础, 基于核数据处理程序 NECP-Atlas 计算获得了不同亚化学计量氢化物的热中子散射律数据, 并分析了氢含量对氢化物热散射截面以及临界装置有效增殖系数的影响. 研究表明: 氢化物中氢含量的变化导致热散射截面存在差异, 进而影响核反应堆的计算结果, 对于装载氢化锆的 ICT003 和 ICT013 系列基准题 (H/Zr 约为 1.6), 采用其他氢含量氢化锆的热散射律数据导致有效增殖系数最大偏差为 104 pcm; 对于装载 ZrH_2 的 HCM003 系列基准题, 采用其他氢含量氢化锆热散射律数据导致有效增殖系数最大偏差为 147 pcm. 本文数据集可在科学数据银行数据库 <https://www.doi.org/10.57760/sciencedb.j00213.00179> 中访问获取.

关键词: 氢化锆, 氢化钇, 热散射律数据, 热中子散射截面**PACS:** 28.20.Ka, 28.20.Cz, 63.20.D-, 88.30.rd**DOI:** 10.7498/aps.74.20250928**CSTR:** 32037.14.aps.74.20250928

1 引言

氢化锆 (ZrH_x) 和氢化钇 (YH_x) 具有高密度氢, 中子慢化能力强, 同时高温下具有较高的氢保持能力, 是先进核反应堆设计中重要的慢化剂或燃料基体材料^[1]. 氢化锆已被应用到俄罗斯的 Topaz 堆^[2]、美国的 MARVEL (Microreactor Applications Research Validation and Evaluation) 计划^[3], 以及 TRIGA 堆^[4] 等反应堆中. YH_x 由于在高温下具有更好的氢保持能力, 被美国能源部应用于微型反应堆和小型模块化反应堆的设计中, 例如被选为美国橡树岭国家实验室的 TCR (Transformational Challenge Reactor) 反应堆的慢化剂材料^[5]. 不同反应堆使用的金属氢化物的氢含量不同, 并且在反应堆高温运行中, 金属氢化物的析氢及氢原子的再

分布会引起氢化物化学计量比发生局部变化^[6]. 金属氢化物中氢的含量对其晶体结构具有直接的影响: 对于室温下的氢化锆, $1.59 < H/Zr < 1.64$ 时是面心立方的 δ 相晶体结构, 随着氢含量的增大会逐渐从 δ 相转变为面心四方的 ϵ 相晶体结构; 对于氢化钇, $800\text{ }^\circ\text{C}$ 下 $1.13 < H/Y < 2$ 时为单相的面心立方 δ - YH_x , 室温下 $0.25 < H/Y < 2$ 时为 α -Y 和 δ - YH_x 的混合物. 氢含量的变化一方面可能会导致晶相的转变, 如氢化锆的 $\delta \rightarrow \epsilon$ 转变^[7], 同时相同相下氢化物的氢含量变化会引入 H 原子空位^[8], 以上因素会显著改变材料的声子态密度等动力学性质.

在中子能量小于 5 eV 的热中子能区, 由于靶核的热运动、化学键的束缚以及散射波的干涉效应, 热中子与材料的散射反应与材料晶体结构及动力学特性密切相关. 评价核数据库提供了不同材料的热散射律 (thermal scattering law, TSL) 数据^[9],

* 国家自然科学基金 (批准号: 12135019) 和国家重点研发计划 (批准号: 2022YFB1902600) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: tiejun@mail.xjtu.edu.cn

以描述中子与不同材料发生散射反应时的能量和动量转移. TSL 数据是计算热散射截面的基础数据, 中子输运计算使用的热散射截面数据是由核数据处理程序基于 TSL 数据计算获得.

对于晶体的 TSL 数据, 一般采用声子展开模型进行计算^[10,11], 需要材料的声子态密度等动力学性质作为输入参数. 早期美国、欧洲的评价核数据库采用经验公式获得 ZrH_x 的声子态密度计算其 TSL 数据, 导致热散射截面存在误差, 例如 ZrH 等^[12] 针对西安脉冲堆上的测试结果显示: 基于第一性原理评价的 δ - $ZrH_{1.5}$ 的 TSL 相对于 ENDF/B-VIII.0 评价核数据库中基于经验模型的 TSL 将反应堆的有效增殖系数改进 492 pcm. 此外, Wang 等^[13] 基于散射截面的微观测量数据对 ZrH_x 的声子态密度经验模型的参数进行优化, 优化后的 TSL 数据将 TRIGA 反应堆的有效增殖系数改进 160 pcm. Švajger 等^[14] 基于第一性原理获得的声子态密度等参数计算获得 δ - $ZrH_{1.5}$ 以及 ϵ - ZrH_2 的 TSL 数据, 并与 ENDF/B-VIII.1 中采用类似方法获得的 TSL 数据进行对比. 以上工作^[12-14] 针对特定氢含量的氢化物进行评价, 未开展不同氢含量下氢化物的 TSL 数据计算.

近年来, 国外针对 ZrH_x 和 YH_x 的 TSL 开展了研究^[14-19]. Mehta 等^[15,16] 和 Trainer 等^[17] 分析了不同氢含量对氢化物 TSL 的影响, 研究显示不同氢含量下的氢化物 TSL 数据间存在差异, 例如文献^[15] 结果显示在 300 K 下 $YH_{1.31}$ 和 $YH_{1.91}$ 间热散射截面最大偏差可达 60%. 然而, 以上工作^[15-17] 在 TSL 的理论计算方法上仍然存在一些近似, 例如 Zr 或 Y 的非弹性散射采用了非相干近似. 此外, 目前国际上最新发布的评价核数据库 ENDF/B-VIII.1 中, 仅提供了 δ - YH_2 , δ - ZrH_x 及 ϵ - ZrH_2 的 TSL 数据^[18], 不能满足新型核反应堆研究析氢及氢再分布对反应堆影响的精细化分析需求, 同时我国的评价核数据库^[20] 中缺少 TSL 数据子库. 因此, 本文基于核数据处理程序 NECP-Atlas 中的 TSL 数据计算模块 `sab_calc`^[10,21], 计算产生不同氢含量下 ZrH_x 和 YH_x 的 TSL 数据.

2 热中子散射律数据计算方法

基于声子展开模型^[11], 固体晶体材料的热中子双微分散射截面可以表示为

$$\sigma(E \rightarrow E', \mu) = \frac{1}{2k_B T} \sqrt{\frac{E'}{E}} \left[\sigma_{\text{coh}} \sum_{n=0}^{\infty} S^n(\alpha, \beta) + \sigma_{\text{inc}} \sum_{n=0}^{\infty} S_s^n(\alpha, \beta) \right], \quad (1)$$

式中, k_B 为玻尔兹曼常数, T 为材料温度, E 和 E' 分别为入射和出射中子能量, σ_{coh} 为束缚态相干散射截面, σ_{inc} 为束缚态非相干散射截面; n 表示 n 个声子产生或湮灭, 公式中 $n=0$ 的项表示没有声子产生或湮灭, 对应弹性散射, $n>0$ 的所有项对应非弹性散射; α 为无量纲的动量转移量, β 为无量纲的能量转移量; $S^n(\alpha, \beta)$ 为第 n 阶声子的相干散射律, 且 $S^n(\alpha, \beta) = S_s^n(\alpha, \beta) + S_d^n(\alpha, \beta)$, 其中 $S_d^n(\alpha, \beta)$ 为第 n 阶声子的相互散射律, $S_s^n(\alpha, \beta)$ 为第 n 阶声子的自散射律.

在 ENDF-6 格式的评价核数据库^[9] 中, TSL 数据基于 3 种散射类型进行存储: 非弹性散射、相干弹性散射和非相干弹性散射. 以下针对 ZrH_x 和 YH_x 分别介绍 NECP-Atlas 中 TSL 数据计算模块 `sab_calc` 对这 3 种散射类型的计算方法.

2.1 非弹性散射

在非弹性散射过程中, 存在声子产生和湮灭, 因此保留 (1) 式中的所有 $n>0$ 项. 对于 ZrH_x 和 YH_x 中的 H, $\sigma_{\text{inc}} \gg \sigma_{\text{coh}}$, 可以采用非相干近似^[22], 忽略相互散射律 $S_d^n(\alpha, \beta)$, 非弹性双微分散射截面可表示为

$$\sigma_{\text{inc}}(E \rightarrow E', \mu) = \frac{\sigma_b}{2k_B T} \sqrt{\frac{E'}{E}} \sum_{n=1}^{\infty} S_s^n(\alpha, \beta), \quad (2)$$

式中, σ_b 为束缚态散射截面, 且 $\sigma_b = \sigma_{\text{coh}} + \sigma_{\text{inc}}$; 第 n 阶自散射律 $S_s^n(\alpha, \beta)$ 由下式计算获得

$$S_s^n(\alpha, \beta) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\beta\hat{t}} e^{-\alpha\lambda} \frac{1}{n!} \times \left[\alpha \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\rho(\beta)}{2\beta \sinh(\beta/2)} e^{-\beta/2} e^{-i\beta\hat{t}} d\beta \right]^n d\hat{t}, \quad (3)$$

式中, $\rho(\beta)$ 为声子态密度; $\hat{t} = (k_B T t) / \hbar$, 为时间 t 的无量纲量; λ 由 (4) 式计算:

$$\lambda = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\rho(\beta)}{2\beta \sinh(\beta/2)} e^{-\beta/2} d\beta. \quad (4)$$

对于 ZrH_x 中的 Zr 或 YH_x 中的 Y, $\sigma_{\text{coh}} \gg \sigma_{\text{inc}}$, 相互散射项 $S_d^n(\alpha, \beta)$ 不能再被忽略, 本文采用声子修正方法^[21], 保留相互散射项中贡献最大的一阶

相互散射项 $S_d^1(\alpha, \beta)$, (1) 式变为

$$\sigma_{\text{inc}}(E \rightarrow E', \mu) = \frac{1}{2k_{\text{B}}T} \sqrt{\frac{E'}{E}} \left[\sigma_{\text{coh}} S_{\text{coh}+1}(\alpha, \beta) + \sigma_{\text{b}} \sum_{n=2}^{\infty} S_{\text{s}}^n(\alpha, \beta) + \sigma_{\text{inc}} S_{\text{s}}^1(\alpha, \beta) \right], \quad (5)$$

式中, $S_{\text{coh}+1}(\alpha, \beta)$ 为相干声子激发的 TSL, 由 (6) 式计算 [23]:

$$S_{\text{coh}+1}(\alpha, \beta) = \frac{1}{2N} \frac{\hbar^2}{k_{\text{B}}T} \frac{1}{\bar{b}^2} \sum_{s, \kappa_{\pm}} \frac{F_{\text{s}}^2(\kappa_{\pm})}{l(\alpha, \Delta\alpha)} \times \frac{e^{\beta}}{e^{\beta} - 1} \frac{1}{\Delta\beta} \frac{1}{\beta}, \quad \beta > 0, \quad (6)$$

式中, N 为晶胞内原子数, \hbar 为约化普朗克常数, \bar{b} 为目标核素的平均散射长度, $\kappa_{\pm} = \mathbf{q} + \boldsymbol{\tau}$ 为所采样的散射矢量, 其中 \mathbf{q} 为第一布里渊区采用的 q 点在倒格子中的坐标矢量, $\boldsymbol{\tau}$ 为倒格子矢量; s 为简正模式; $l(\alpha, \Delta\alpha)$ 对目标核素的计算值 α' 落入到给定的 $[\alpha, \alpha + \Delta\alpha)$ 网格中的个数; $\Delta\alpha$ 和 $\Delta\beta$ 分别为 $\Delta\alpha_{i'} = (\alpha_{i'} - \alpha_{i'-1})/2$, $\Delta\beta_{i'} = (\beta_{i'+1} - \beta_{i'-1})/2$, 其中 i' 为在计算 TSL 时给定的 α, β 网格的编号; $F_{\text{s}}^2(\kappa_{\pm})$ 为简正模式 s 下的晶胞核结构因子, 由 (7) 式计算:

$$F_{\text{s}}(\boldsymbol{\kappa}) = \sum_d \frac{\bar{b}_d}{\sqrt{M_d}} e^{-W_d(\boldsymbol{\kappa})} e^{i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{d}} (\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{e}_{ds}), \quad (7)$$

式中, M_d 为第 d 个原子的质量; \mathbf{e}_{ds} 为第 d 个原子在简正模式 s 模式下的极化矢量; \mathbf{d} 为第 d 个原子的坐标矢量; $W_d(\boldsymbol{\kappa})$ 表示第 d 个原子的德拜-沃勒函数, 本文采用立方近似 [24] 来计算, 表达式如下:

$$W_d(\boldsymbol{\tau}) = \frac{\hbar^2 \boldsymbol{\tau}^2}{4Mk_{\text{B}}T} \int_0^{\infty} \frac{1}{\beta} \coth(\beta/2) \rho_d(\beta) d\beta, \quad (8)$$

式中, $\rho_d(\beta)$ 为第 d 个原子的声子态密度.

2.2 相干弹性散射

对于 ZrH_x 中的 Zr 或 YH_x 中的 Y, 非相干弹性散射的贡献可以忽略不计, 相干弹性散射截面计算表达式为

$$\sigma_{\text{el,coh}}(E, \mu) = \frac{1}{2k_{\text{B}}T} \sqrt{\frac{E'}{E}} \sigma_{\text{coh}} S^0(\alpha, \beta) = \frac{1}{E} \frac{\pi^2 \hbar^2}{2mNv_{\text{uc}}} \sum_{E_i < E} \frac{1}{\tau_i} \left| \sum_{d=1}^N \sqrt{\sigma_{\text{coh},d}} e^{2\pi i \boldsymbol{\tau}_i \cdot \mathbf{d}} e^{-W_d(\boldsymbol{\tau}_i)} \right|^2 \times \delta(\mu - \mu_i), \quad (9)$$

式中, m 为原子质量, v_{uc} 为单胞的体积, E_i 表示第 i 个布拉格峰的位置; $\delta(\mu - \mu_i)$ 为狄拉克函数, 这里表示相干散射角余弦 μ 等于每组晶格平面的特征散射角余弦 μ_i . 与非弹性散射相同, 采用 (8) 式计算德拜-沃勒函数.

2.3 非相干弹性散射

对于氢化物中的 H, $\sigma_{\text{inc}} \gg \sigma_{\text{coh}}$, 非相干弹性散射占主导, 因此计算并存储非相干弹性散射律, 截面计算表达式为

$$\sigma_{\text{el,inc}}(E, \mu) = \frac{1}{2k_{\text{B}}T} \sqrt{\frac{E'}{E}} \sigma_{\text{inc}} S_{\text{s}}^0(\alpha, \beta) = \frac{\sigma_{\text{inc}}}{2} e^{-2W'E(1-\mu)} \delta(E - E'), \quad (10)$$

式中, μ 为散射角余弦, W' 为德拜-沃勒因子, 由 (11) 式计算:

$$W' = \frac{\lambda}{Ak_{\text{B}}T}, \quad (11)$$

式中, A 为原子相对于中子的质量比.

3 晶格动力学计算

在 δ 相 ZrH_x 或 YH_x 晶体中, Zr 或 Y 原子位于规则的 FCC(面心立方晶格) 位置, H 原子占据四面体间隙位置, 对于亚化学计量 ($x < 2$) 的氢化物, 则随机存在 H 原子的空位. 为了模拟随机分布 H 原子空位的金属氢化物, 本文使用合金理论自动化工具包 ATAT(Alloy Theoretic Automated Toolkit) 生成准随机结构 (special quasi random structure, SQS), 然后基于生成的 SQS 结构进行第一性原理晶格动力学计算, 得到 TSL 数据计算所需要的参数.

SQS 结构的建立过程: 首先, 初始的 δ -ZrH₂ 和 δ -YH₂ 原胞结构取自 Materials Project 数据库中的数据 [25], 基于初始原胞, 扩胞 $2 \times 2 \times 2$ 网格产生更大的超胞, 其中所有四面体间隙位置都被 H 原子占据; 然后使用 ATAT 根据亚化学计量随机生成 H 原子空位, 对每个亚化学计量的金属氢化物, 生成 5 组 SQS 结构; 最后, 对每个 SQS 结构进行结构优化, 在所有结构中选择能量最低的一个作为典型结构进行后续第一性原理计算.

根据 H-Zr 体系相图 [16] 和 H-Y 体系相图 [15], 在反应堆运行温度下, δ -ZrH _{x} 的 H/Zr 比范围为

1.4—1.7, 在更高的 H/Zr 比下则开始向 ϵ 相转变, δ -YH_x 的 H/Y 比范围为 1.3—2.0. 本文拟建立 H/Zr = 1.4, 1.6 和 1.7 的 ZrH_x, 以及 H/Y = 1.3, 1.6 和 1.8 的 YH_x 用于计算分析, 然而, 有限的晶胞模拟尺寸限制了 H 原子空位数量相对于 Zr 或 Y 原子数量的比值, 仅能产生拟定氢含量值附近的结构, 最终产生的 H/Zr 为 1.41, 1.59, 1.69, 产生的 Y/H 为 1.31, 1.59, 1.81. 上述氢含量范围加上 H/Zr = 2 和 H/Y = 2 的标准化学计量氢化物可覆盖反应堆的应用范围. 产生的 δ 相亚化学计量 ZrH_x 和 YH_x 的 SQS 结构分别如图 1 和图 2 所示, 其中黑色球为 H 原子空位, 白色球为 H 原子, 绿色和深绿色球分别为 Zr 和 Y 原子.

针对以上获得 SQS 结构, 开展第一性原理晶格动力学模拟获得 TSL 数据计算所需的声子态密度、极化矢量、色散关系等输入参数, 本文基于维也纳从头模拟计算软件包 VASP^[26] 和声子计算程序 Phonopy^[26,27] 计算以上参数, 采用的方法已在多种晶体材料的 TSL 数据评价中得到验证^[10,21]. 计算中使用 VASP 中的密度泛函微扰理论 (DFPT) 方法^[27,28] 计算超胞的原子间力常数, 计算条件如下: 计算赝势使用投影缀加平面波 (PAW); 交换关联

泛函使用广义梯度近似 (GGA) 中的 PBE(Perdew-Burke-Ernzerhof) 形式; 弥散方法使用宽度为 0.01 eV 的高斯弥散; 对于 ZrH_x 采用 525 eV 的平面基波截止能, 对 YH_x 采用 500 eV 的平面基波截止能; 对布里渊区的 *k*-points 采用 2×2×2 的以 Γ 为中心的网格采样.

基于上述计算得到的力常数文件, 使用 Phonopy 计算声子态密度、色散关系和极化矢量. 图 3(a) 给出了计算得到的 δ -ZrH_{1.41}, δ -ZrH_{1.59}, δ -ZrH_{1.69} 和 ϵ -ZrH₂ 的归一化声子态密度, 图 3(b) 为计算得到的 δ -YH_{1.31}, δ -YH_{1.59}, δ -YH_{1.81} 和 δ -YH₂ 的归一化声子态密度. 由于氢化物中 H 原子空位产生的缺陷, 材料的局部结构发生改变, 从而影响物理性质. 可以看到, 由于 H 原子空位的引入影响了晶格的周期性, 同时破坏了原本位置 H 与 Y 或者 Zr 的化学键, 导致不同氢含量的金属氢化物中声子态密度存在差异. H 原子的声子态密度由高频区域的光学部分主导, 引入 H 原子空位后, H 的高频声子态密度出现了许多新的振荡峰; Y 或者 Zr 原子的声子态密度由低频区域的声学部分主导, 引入 H 原子空位后, 低频声子态密度也发生明显变化, 例如 YH_x 中 Y 在 5 THz 处的峰随氢含量降低而降低.

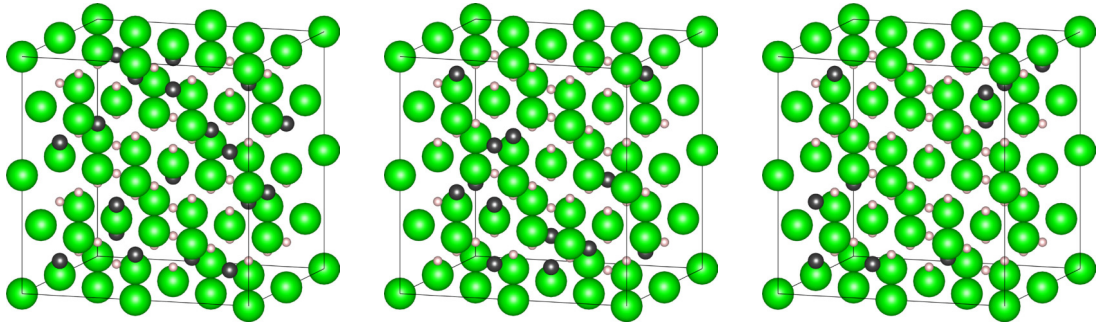


图 1 δ -ZrH_{1.41}, δ -ZrH_{1.59}, δ -ZrH_{1.69} 的超晶胞
Fig. 1. Super cell of δ -ZrH_{1.41}, δ -ZrH_{1.59} and δ -ZrH_{1.69}.

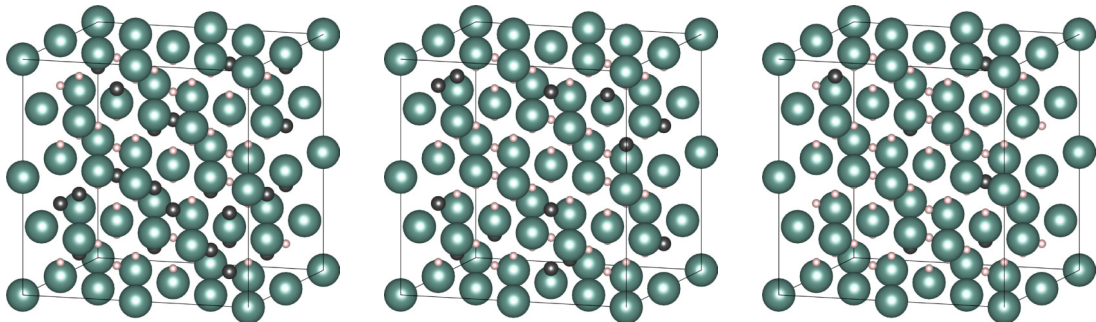


图 2 δ -YH_{1.31}, δ -YH_{1.59}, δ -YH_{1.81} 的超晶胞
Fig. 2. Super cell of δ -YH_{1.31}, δ -YH_{1.59} and δ -YH_{1.81}.

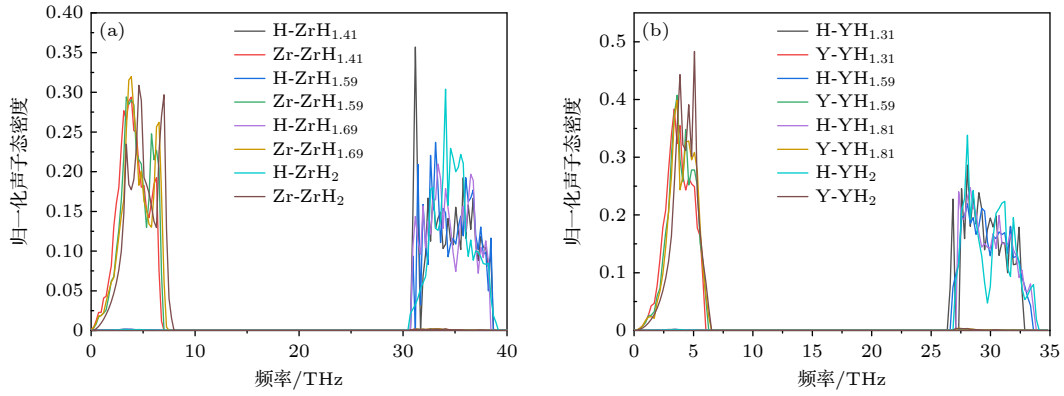


图 3 不同氢含量下氢化物的归一化声子态密度 (a) ZrH_x ; (b) YH_x

Fig. 3. Normalized phonon density of state of hydrides with different hydrogen contents: (a) ZrH_x ; (b) YH_x .

4 热中子散射截面

基于晶格动力学计算获得的声子态密度、色散关系和极化矢量, 使用 NECP-Atlas 中的 sab_calc 模块计算产生了亚化学计量的金属氢化物的 TSL 数据, 并基于获得的 TSL 数据使用 NECP-Atlas 的 therm_calc 模块计算产生了热散射截面。

图 4 比较了 293.6 K 和 1200 K 下不同氢含量

δ - ZrH_x 以及 ϵ - ZrH_2 各类型的热散射截面。随着温度的升高, 图 4(a), (c) 中 H 和 Zr 的非弹性散射截面增加, 图 4(b), (d) 中 H 和 Zr 的弹性散射截面减少。在相同 δ 相下, H/Zr 为 $1.41 < x < 1.69$ 范围内的 ZrH_x 的热散射截面存在差异; 而 δ 相和 ϵ 相间的 ZrH_x 热散射截面存在更显著的差异。图 4(a)—(c) 分别为 H 的非弹性散射截面、H 的非相干弹性散射截面以及 Zr 的非弹性散射截面, 不同氢含量间的热散射截面差异主要来源于基础计算参数声

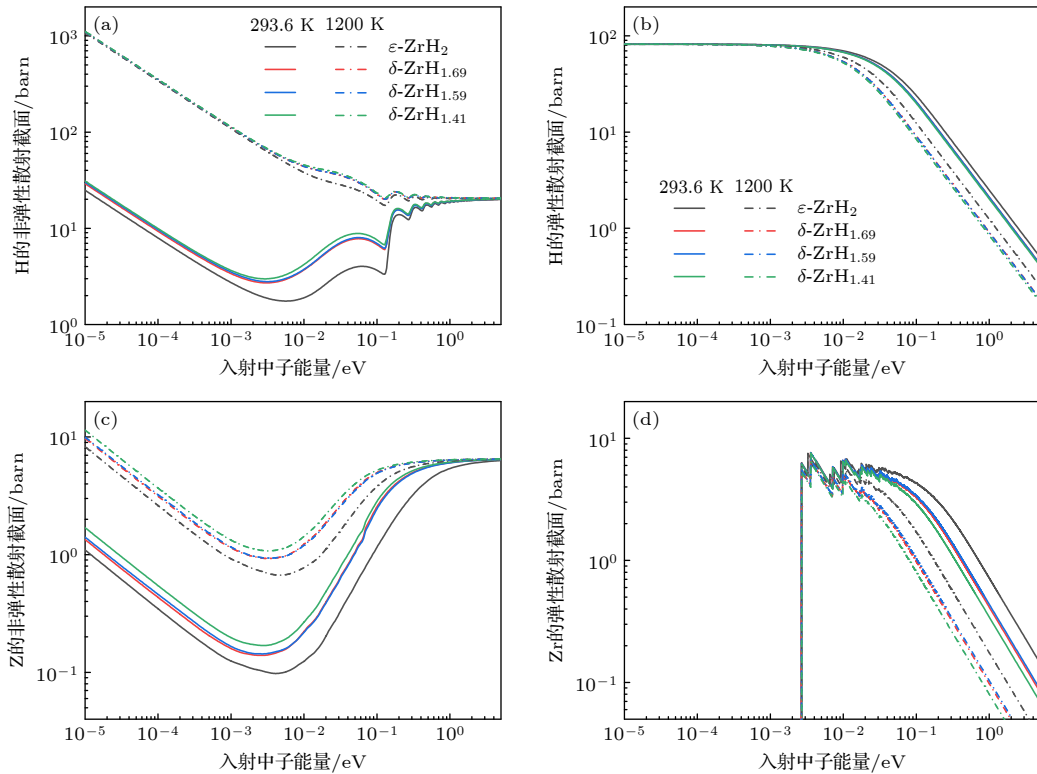


图 4 不同氢含量下 ZrH_x 的热散射截面 (a) 氢的非弹性散射截面; (b) 氢的非相干弹性散射截面; (c) 锆的非弹性散射截面; (d) 锆的相干弹性散射截面

Fig. 4. Thermal scattering cross sections of ZrH_x with different hydrogen contents: (a) inelastic scattering cross section of H; (b) incoherent elastic scattering cross section of H; (c) inelastic scattering cross section of Zr; (d) coherent elastic scattering cross section of Zr.

子态密度的差异; 图 4(d) 为 Zr 的相干弹性散射截面, 计算输入参数为声子态密度、晶格参数、原子位置等, 这些参数由于氢含量变化产生差异, 从而影响所计算的相干弹性散射截面.

图 5 展示了 293.6 K 和 1200 K 下不同氢含量 YH_x 的热散射截面. 随着温度的升高, 图 5(a), (c) 中 H 和 Y 的非弹性散射截面增大, 图 5(b), (d) 中 H 和 Y 的弹性散射截面减少. 此外, 随氢含量变化, δ 相 YH_x 热散射截面发生变化, 并且体现出规律性: 随着氢含量减小, 非弹性散射截面增大, 弹性散射截面减小. 由图 5 可见, 由于在相同 δ 相下不同氢含量导致的声子态密度等参数的差异, 各个化学计量下 YH_x 中 H 和 Y 的热散射截面存在偏差.

图 6 和图 7 分别展示了 293.6 K 和 1200 K 下, ZrH_x 中 H 和 YH_x 中 H 在入射能量为 0.232 eV, 散射角为 60° 时的双微分散射截面. 293.6 K 下 ZrH_x 中 H 的双微分散射截面主要出现了两个峰的特征区域, 分别为在出射中子能量为 0.09 eV

附近出现的非弹性散射峰和在出射中子能量为 0.232 eV 的准弹性散射峰. 对于 293.6 K 下 YH_x 中 H 的双微分散射截面, 除了 0.11 eV 附近的非弹性散射峰以及 0.232 eV 的准弹性散射峰外, 还在 0.002 eV 和 0.035 eV 处存在较小的非弹性散射峰. 由于晶体结构的差异, 可以看到不同氢含量下 H 的双微分散射截面出现了偏离, 其中没有 H 原子空位的化学计量氢化物 (H/Y 或 H/Zr = 2) 中 H 的双微分散射截面与亚化学计量氢化物中 H 的双微分散射截面间可以观察到较为明显的差异.

由图 6(b) 和图 7(b) 所示, 温度升高至 1200 K 后, ZrH_x 和 YH_x 中 H 的双微分散射截面在 293.6 K 下的两个主要峰均发生了展宽, 伴随着峰值下降; 同时, 一些在 293.6 K 下特征不明显的非弹性散射峰得到了增强, 例如: ZrH_x 中 H 原子在出射中子能量为 0.37 eV 处的非弹性散射峰得到了增强. 在 1200 K 下仍能观察到由于氢含量变化引起的 H 原子双微分散射截面差异, 其中化学计量 ZrH_2 和 YH_2 相对于亚化学计量 ZrH_x 和 YH_x 的差异最为明显.

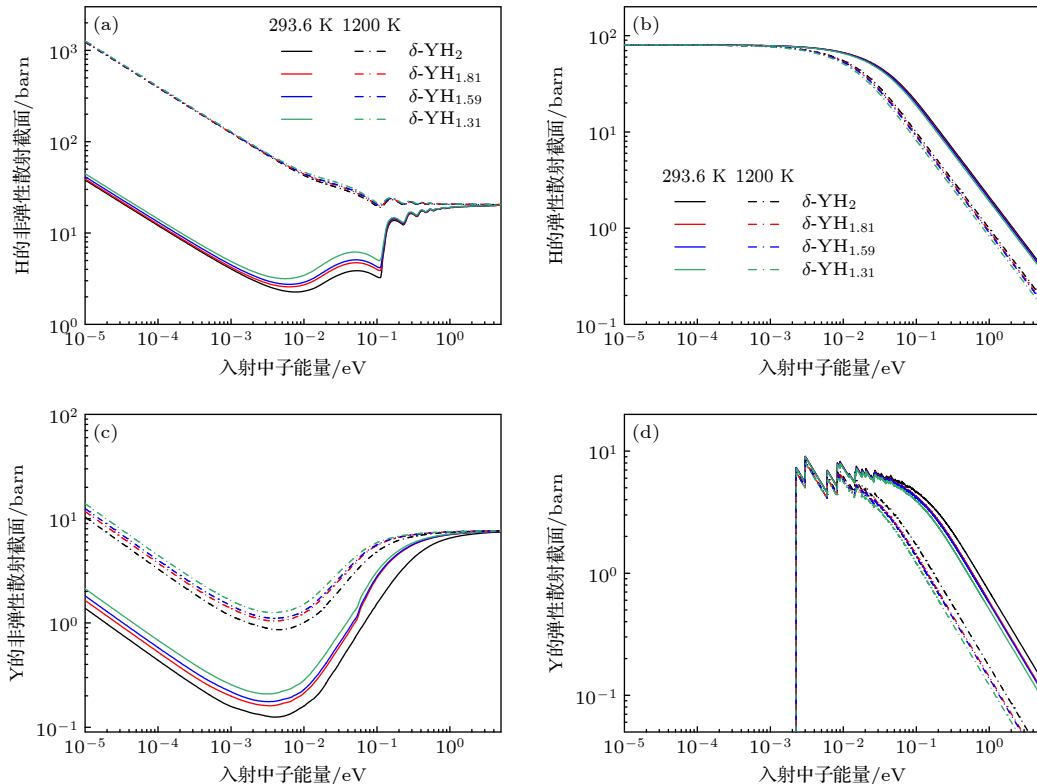


图 5 不同氢含量下 YH_x 的热散射截面 (a) 氢的非弹性散射截面; (b) 氢的非相干弹性散射截面; (c) 钇的非弹性散射截面; (d) 钇的相干弹性散射截面

Fig. 5. Thermal scattering cross sections of YH_x with different hydrogen contents: (a) Inelastic scattering cross section of H; (b) incoherent elastic scattering cross section of H; (c) inelastic scattering cross section of Y; (d) coherent elastic scattering cross section of Y.

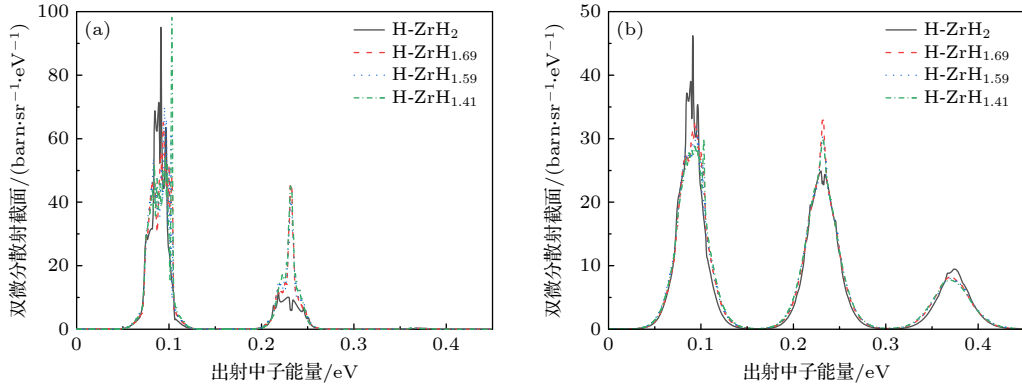


图 6 不同氢含量 ZrH_x 中 H 的双微分散射截面 (a) 293.6 K; (b) 1200 K

Fig. 6. Double differential scattering cross sections of H in ZrH_x with different hydrogen contents: (a) 293.6 K; (b) 1200 K.

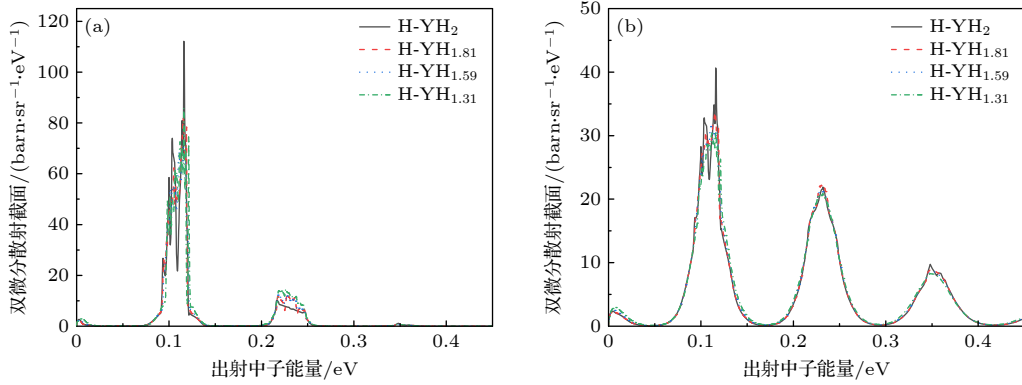


图 7 不同氢含量 YH_x 中 H 的双微分散射截面 (a) 293.6 K; (b) 1200 K

Fig. 7. Double differential scattering cross sections of H in YH_x with different hydrogen contents: (a) 293.6 K; (b) 1200 K.

表 1 ICT003 和 ICT013 系列基准题有效增殖系数计算结果

Table 1. The calculated effective multiplication factor for the ICT003 and ICT013 benchmarks.

基准题序号	ZrH _{1.59}			ZrH ₂		ZrH _{1.69}		ZrH _{1.41}	
	k_{eff}	k_{eff}	偏差/pcm	k_{eff}	偏差/pcm	k_{eff}	偏差/pcm	k_{eff}	偏差/pcm
ICT003_1	1.00308	1.00205	-103	1.00375	67	1.00412	104		
ICT003_2	1.00791	1.00697	-94	1.00866	75	1.00864	73		
ICT013_1	1.01204	1.01194	-10	1.01263	59	1.01274	70		
ICT013_2	1.01189	1.01167	-22	1.01256	67	1.01272	83		

为了量化不同氢含量对宏观临界计算的影响, 基于本文得到的不同氢含量氢化物的 TSL, 利用 NECP-Atlas 制作了蒙特卡罗程序使用 ACE 格式的热散射数据库. 采用蒙特卡罗程序 NECP-MCX^[29] 对国际临界安全基准题 (International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project, ICSBEP)^[30] 中的 IEU-COMP-THERM-003 (ICT003), IEU-COMP-THERM-013 (ICT013) 和 HEU-COMP-MIXED-003 (HCM003) 系列含氢化锆基准题进行计算, 分析 TSL 数据库对反应堆有效增殖系数 k_{eff} 的影响. 除 TSL 数据, 计算使用的中子反应截面数据来自

ENDF/B-VIII.1.

表 1 给出了采用不同氢含量 ZrH_x 的 TSL 计算的 ICT003 和 ICT013 系列基准题的有效增殖系数 k_{eff} . 由于 ICT003 及 ICT013 系列基准题模型中氢化锆的 H/Zr 分别为 1.6 和 1.58, 因此选取 $ZrH_{1.59}$ 的结果作为标准结果分析了基于其他氢含量 TSL 数据计算的 k_{eff} 的偏差, 其中使用 $ZrH_{1.41}$ 和 ZrH_2 的 TSL 数据计算的 ICT003_1 的 k_{eff} 偏差分别为 104 pcm 和 -103 pcm.

表 2 给出了采用不同氢含量 ZrH_x 的 TSL 数据计算的 HCM003 系列基准题的有效增殖系数 k_{eff} .

表 2 HCM003 系列基准题有效增殖系数计算结果
Table 2. The calculated effective multiplication factor for the HCM003 benchmarks.

基准题序号	ZrH ₂	ZrH _{1.69}		ZrH _{1.59}		ZrH _{1.41}	
	k_{eff}	k_{eff}	偏差/pcm	k_{eff}	偏差/pcm	k_{eff}	偏差/pcm
HCM003_1	0.99760	0.99673	-87	0.99764	4	0.99705	-55
HCM003_2	0.99798	0.99692	-106	0.99776	-22	0.99686	-112
HCM003_3	0.99778	0.99685	-93	0.99745	-33	0.99689	-89
HCM003_4	0.99818	0.99718	-100	0.99784	-34	0.99693	-125
HCM003_5	0.99838	0.99691	-147	0.99789	-49	0.99707	-131
HCM003_6	0.99795	0.99678	-117	0.99741	-54	0.99705	-90

该基准题模型中氢化锆的 $H/Zr = 2$, 因此选取 ZrH_2 的结果作为标准结果分析了基于其他氢含量 TSL 数据计算的 k_{eff} 的偏差, 其中, 采用 $ZrH_{1.69}$ 的 TSL 数据计算的 HCM003_5 基准题的 k_{eff} 相比标准结果的偏差最大, 为 -147 pcm.

5 结 论

本文以氢化锆和氢化铪作为研究对象, 通过建立不同亚化学计量氢化物的准随机结构, 基于晶格动力学模拟获得热中子散射律数据计算所需的基础输入参数, 利用核数据处理软件 NECP-Atlas 计算得到了不同亚化学计量氢化物热散射律数据及热散射截面, 分析了氢含量对氢化锆和氢化铪热散射截面的影响, 主要结论如下: 相同晶相下, 不同亚化学计量的氢化物晶体中 H 原子空位数量及位置不同, 从而导致声子态密度等参数的差异, 对热散射截面造成差异; 随着氢含量的增大, 氢化锆存在由 δ 相到 ϵ 相的转变, 晶相变化引起的热散射截面差异显著大于相同晶相下氢含量变化引起的截面差异.

针对含氢化锆的临界安全基准题, 分析了基于不同氢含量获得的热散射律数据对反应堆有效增殖系数的影响. 对于使用 $ZrH_{1.59}$ 的 ICT003 及 ICT013 系列基准题, 采用其他氢含量的热散射律数据计算结果的最大偏差为 104 pcm; 对于使用 ZrH_2 的 HCM003 系列基准题, 采用其他氢含量的热散射律数据计算结果的最大偏差为 147 pcm.

数据可用性声明

本文的关联数据可以在科学数据银行数据库 <https://www.doi.org/10.57760/sciencedb.j00213.00179> 中访问获取.

参考文献

- [1] Handbook on the Material Properties of Yttrium Hydride for High Temperature Moderator Applications, Hu X X, Wang H, Linton K, Le Coq A, Terrani K A <https://www.osti.gov/servlets/purl/1808171/> [2021-7-15]
- [2] Paramonov D V, El-Genk M S 1994 *Nucl. Technol.* **108** 157
- [3] Evans J A, Sweet R T, Medvedev P G, Wagner A R, Parisi C, Lange T L, Perez E, Rice F, Jue J F, Woolstenhulme E, Arafat Y 2024 *J. Nucl. Mater.* **598** 25
- [4] Snój L, Zerovnik G, Trkov A 2012 *Appl. Radiat. Isotopes* **70** 483
- [5] Betzler B R, Ade B J, Jain P K, Wysocki A, Chesser P C, Kirkland W M, Cetiner M S, Bergeron A, Heidet F, Terrani K 2022 *Nucl. Sci. Eng.* **196** 1399
- [6] Mehta V, Vogel S, Kotlyar D, Cooper M 2022 *Metals* **12** 199
- [7] Wang X, Tang M, Jiang M X, Chen Y C, Liu Z X, Deng H Q 2024 *Chin. Phys. B* **33** 076103
- [8] Mehta V K, Vogel S C, Shivprasad A P, Luther E P, Andersson D A, Rao D V, Kotlyar D, Clausen B, Cooper M W D 2021 *J. Nucl. Mater.* **547** 152837
- [9] ENDF-6 Formats Manual, Brown D A <https://www.mndc.bnl.gov/endfdocs/ENDF-102-2023.pdf> [2023-9-28]
- [10] Tang Y Q, Zu T J, Yi S Y, Cao L Z, Wu H C 2020 *Annals of Nuclear Energy* **153** 108044
- [11] Squires G L 1996 *Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering* (Massachusetts: Courier Corporation) p30
- [12] Zu T J, Tang Y Q, Wang L P, Cao L Z, Wu H C 2021 *Ann. Nucl. Energy* **161** 108489
- [13] Wang L P, Wan C H, Cao L Z, Wu H C, Sjöstrand H 2021 *Ann. Nucl. Energy* **151** 107920
- [14] Švajger I, Fleming N, Hawari A, Laramée B, Noguere G, Snój L, Trkov A 2025 *Nucl. Eng. Technol.* **57** 103834
- [15] Mehta V K, Cooper M W D, Wilkerson R B, Kotlyar D, Rao D V, Vogel S C 2021 *Nucl. Sci. Eng.* **195** 563
- [16] Mehta V K, Rehn D A, Olsson P A T 2024 *J. Nucl. Eng.* **5** 330
- [17] Trainer A, Forget B, Holmes J, Wormald J, Zerkle M 2025 *Ann. Nucl. Energy* **212** 111034
- [18] Wormald J, Zerkle M, Holmes J 2021 *J. Nucl. Eng.* **2** 105
- [19] Zerkle M L, Holmes J C, Wormald J L 2021 *EPJ Web Conf.* **247** 09015
- [20] Ge Z G, Xu R R, Wu H C, Zhang Y, Chen G C, Jin Y L, Shu N C, Chen Y J, Tao X, Tian Y, Liu P, Qian J, Wang J M, Zhang H Y, Liu L L, Huang X L 2020 *EPJ Web Conf.* **239** 09001
- [21] Zu T J, Wu C Y, Feng H, Ma Y T, Cao L Z, Wu H C, Tang Y Q 2024 *Prog. Nucl. Energy* **177** 105420
- [22] Placzek G 1952 *Phys. Rev.* **86** 377

- [23] Coherent Scattering Law for Polycrystalline Beryllium, Borgonovi G M <https://www.osti.gov/servlets/purl/4049796> [1969-5-16]
- [24] Fleming N C 2021 *Ph. D. Dissertation* (North Carolina: North Carolina State University)
- [25] Jain A, Ong S P, Hautier G, Chen W, Richards W D, Dacek S, Cholia S, Gunter D, Skinner D, Ceder G, Persson K A 2013 *APL Mater.* **1** 011002
- [26] Kresse G, Furthmüller J 1996 *Comput. Mater. Sci.* **6** 15
- [27] Gonze X, Lee C 1997 *Phys. Rev. B* **55** 10355
- [28] Gajdos M, Hummer K, Kresse G, Furthmüller J, Bechstedt F 2006 *Phys. Rev. B* **73** 045112
- [29] He Q M, Zheng Q, Li J, Wu H C, Shen W, Cao L Z, Liu Z Y, Xu J L 2021 *Ann. Nucl. Energy* **151** 107978
- [30] Briggs J B, Scott L, Nouri A 2003 *Nucl. Sci. Eng.* **145** 1

SPECIAL TOPIC—Thematic data in nuclear physics: Experimental, theoretical and applied research

Calculation and analysis of thermal scattering law data of sub-stoichiometric metal hydrides*

MA Yutu ZU Tiejun[†] WU Hongchun CAO Liangzhi

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

(Received 13 July 2025; revised manuscript received 20 August 2025)

Abstract

Metal hydrides are promising moderator materials in advanced reactors, where their thermal neutron scattering cross sections significantly affect the accuracy of reactor design. This study uses special quasi random structure (SQS) and first-principles lattice dynamics methods to calculate parameters such as the phonon densities of states of sub-stoichiometric zirconium hydride (ZrH_x) and yttrium hydride (YH_x). Based on these parameters, thermal scattering law (TSL) data for sub-stoichiometric hydrides are generated using the nuclear data processing code NECP-Atlas. The influences of hydrogen content on the thermal scattering cross sections of hydrides and the effective multiplication factor (k_{eff}) values of critical assemblies are analyzed. The result shows that variations in hydrogen content within hydrides lead to differences in thermal scattering cross sections, consequently affecting the neutron transport calculations of nuclear reactor. For the ICT003 and ICT013 benchmarks loaded with ZrH_x (with $H/Zr \approx 1.6$), using the TSL data derived from ZrH_x with other hydrogen content results in a maximum deviation of 104 pcm in k_{eff} . For the HCM003 benchmarks loaded with ZrH_2 , the use of TSL from ZrH_x with other hydrogen content leads to a maximum deviation of 147 pcm in k_{eff} .

Keywords: zirconium hydride, yttrium hydride, thermal scattering law data, thermal neutron scattering cross section

PACS: 28.20.Ka, 28.20.Cz, 63.20.D-, 88.30.rd

DOI: 10.7498/aps.74.20250928

CSTR: 32037.14.aps.74.20250928

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12135019) and the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2022YFB1902600).

[†] Corresponding author. E-mail: tiejun@mail.xjtu.edu.cn

亚化学计量金属氢化物热散射律数据计算分析

马宇图 祖铁军 吴宏春 曹良志

Calculation and analysis of thermal scattering law data of sub-stoichiometric metal hydrides

MA Yutu ZU Tiejun WU Hongchun CAO Liangzhi

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 222801 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250928

CSTR: 32037.14.aps.74.20250928

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250928>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

中子诱发 ^{52}Cr 非弹性散射截面测量

Neutron-induced inelastic scattering cross-section measurement of ^{52}Cr

物理学报. 2025, 74(7): 072901 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241660>

稀土含氧氢化物光致变色薄膜研究现状

Current research status of rare earth oxygenated hydride photochromic films

物理学报. 2022, 71(21): 218101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221046>

中子散射技术在Zintl相化合物热导率研究中的应用

Application of neutron scattering to studying low lattice thermal conductivity of Zintl phase compounds

物理学报. 2025, 74(1): 017301 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241163>

氧化钪(Sc_2O_3)的热漫散射强度解析

Analysis of thermal diffuse scattering intensity of scandium oxide (Sc_2O_3)

物理学报. 2024, 73(6): 063401 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231241>

超导三元氢化物 CaYH_{12} 电子及空穴掺杂调控的第一性原理研究

First-principles study of regulation of electron and hole doping in superconducting ternary hydride CaYH_{12}

物理学报. 2025, 74(13): 137401 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250180>

Li-Y-H三元氢化物的结构和稳定性研究

Structure and stability of possible new Li-Y-H ternary hydrides

物理学报. 2022, 71(1): 017401 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20210824>