

离线测量钚快中子裂变反应率方法*

冯松¹⁾ 刘荣^{1)†} 鹿心鑫¹⁾ 羊奕伟¹⁾²⁾ 王玫¹⁾ 蒋励¹⁾ 秦建国¹⁾

1)(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621900)

2)(清华大学工程物理系, 北京 100084)

(2014年1月5日收到; 2014年4月11日收到修改稿)

钚快中子裂变反应率是钚铀燃料循环中的重要数据. 为了测量基于聚变-裂变混合能源堆包层概念设计的钚样品在宏观中子学装置中的钚快中子裂变数据, 发展了钚快中子裂变率的离线活化 γ 测量方法. 通过测量 ^{232}Th 裂变碎片 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 的 β 衰变产物 ^{85}Rb 发射的151.16 keV特征 γ 射线, 并结合钚裂变产额数据, 获得了钚样品装置中 ^{232}Th 裂变反应率的分布. 详细介绍了此方法的原理和影响因素, 并利用14 MeV的D-T中子源在贫铀球壳中开展了校验实验, 实验不确定度为5.3%—5.5%. 采用MCNP5程序和ENDF/B-VI及ENDF/B-VII数据库模拟计算的结果与实验结果在实验不确定度内基本符合, 这证明该方法能够有效地模拟装置中 ^{232}Th 裂变反应率.

关键词: 钚, 裂变率, 离线测量

PACS: 25.85.Ec, 28.20.-v, 28.41.Ak, 25.85.-w

DOI: 10.7498/aps.63.162501

1 引言

钚铀循环因其巨大的原料储量和较高的燃料增殖率得到了越来越多的重视, 含钚反应堆设计在先进核能体系中具有基础科学意义^[1]. 钚铀燃料循环中钚核素的数据是中子学设计计算中的关键点, 其准确性决定了反应堆物理设计的有效性. 钚的裂变反应率是检验钚铀循环物理设计中裂变和中子增殖情况的重要参数, 因此, 钚核裂变数据的可靠性需要通过积分中子学实验进行检验. 然而, 目前在该方面开展的校验工作比较缺乏, 必须发展和改进钚裂变积分中子学参数实验技术. 本文参考聚变-裂变混合能源堆包层概念设计^[2], 构建了钚样品装置, 并开展了钚裂变反应率的活化离线测量方法研究, 可为获取真实准确的实验数据提供技术支持.

目前, 比较成熟的测量钚裂变相关参数的方法是采用裂变室或相应探测器在线测量. Garlea

等^[3]采用钚裂变室测量了14.7 MeV能量下钚的裂变反应截面, 实验不确定度为4.65%. Gold等^[4]采用固体径迹计数器测量了应用于核反应堆和临界数据分析的钚裂变反应率, 在反应堆中开展实验, 实验不确定度在3%以内. 利用在线技术测量钚裂变反应率的优点是精度高、技术相对成熟, 但是其对设备的参数要求高、价格昂贵且不适合于模拟装置内的测量. 这是因为在模拟装置中, 若使用裂变室测量钚裂变反应率的分布, 裂变室自身结构材料的引入将会改变模拟装置本身的结构, 而几乎所有的在线测量方法都将对模拟装置结构层产生影响. 离线 γ 测量方法是指在模拟装置中放置不改变装置结构及物理设计的钚样品, 离线测量装置对某些裂变碎片发射的特征 γ 射线进行计数, 从而计算出钚裂变反应率. 因此, 离线 γ 测量方法是一种高效、高精度的方法. Anderl和Harker^[5]通过测量裂变碎片 ^{140}Ba 和 ^{140}La 发射的特征 γ 射线计算耦合快堆测量装置堆中 ^{232}Th 的平均裂变截面, 实验不确定度为5%; Adam等^[6]利用散裂源在石墨

* 国家自然科学基金(批准号: 91226104)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: liurongzy@163.com

块装置上测量了多种裂变碎片 (^{85m}Kr , ^{99}Mo , ^{131}I , ^{133}Xe , ^{135}Xe , ^{141}Ce 等) 发射的特征 γ 射线, 从而计算得到石墨块中 ^{232}Th 裂变反应率分布, 实验不确定度约为 13.6%. 然而, 对于裂变碎片的选取, 不仅要求碎片的衰变特征峰分支比大且没有干扰, 还需要裂变碎片在本装置中的裂变产额尽量大且裂变碎片产额的测量不确定度小, 以降低实验的不确定度. 目前对 ^{232}Th 裂变碎片产额的测量研究较少, 实验不确定度相对较大. Glendenin 等 [7] 测量了 ^{232}Th 在 2.0, 3.0, 4.0, 5.9, 6.4, 6.9, 7.6 和 8.0 MeV 等 8 个单能中子照射下约 40 种裂变碎片的产额, 不同的裂变碎片测量产额的实验不确定度不等, 部分裂变碎片的实验不确定度达到 20% 以上. 而在 England 和 Rider [8] 对多种核素裂变产额数据的评估报告中, 只给出了在两个能量段内 ^{232}Th 的裂变产额数据以及裂变碎片质量数的分布, 并没有给出具体的核素. 国际原子能机构 (IAEA) 对裂变产额的数据评价文件 [9] 主要参考的是 England 和 Rider [8] 得到的结果. 为了研究 ^{232}Th 的增殖嬗变, 近期对钍裂变碎片产额的研究已集中在高能段并偏向于模拟计算 [10]. 然而, 文献 [6] 中根据不同裂变碎片得到的同一位置的 ^{232}Th 裂变反应率相差很大 (3%—35.7%). 对于不同的中子源和宏观装置, 选取的裂变碎片有所区别, 碎片产额的研究结果也不同. 对于聚变-裂变混合堆包层的模拟装置, 有关钍裂变反应率测量的相关工作作者尚未见到报道. 因此, 有必要确定待测量的裂变碎片, 并发展基于该碎片的测量钍快中子裂变反应率的离线 γ 方法, 从而为聚变-裂变混合堆包层模拟装置中钍裂变反应率的测量提供技术支持.

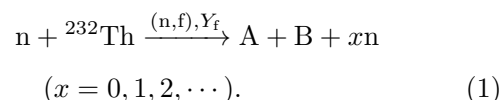
基于 14 MeV 的 D-T 中子发生器, 本文发展了在宏观中子学装置中离线测量钍快中子裂变反应率的方法. 为了校验钍铀燃料循环中钍核素的增殖情况, 我们已开发了钍俘获率的离线 γ 测量方法 [11]. 在此基础上, 针对活化法测量钍裂变反应率需涉及相应装置下裂变碎片选取的特点, 本文详细分析了现有中子源强下钍样品装置中钍的裂变碎片, 选取 ^{85m}Kr 作为待测量裂变碎片, 建立了钍裂变反应率的离线 γ 测量方法. 为了校验该方法的可靠性, 在基于贫铀球壳的钍样品装置中开展了钍裂变反应率的测量实验, 并采用 MCNP5 程序和 ENDF/B-VI 及 ENDF/B-VII 数据库对实验装置进行了模拟计算, 实验结果与模拟结果符合较好, 表

明本方法适用于聚变-裂变混合能源堆包层模拟装置中钍快中子裂变反应率的测量.

2 测量原理

2.1 钍裂变反应

自然界中, 钍基本上都以 ^{232}Th 的形式存在. 对于不同能量的入射中子, 钍核素与中子相互作用发生裂变反应的几率不同, 各裂变反应道对应的裂变碎片也不相同. 本文中, ^{232}Th 裂变反应率是指一个源中子与 ThO_2 活化片中一个 ^{232}Th 核子发生裂变反应的几率. 若设中子与 ^{232}Th 发生裂变反应并按产额 Y_f 生成裂变碎片 A 和 B, 则该裂变过程可由下式表示:



采用中子活化离线 γ 法测量 ^{232}Th 裂变反应率, 即通过测量裂变碎片 A 或 B 发射的特征 γ 射线计数来确定相应碎片的数目, 然后再通过 ^{232}Th 裂变产生该碎片的产额推算出 ^{232}Th 裂变反应率. 但是, 由于测量装置中中子能谱差异很大, 不同研究机构选择的裂变碎片不一定相同. 相对于反应堆和散裂中子源, 涉及聚变-裂变混合堆包层的积分中子学实验一般在中子产额为 10^{10} s^{-1} 数量级的 D-T 中子发生器上展开, 并且宏观装置的材料涉及 Th、贫铀以及聚乙烯等, 因此, 必须有针对性地选择待测量的裂变碎片.

2.2 裂变碎片选取及分析

^{232}Th 裂变反应生成的碎片种类多样, IAEA 的钍数据合作研究计划总结报告 [9] 指出, 对于钍的裂变反应碎片, 已有约 70 种核素的产额数据作为参考值被引用. 目前, 对于 ^{232}Th 裂变碎片的产额分布测量, 仅有 3 个数据库在部分能量段展开了实验测量并进行了评价 (表 1). 这里, F 代表裂变中子谱; H 代表平均能量为 14.7 MeV 的高能中子谱; ENDF/B-VI 是美国核数据中心评价的第六代核数据库, 包含了多种钍裂变碎片的产额测量数据, 对未测量的产额进行了修正并建立了评价模型; UKFY2/3 是英国评价的第二、第三代核数据库; CENDL 是中国评价的核数据库.

所选择的测量碎片必须满足以下条件: 具有较高的裂变产额和较强的特征 γ 射线, 且产额和特征 γ 射线的分支比不确定度尽量小; 半衰期不能太短; 所测量的特征 γ 峰附近不能有其他 γ 射线和本底干扰.

表1 ^{232}Th 裂变产额测量及评估情况

	ENDF/B-VI	UKFY2/3	CENDL
F	✓	✓	✓
H	✓	✓	—

将 ThO_2 活化片放置在D-T中子发生器靶头位置照射. 通过分析相关文献中已被测量的钍裂变碎片的衰变情况发现: ^{140}Ba , ^{140}La 和 ^{131}I 由于计数率太弱而无法测量; ^{99}Mo , ^{133}Xe 和 ^{141}Ce 不仅计数率弱, 还伴有较强的本底或其他射线的干扰; ^{135}Xe 衰变发射的249.8 keV的 γ 射线虽然可测, 但是核子数同为135的 ^{135}I 也是钍裂变常用的参考碎片, 而England和Rider^[8]给出的产额数据是以碎片的质量数为变化量, 因此不能准确确定 ^{135}I 和 ^{135}Xe 各自所占的比例. 虽然Chouak等^[12]测量了 ^{135}I 在14.7 MeV能量下的裂变产额数据, 但是其裂变产额和分支比的不确定度很大, 并且在钍样品照射后的 γ 能谱中特征峰计数率很小, 而 ^{135}I 半衰期(6.58 h)不长, 不利于对多个活化片的长时间测量. $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 通过半衰期为4.48 h的 β 衰变产生 ^{85}Rb 并发射151.16 keV的特征 γ 射线, 冷却一段时间后, 该特征峰明显且无干扰, 射线的分支比为^[7]75.5% \pm 0.8%, 不确定度较小. 对测量 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 裂变产额的研究较多, 文献^[8]给出了裂变中子谱和高能中子谱下 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 的平均产额数据, 分别为4.17%和4.50%. 钍样品装置中钍活化片内的中子能谱为经过慢化的连续谱, 采用离线 γ 法计算钍裂变反应率时必须选取在连续中子谱下测量过平均产额的裂变碎片, 因此可以选取符合条件的 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 作为离线 γ 法测量钍裂变反应率的裂变碎片. 此时, ^{232}Th 裂变反应过程为



在中子照射期间 ^{232}Th 会发生俘获、(n, 2n)等反应而生成其他重核, 这些重核会继续裂变, 从而对测量结果产生干扰, 使得测量值偏大. 考虑到这些影响是俘获截面和相应核裂变截面的综合结果, 从而对实验结果的影响极小, 可忽略.

2.3 离线分析方法

假设钍活化片中共含 N 个 ^{232}Th 核, 中子源强恒为 Φ , 钍裂变反应率为 R_f , 探测器对裂变产额为 y 的 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 发射的特征 γ 射线的探测效率为 η , 中子源照射时长为 T , 冷却时长为 τ , 测量时长为 t , ThO_2 样品的自吸收修正因子为 A . 由于(2)式中 ^{85}Rb 为稳定核素, 因此, 整个反应可看成一级衰变链, 此时探测器在 t 时间内探测到的计数 n 可由下式计算:

$$n = \int_0^T N\Phi R_{fy} e^{-\lambda(T-w)} \times e^{-\lambda\tau} (1 - e^{-\lambda t}) \varepsilon A \eta dw, \quad (3)$$

式中 w 为照射时间内的某个时刻.

采用分时计数系统记录中子发生器的中子产额变化, 系统每隔10 s记录一次金硅面垒探测器探测到的 α 粒子数, 然后通过产额转换系数 a 转换为该10 s内的中子产额. 因此, (3)式可改写为

$$n = \sum_i a N_{\alpha}(i) N R_{fy} e^{-\lambda(T-w_i)} \times e^{-\lambda\tau} (1 - e^{-\lambda t}) \varepsilon A \eta, \quad (4)$$

式中, $N_{\alpha}(i)$ 为照射时间内第 i 个10 s探测到的 α 粒子数, w_i 为第 i 个10 s的起始时间点. 为了便于实验不确定度的分析, 对比(3)和(4)式, 可得

$$\sum_i a N_{\alpha}(i) e^{-\lambda(T-w_i)} = \Phi \frac{1}{\lambda} (1 - e^{-\lambda T}). \quad (5)$$

由于中子源强不恒定, 因此, 实验监测计算得到的平均中子产额 $\bar{\phi}$ 不能作为 Φ 值代入计算. 设 K 为中子产额监测的瞬态修正因子,

$$K = \frac{\bar{\phi}}{\Phi}. \quad (6)$$

将(5)式代入(6)式, 则瞬态修正因子

$$\begin{aligned} K &= \frac{\bar{\phi}}{\Phi} \\ &= \frac{\bar{\phi}}{\Phi} \times \frac{\Phi \frac{1}{\lambda} (1 - e^{-\lambda T})}{\sum_i a N_{\alpha}(i) e^{-\lambda(T-w_i)}} \\ &= \frac{\bar{\phi} (1 - e^{-\lambda T})}{\lambda \sum_i a N_{\alpha}(i) e^{-\lambda(T-w_i)}} \\ &= \frac{\sum_i N_{\alpha}(i) (1 - e^{-\lambda T})}{\lambda T \sum_i N_{\alpha}(i) e^{-\lambda(T-w_i)}}. \end{aligned} \quad (7)$$

将(7)式代入(4)式, 有

$$n = \frac{\bar{\phi} \cdot NR_f y \varepsilon A \eta (1 - e^{-\lambda T}) e^{-\lambda \tau} (1 - e^{-\lambda t})}{\lambda K} \quad (8)$$

为了简化计算公式, 将与时间相关的计算量合并, 设 F 为时间因子,

$$F = \frac{(1 - e^{-\lambda T}) e^{-\lambda \tau} \cdot (1 - e^{-\lambda t})}{\lambda} \quad (9)$$

由于钍样品宏观装置中的能谱为连续能谱, 因此, 钍裂变碎片 ^{85m}Kr 的产额 y 不能采用单个能量点的测量值, 必须在计算钍样品内的中子能谱后再加权计算 ^{85m}Kr 的平均产额. 具体方法如下: 在钍裂变反应阈值能量以上, 按照文献 [8] 测量 ^{85m}Kr 产额所划分的裂变中子谱 (0.5—2 MeV) 和高能中子谱 (14—15 MeV) 两个能量区间, 2.0, 3.0, 4.0, 5.9, 6.4, 6.9, 7.6 和 8.0 MeV 等 8 个单能中子照射 ^{232}Th 时测量得到的 ^{85m}Kr 产额数据 [7] 以及文献 [10] 给出的在 9—11 MeV 能区下的 ^{85m}Kr 产额数据, 通过 MCNP5 程序模拟计算各活化片中这几个能区内的中子数在裂变阈值以上能区内的总中子数中所占的份额, 然后加权计算 ^{85m}Kr 的平均产额 \bar{y} . 由于中子与 ^{232}Th 发生裂变反应生成 ^{85m}Kr 时, 并不清楚伴随产生的其他碎片和中子数, 从而无法计算反应阈值, 通过观察测量 ^{232}Th 截面 [13] 并设定截面小于 0.1 mb 时不发生裂变反应, 可得到钍裂变反应阈值为 0.7 MeV.

将 (9) 式代入 (8) 式, 可得到钍裂变反应率 R_f 的计算式为

$$R_f = \frac{nK}{\bar{\phi}NF\bar{y}\varepsilon A\eta} \quad (10)$$

由于 (10) 式中各计算量的参数都可以通过测量和标准数据查阅得到, 因此可程序化快速计算出钍样品的裂变反应率.

3 实验

3.1 实验装置与测量仪器

为了校验活化离线 γ 法测量钍裂变反应率的可行性, 在一维贫铀球壳装置中开展了钍裂变反应率的测量实验. 前期在同一贫铀球壳装置中开展的铀相关反应率的测量和计算 [14] 表明, 在 14 MeV 中子照射下单质的贫铀介质中, 利用 MCNP5 程序和 ENDF/B-VI 数据库能够得到可靠的钍裂变反应率计算结果, 因此一维贫铀球壳可作为校验离线 γ 法

测量钍裂变反应率的装置. 校验实验装置如图 1 所示, 实验装置为内外半径分别为 131 和 300 mm 的贫铀球壳, 在径向对称位置有一个半径为 22 mm 的圆柱形测量孔道. 靶管由左侧通道伸入贫铀球壳, 通过调整装置使得球心与靶片中心重合 (距离偏移小于 5 mm). 钍样品为 ThO_2 粉末, 纯度为 99.5%, 封装在内半径为 8.5 mm 的圆形有机玻璃盒子内, 封装后的 ThO_2 粉末厚度约为 0.65 mm. 考虑钍的裂变反应为有阈反应以及 D-T 中子源强相对较弱, 因此, 将 ThO_2 样品放置在实验装置中靠近源的位置.

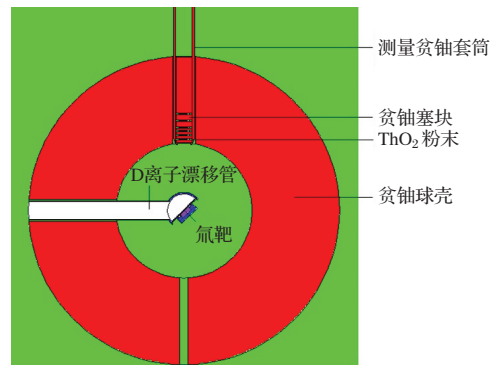


图 1 实验装置的中心竖截面示意图

使用 PD-300 中子发生器, 其产生的 D-T 中子的平均能量为 14.7 MeV. 中子由 D 离子轰击钍靶发生 D-T 反应产生, 在距离钍靶 50.8 cm 并与 D 离子的入射方向呈 178.2° 的位置安装金硅面垒半导体探测器, 通过测量 D-T 反应产生的伴随 α 粒子数来监测实验产生的中子产额 [15].

测量所用的 γ 谱仪是由美国 ORTEC 公司生产的 GEM60P 型高纯 Ge 探测器和 GammaVision 分析软件组成, 探头的灵敏体积为 250 cm³. 该谱仪在 1.33 MeV 处的能量分辨率为 1.87 keV, 相对探测效率为 [14] 60%. 由于 ^{85m}Kr 的半衰期较短, 为了增大探测效率, 实验样品均放置在探测器探头表面.

3.2 钍样品 γ 谱的测量

中子照射前, 测量了钍样品的 γ 能谱本底, 测量结果如图 2 (a) 所示. 照射结束后若只冷却较短时间, 则 151.16 keV 处将有一定的干扰 (图 2 (b)).

根据该干扰特征峰计数的变化可推算其半衰期, 通过查找相关核素数据并与相应核素的其他特征峰对比可知, 该干扰射线来自 ^{131}Te (半衰期 25.0 min). 由于 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 的半衰期为 ^{131}Te 半衰期的 10 倍, 因此可将 ^{131}Te 看作短半衰期核素, 待冷却约 2.5 h (6 个 ^{131}Te 半衰期) 后, 151.16 keV 能量的特征峰变得清晰, 测量结果如图 2 (c) 所示.

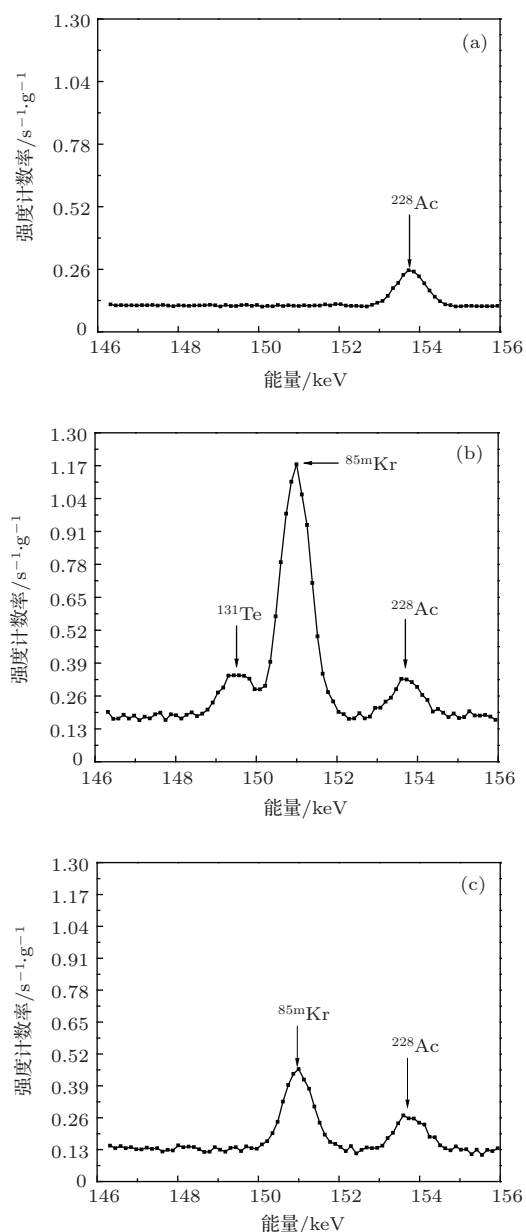


图2 中子照射前后钚样品的 γ 能谱 (a) 辐照前; (b) 照射结束 1 h; (c) 照射结束 2.5 h 后

3.3 实验结果

实验照射 23911 s, 平均中子产额 $\bar{\phi} = 7.52 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$. 为减小 ThO_2 粉末的自吸收, 将 ThO_2 粉末均匀摊开在直径为 32 mm 的圆形纸片上并

放置在探测器探头表面, 高纯 Ge 探测器对其的探测效率为 12.2%, ThO_2 粉末的自吸收因子为 0.815—0.841.

为了计算 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 的平均产额, 根据 ^{232}Th 的裂变反应阈值及裂变产额测量数据的能量范围, 选择 0.7—2 MeV 为裂变谱中子能区, 11—14.7 MeV 为高能中子能区, 其余能区的划分参见文献 [7, 10]. 以钚活化片内全部中子数进行归一化, 计算得到的各能段中子数所占比例列于表 2.

按照表 2 所列的各能区中子数所占比例, 计算在裂变阈值 (0.7 MeV) 以上区间, 各分能段中子数在阈值以上区间内的总中子数中所占的份额, 最后按照相应的产额评价价值加权计算各活化片上的 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 平均产额 \bar{y} , 计算结果为 4.31%—4.35%. 若将计算钚裂变反应率的 (10) 式中所涉及的参数全部展开分析, 可得到实验不确定度主要来自以下七方面: 一是计算中子平均产额 $\bar{\phi}$ 时, 使用伴随 α 粒子法测量得到的中子产额存在不确定度, 约为 2.5%; 二是刻度高纯 Ge 探测器对钚样品的探测效率 η 所引入的不确定度, 小于 1%; 三是钚样品自吸收修正因子 A 的不确定度, 小于 1%; 四是钚裂变碎片 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 产额的不确定度, 不同能区下评价的裂变产额数据为测量值, 其带有实验不确定度, 而且计算活化片内的中子能谱时会引入统计涨落, 总的不确定度约为 4.3%; 五是裂变碎片 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 的衰变产物发射的特征 γ 射线分支比的不确定度, 对于能量为 151.16 keV 的特征峰, 测量不确定度为 0.8% [7]; 六是样品中钚核子数 N 的不确定度 (主要由称量粉末重量的仪器精度和测量钚粉末中钚的含量所引入), 小于 0.5%; 七是统计能量为 151.16 keV 的特征峰总计数 n 时引入的统计涨落, 小于 1.5%.

另外, 前期的分析结果 [14] 表明可忽略钚样品距靶心的位置定位偏差以及靶心与贫铀球心的偏移. 因此, 根据 (10) 式计算得到的钚裂变反应率 R_f 和利用误差传递公式计算得到的, R_f 的不确定度一并列于表 3. 由上述不确定度分析可知, 要达到降低实验不确定度的目的, 首先应考虑降低 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 裂变产额的测量不确定度.

4 模拟计算

为了校验离线 γ 测量法测得的钚裂变反应率的准确性, 应用主流数据库对整个装置进行了模

拟计算. 将实验参数写入MCNP5程序中, 对钍裂变反应率进行模拟计算. 模型中同时还考虑了大厅、靶室、D离子漂移管道、测量套筒、冷却水管和ThO₂样品外侧的有机玻璃盒子等与实验相关的

因素, 计算程序中写入了中子源能量、角度的关联分布, 该分布通过DROSG-2000程序^[16]计算得到. 计算采用ENDF/B-VI和ENDF/B-VII数据库, 实验结果与模拟结果的对比如图3所示.

表2 活化片内各能段中子数所占的比例

中子能量/MeV	^{85m} Kr产额/%	距离靶心的距离/mm					
		138	146	154	162	174	187
< 0.7	0	0.708	0.722	0.732	0.745	0.758	0.774
0.7—2.0	4.17	0.149	0.147	0.147	0.144	0.142	0.138
2.0—3.0	4.76	0.030	0.029	0.029	0.026	0.026	0.023
3.0—4.0	4.27	0.015	0.015	0.014	0.014	0.014	0.013
4.0—5.9	4.08	0.014	0.014	0.013	0.013	0.012	0.011
5.9—6.9	5.51	0.003	0.003	0.003	0.003	0.003	0.003
6.9—8.0	6.21	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
8.0—9.0	4.91	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001
9.0—11.0	3.60	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001
11.0—14.7	4.50	0.077	0.067	0.058	0.052	0.042	0.036

表3 测量得到的钍裂变反应率及其不确定度

离靶心距离/mm	裂变反应率/10 ⁻²⁹	不确定度/%
138	22.50	5.33
146	18.90	5.33
154	16.30	5.37
162	13.60	5.44
174	11.40	5.47
187	8.75	5.41

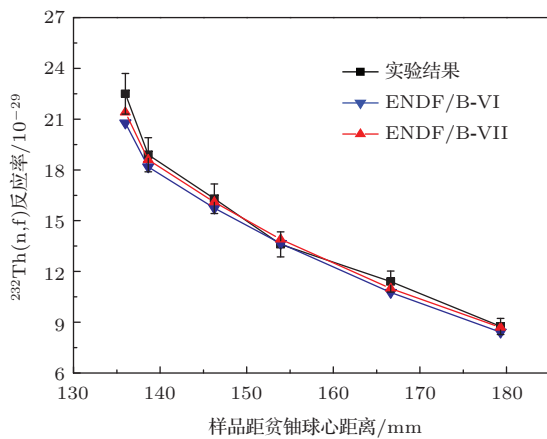


图3 钍裂变反应的实验结果与模拟结果的对比

²³²Th裂变反应率的计算值 $R_{f,C}$ 与²³²Th裂变反应率的实验值 $R_{f,E}$ 的比值如图4所示. 从

图4可以看出, ²³²Th裂变反应率实验结果与采用ENDF/B-VI和ENDF/B-VII数据库得到的模拟值的平均偏差分别约为4%和2%, 这在实验不确定度以内. 造成两者存在偏差的因素有很多, 如采用的裂变碎片^{85m}Kr产额、^{85m}Kr的 β 衰变产物⁸⁵Rb的特征射线分支比都是引用实验测量值, 不同测量手段的测量结果会引入系统误差; 计算²³²Th裂变成^{85m}Kr的平均中子产额时, 钍样品内的中子能谱为模拟值, 从而使得实验结果引入了计算中数据库选取带来的影响等. 从图4还可以看出, 不同数据库的钍截面数据也有差异, 且本文校验实验的实验

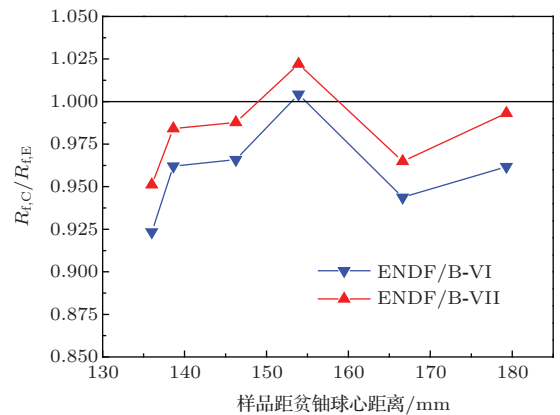


图4 ²³²Th裂变反应率的计算值 $R_{f,C}$ 与实验值 $R_{f,E}$ 的比值

值比模拟计算值总体偏大. 这还可能与计算中采用的数据库提供的钍截面数据有关, 需开展更深入的宏观中子学实验来提供数据支持.

5 结 论

利用活化法并结合裂变产额修正方法, 本文发展了钍快中子裂变反应率的离线 γ 测量技术. 基于贫化铀的钍样品实验装置, 通过测量 ^{232}Th 裂变碎片 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 的 β 衰变产物 ^{85}Rb 发射的151.16 keV能量 γ 特征峰, 选取已评价的 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 裂变产额数据, 获得了钍裂变反应率的径向分布, 实验不确定度为5.3%—5.5%. 将所获得的实验结果与利用MCNP5程序和ENDF/B-VI及ENDF/B-VII数据库得到的模拟计算结果进行了比较, 两者在实验不确定度范围内基本符合, 表明本文提出的钍快中子裂变反应率的离线测量方法是高效、可行的, 可用于聚变-裂变混合能源堆等含钍反应堆物理设计中的钍核素裂变反应数据的检验研究.

采用活化离线 γ 法测量钍快中子裂变反应率不影响模拟装置的整体性且精度较高, 但受限于裂变碎片的产额测量准确性. 本文将钍裂变成 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 的多能点产额测量值与计算得到的中子能谱加权平均, 产额的测量点较多地分布在0—14 MeV能区, 最大程度地减小了因产额的测量而带来的不确定度. 对于校验实验的测量结果, 可发展钍裂变室技术来开展深入的对比研究. 由于钍活化片上的中子能谱为计算值, 因而不能直接在含钍反应堆中应用本文方法, 目前的应用仅局限在含钍的宏观中子学模拟装置中, 用以开展钍裂变截面数据的校验研究, 期望未来能在钍基裂变堆中发展此活化离线 γ 方法.

参考文献

[1] Leng F H, Liu X P, Li Z X, Huang L G, Wang L, Wang H Y, Zhou L Y 2011 *Science Focus* **6** 6 (in Chinese) [冷伏海, 刘小平, 李泽霞, 黄龙光, 王林, 王海燕, 周丽英 2011 科学观察 **6** 6]

[2] Peng X J 2010 *J. Southwest Univ. Sci. Technol.* **25** 1 (in Chinese) [彭先觉 2010 西南科技大学学报 **25** 1]

[3] Garlea I, Miron C, Dobrea D, Roth C, Musat T, Rosu H N 1983 *Measurements of Integral Cross Sections at 14 MeV for the Following Reactions: ^{115}In (n, n'), ^{197}Au ($n, 2n$), ^{93}Nb ($n, 2n$), ^{27}Al (n, alfa), ^{56}Fe (n, p), ^{235}U (n, f), ^{239}Pu (n, f), ^{237}Np (n, f), ^{238}U (n, f) and ^{232}Th (n, f)* (Vienna: International Atomic Energy Agency) pp1–19

[4] Gold R, James H R, Lloyd S K, William Y M, William N M, Christopher C P, Robert L S 1988 *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* **14** 3

[5] Anderl R A, Harker Y D 1979 *Proceedings of the International Conference on Nuclear Cross Sections for Technology* (Washington: Government Printing Office) p1

[6] Adam J, Chitra B, Katovsky K, Kumar V, Majerle M, Pronskikh V S, Khilmanovich A M, Martsynkevich B A, Zhuk I V, Golovatiouk V M, Westmeier W, Solnyshkin A A, Tsoupko-Sitnikov V M, Potapenko A S 2011 *Eur. Phys. J. A* **47** 85

[7] Glendenin L E, Gindler J E, Ahmad I, Henderson D J, Meadows J W 1980 *Phys. Rev. C* **22** 152

[8] England T R, Rider B F 1994 *Evaluation and Compilation of Fission Product Yields* (Los Alamos: Los Alamos National Laboratory) LA-SUB-94-170

[9] International Atomic Energy Agency 2000 *Final Report of a Coordinated Research Project 1991–1996* (Vienna: International Atomic Energy Agency) IAEA-TECDOC-1168

[10] Vasily S 2010 *Acta Univ. Upsaliensis* **723** 58

[11] Yang Y W, Liu R, Yan X S 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 032801 (in Chinese) [羊奕伟, 刘荣, 严小松 2013 物理学报 **62** 032801]

[12] Chouak A, Embarch K, Berrada M 1995 *Appl. Radiat. Isot.* **46** 423

[13] International Atomic Energy Agency 2014 *Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR)* (Vienna: International Atomic Energy Agency)

[14] Yang Y W, Yan X S, Liu R, Lu X X, Jiang L, Wang M, Lin J F 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 022801 (in Chinese) [羊奕伟, 严小松, 刘荣, 鹿心鑫, 蒋励, 王玫, 林菊芳 2013 物理学报 **62** 022801]

[15] Liu R, Lin L B, Wang D L, Li Y J, Jiang L, Chen S H, Wang M, Yang K 1999 *Nuclear Electron. Detect. Technol.* **19** 428 (in Chinese) [刘荣, 林理彬, 王大伦, 励义俊, 蒋励, 陈素和, 王玫, 杨可 1999 核电子学与探测技术 **19** 428]

[16] Drosog M 2000 *DROSG-2000: Neutron Source Reactions* (Vienna: International Atomic Energy Agency)

Determination of thorium fission rate by off-line method*

Feng Song¹⁾ Liu Rong^{1)†} Lu Xin-Xin¹⁾ Yang Yi-Wei¹⁾²⁾
Wang Mei¹⁾ Jiang Li¹⁾ Qin Jian-Guo¹⁾

1) (*Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*)

2) (*Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China*)

(Received 5 January 2014; revised manuscript received 11 April 2014)

Abstract

Thorium fission reaction rate is an important datum in uranium-thorium fuel cycle. In order to measure the thorium fission rate on the thorium sample equipment which is set up by the conceptual design of the subcritical reactor and to check the thorium data, the off-line activation γ measurement method of thorium fission rate is developed. Combined with thorium fission yield data of $^{85\text{m}}\text{Kr}$, the ^{232}Th fission reaction rate distribution in thorium sample device can be obtained by measuring the 151.16 keV feature gamma rays emitted by fission fragment $^{85\text{m}}\text{Kr}$. Details of the principles and factors of this method are discussed, and the verification experiment is carried out on a depleted uranium shell of $R13.1/30.0$ cm with D-T neutrons. The relative uncertainty of experiment is 5.3%–5.5% for thorium fission reaction rates. The experiment is simulated using MCNP5 with ENDF/B-VI and ENDF/B-VII libraries, simulation results and experimental results accord well with each other within the experimental uncertainty, showing that this approach developed in this paper can work well for determining the thorium fission rate.

Keywords: thorium, fission rate, off-line measurements

PACS: 25.85.Ec, 28.20.-v, 28.41.Ak, 25.85.-w

DOI: [10.7498/aps.63.162501](https://doi.org/10.7498/aps.63.162501)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 91226104).

† Corresponding author. E-mail: liurongzy@163.com