

# 裂变核全套中子数据评价

陈国长<sup>1</sup>, 于保生<sup>1</sup>, 曹文田<sup>2</sup>, 唐国有<sup>2</sup>, 施兆民<sup>2</sup>, 段军锋<sup>1</sup>, 邹宇斌<sup>2</sup>, 葛智刚<sup>1</sup>

(1. 中国原子能科学研究院 核物理研究所, 北京 102413;

2. 北京大学 物理学院和核物理与核技术国家重点实验室, 北京 100871)

**摘要:** 裂变核全套中子评价数据对反应堆设计和安全运行、乏燃料少锕系核素嬗变率、嬗变系统及高燃耗反应堆设计提供重要的基础数据。文章对核数据分类、现行主要全套评价数据库及全套核数据评价方法进行阐述, 并对<sup>234</sup>U(n, f)和<sup>237</sup>Np(n, 2n)反应截面的实验数据进行评价。完成的裂变核全套中子数据整体满足用户需求, 比原评价结果有较明显改进。

**关键词:** 裂变核; 中子; 评价; 截面; 核数据

中图分类号: O571.54

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2010)02-0138-06

## Neutron Nuclear Data Evaluation for Actinide Nuclei

CHEN Guo-chang<sup>1</sup>, YU Bao-sheng<sup>1</sup>, CAO Wen-tian<sup>2</sup>, TANG Guo-you<sup>2</sup>,  
SHI Zhao-min<sup>2</sup>, DUAN Jun-feng<sup>1</sup>, ZOU Yu-bin<sup>2</sup>, GE Zhi-gang<sup>1</sup>

(1. China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275-41, Beijing 102413, China;

2. School of Physics & State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology,  
Peking University, Beijing 100871, China)

**Abstract:** The nuclear data for minor actinides with high accuracy are playing an important role in nuclear technology applications, including reactor design and operation, spent fuel cycle concepts, estimation of the amount of minor actinides in high burn-up reactors and the minor actinides transmutation. The classification of nuclear data and nuclear data library were described in this paper, and the procedure of neutron nuclear data evaluation was introduced. As an example, the evaluation of <sup>234</sup>U(n, f) and <sup>237</sup>Np(n, 2n) reaction experimental data were described. The fission nuclear data were updated and improved.

**Key words:** actinide nuclei; neutron; evaluation; cross section; nuclear data

中子全套评价数据(简称评价数据)是核数据中至关重要的部分, 而裂变核中子全套评价数据是整个中子评价数据库中的重要组成部分。国际上较为重要的五大中子全套评

价数据库分别为 ENDF/B<sup>[1]</sup>(美国)、JENDL<sup>[2]</sup>(日本)、JEFF<sup>[3]</sup>(欧洲)、BROND<sup>[4]</sup>(俄罗斯)和CENDL<sup>[5]</sup>(中国)。CENDL 中子评价库中共包含了 200 多个核素的全套中子评价数

据,其中包括 30 多个裂变核全套中子评价数据。这些裂变核包括对反应堆设计、安全运行等至关重要的 U 和 Pu 系列核素;同时,也包括对乏燃料少锕系核素嬗变率、嬗变系统设计及高燃耗反应堆设计中起重要作用的 Np 和 Am 系列核素的全套中子评价数据。

与其它核区的中子全套数据评价工作相比,除需评价一些相同的反应道截面和微分截面外,还需对裂变中子数、裂变截面、裂变谱和裂变缓发中子谱等进行评价。这些内容是裂变核数据评价的重点和难点。

在“十五”期间,完成的裂变核全套中子评价数据的核素包括 $^{232\sim 241}\text{U}(10)$ 、 $^{236\sim 239}\text{Np}(4)$ 、 $^{236\sim 246}\text{Pu}(11)$ 和 $^{240\sim 244,242\text{m}}\text{Am}(6)$ 等。首先,对有实验测量数据的裂变核进行更新评价,如 $^{233\sim 240}\text{U}$ 、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{241,242}\text{Am}$ 和 $^{238\sim 243}\text{Pu}$ 等一些重点核素,主要通过新的实验数据的搜集、筛选、分析和评价以及对原有实验数据的重新归一处理,并与理论模型分析相结合,增加双微分截面以及 $\gamma$ 产生数据等。其次,在总结前阶段评价工作的基础上,对无实验信息的核素进行有规律的分类,并与反应截面随质量数 $A$ 变化的基本规律等相结合,完成如 $^{232,241\sim 246}\text{U}$ 、 $^{236,237,244\sim 246}\text{Pu}$ 和 $^{236\sim 240,243\sim 246}\text{Am}$ 等核素全套数据的评价。

开展裂变核数据评价之前,对原评价中需改进之处进行总结,如角度微分截面在大角度可能会出现负值等。利用理论模型程序对原评价库中各裂变核素进行初步分析,一方面,为了检验模型计算中角分布是否会出现负值等问题;另一方面,评价工作者通过调节相关参数能很好地再现评价后的实验数据。在此期间,解决了由调节光学势参数过程所得的角分布与模型程序计算结果间不一致以及角分布出现负值等问题。同时,确定能谱出射与入射能点的取法、裂变谱的计算文档要求以及在新评价中加入 $\gamma$ 产生数据等信息。综合上述,再考虑宏观基准检验反馈对原评价数据的改进信息,确定本评价工作中所需解决的问题,主要是对重点核素有新的实验测量数据的评价、原评价数据中不合理之处的改进、无实验测量数据核素的评价方法研究等。

## 1 裂变核全套中子数据评价

在以往的评价工作中,主要注重对绝对实验测量数据的收集和评价,而在目前的工作中,更加注重收集以往易忽略的相对测量数据。相对测量实验中,由系统本身引入的不确定度能够较好地扣除或相互抵消,并可由最新的标准截面或推荐值将其转换成绝对量,然后再与绝对测量数据一起进行评价。对于绝对测量数据,更加注重对实验数据的分析,如根据目前最新标准截面、评价和衰变数据等信息,对其采取适当的归一和修正等处理;对修正后仍与其它实验数据分歧很大的数据,在最后推荐时将其权重适当地放低或仅作参考。此外,与其它实验数据或评价数据存在较大分歧的测量值,还需仔细分析实验测量量,如实验测量的剩余核是否处于同质异能态等情况,可较为准确地对实验数据进行修正与取舍,澄清实验数据间以及与评价数据间存在的分歧,最后得到可靠的评价数据。以 $^{234}\text{U}(n, f)$ 和 $^{237}\text{Np}(n, 2n)$ 反应截面实验数据评价为例,对最基本也是最重要的实验数据评价进行以下分析和阐述。

### 1.1 $^{234}\text{U}(n, f)$ 反应截面实验数据评价

早期 $^{234}\text{U}(n, f)$ 反应实验测量<sup>[7-10]</sup>几乎多集中在 MeV 能区,并以 $^{235}\text{U}(n, f)$ 作为监视器,其与评价数据的对比如图 1 所示。但不同实验室间的测量结果存在较大差异,如 6~10 MeV 测量值间分歧较大,且在 10 MeV 以上(除 14 MeV)能区则无实验数据。为了解决早期实验间

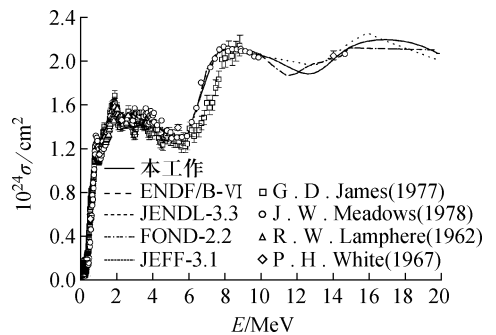


图 1  $^{234}\text{U}(n, f)$  反应截面评价数据与绝对实验测量数据对比

Fig. 1 Comparison of evaluated data with measured data for  $^{234}\text{U}(n, f)$  reaction

存在的矛盾,一些实验室在电子直线加速器飞行时间谱仪上采用有效阈法测量裂变反应截面,它的优点是不需知道高纯度裂变室中裂变材料的相对质量,也不需知道探测器的效率。

$^{234}\text{U}(n,f)$ 反应在快中子能区相对测量实验的简要信息列于表1。利用白光中子源及有效阈法在较宽的能区范围内测量得到大量的实验数据。特别是 J. W. Meadows<sup>[10-11]</sup>、J. W.

Behrens<sup>[12]</sup>、K. Kanda<sup>[13]</sup>和 A. A. Goverdovskii<sup>[14-15]</sup>等通过测量 $^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$ 裂变截面比,解决了0.15~10.7 MeV能区实验数据间存在的分歧。另外,在14 MeV附近,J. W. Meadows<sup>[11]</sup>与 P. H. White<sup>[7]</sup>的实验测量结果在不确定度范围内相一致。那么,对实验测量做适当的修正后,根据最新的 $^{235}\text{U}$ 裂变标准截面,将其转换成绝对量,并与理论分析结果、评价数据及绝对测量数据比对,如图2所示。

表1  $^{234}\text{U}$ 裂变截面相对测量实验数据

Table 1 Relative experimental data of  $^{234}\text{U}$  fission cross sections

时间	作者	$E_n/\text{MeV}$	探测器	相对反应
1977	J. W. Behrens <sup>[12]</sup>	0.15~33.7	裂变室	$^{235}\text{U}(n,f)$
1978/1988	J. W. Meadows <sup>[10-11]</sup>	0.6~9.99/14.7	电离室	$^{235}\text{U}(n,f)$
1986	K. Kanda <sup>[13]</sup>	0.51~6.98	裂变室	$^{235}\text{U}(n,f)$
1986	A. A. Goverdovskii <sup>[14]</sup>	16.02	电离室	$^{235}\text{U}(n,f)$
1987	A. A. Goverdovskii <sup>[15]</sup>	0.21~0.99/4.91~10.7	电离室	$^{235}\text{U}(n,f)$
1991	B. I. Fursov <sup>[16]</sup>	0.13~7.6	裂变室	$^{235}\text{U}(n,f)$

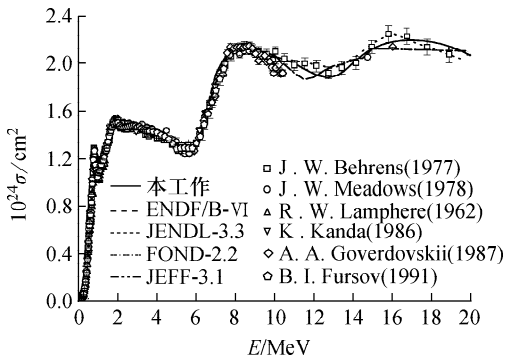


图2  $^{234}\text{U}(n,f)$ 反应截面评价数据与相对实验测量数据对比  
Fig. 2 Comparison of evaluated data with relative measured data for  $^{234}\text{U}(n,f)$  reaction

由图1、2可见,相对测量值间的一致性较好,且与评价数据及理论模型分析结果符合得较好。因此,对 $^{234}\text{U}(n,f)$ 反应截面的评价,主要是以相对和绝对测量数据为基础,并与理论模型分析相结合,对评价后的实验测量结果进行拟合后得到推荐值。

## 1.2 $^{237}\text{Np}(n,2n)$ 反应截面实验数据评价

$^{237}\text{Np}(n,2n)$ 反应截面有多家实验测量<sup>[17-22]</sup>结果。图3示出 $^{237}\text{Np}(n,2n)$ 反应各家推荐值与文献中实验数据的对比。其中,ENDF/B-VII库和JEFF-3.1库分别采用

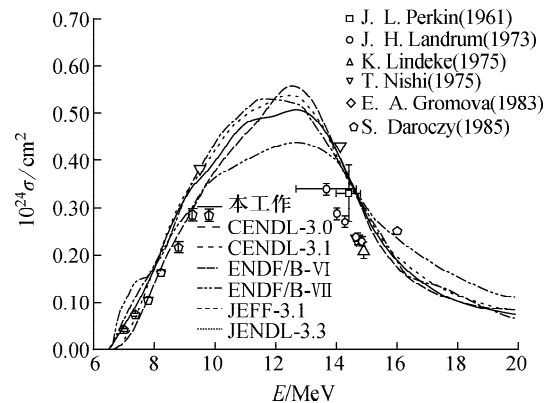


图3  $^{237}\text{Np}(n,2n)$ 反应截面评价数据与修正前实验数据对比  
Fig. 3 Comparison of evaluated data with original measured data for  $^{237}\text{Np}(n,2n)$  reaction

ENDF/B-VI库和 JENDL-3.3 库的评价数据。当入射中子能量  $E_n < 10$  MeV 时,各推荐值间的一致性并不好,其中,CENDL-3.0 库的评价数据整体上较其它推荐值低一些,与实验数据符合得较好,而其它推荐值则较实验数据高一些。当  $E_n > 10$  MeV 时,各推荐值间同样存在分歧,且整体上较实验测量值高。另外,在反应阈值附近和 10 MeV 以上能区,ENDF/B-VI 库在大小和形状上均与其它库及实验数据存在较大差异,且在峰位附近其评价结果较其它库明显偏低。下面通过对实验测量数据的深入分析来澄清上述分歧。

$^{237}\text{Np}(n,2n)$  反应截面存在两种实验测量量,分别为  $^{237}\text{Np}(n,2n)^{236}\text{Np}^g$  和  $^{237}\text{Np}(n,2n)^{236}\text{Np}^m$ ,即反应后的剩余核处于基态和同质异能态。通过对文献的调研、分析和总结,其实实验测量方法大致可分为以下 3 种:

- 1) 直接测量  $^{237}\text{Np}(n,2n\gamma)$  反应伴随瞬发  $\gamma$  射线法;
- 2) 直接测量  $(n,2n)$  反应剩余核  $^{236}\text{Np}^m$  通过电子俘获后出射的  $\gamma$  射线法;
- 3) 测量剩余核  $^{236}\text{Np}^m$  通过  $\beta^-$  衰变后形成的  $^{236}\text{Pu}$ ,测量  $^{236}\text{Pu}$  衰变发射的  $\alpha$  粒子。

实验上 3 种测量方法的实现、衰变及转移过程的简单描述如图 4 所示。第 1 种方法由于在实验过程中存在大量  $\gamma$  本底,数据处理中很难将  $\gamma$  本底扣除干净。第 2 种方法虽通过测量剩余核发射的特征  $\gamma$  射线,但此  $\gamma$  射线的分支比约为 1%,因此,同样存在很难扣除大量  $\gamma$  本底的问题。第 3 种方法中  $^{236}\text{Np}^m$  的  $\beta^-$  衰变的分支比为 48%,即实验测量中由  $\beta^-$  衰变可产生大量  $^{236}\text{Pu}$ ,再通过测量衰变出射总的  $\alpha$  粒子

数,因可非常准确地测量  $\alpha$  粒子,而由此反推  $(n,2n)$  截面的测量结果的不确定度将较小。

综观上述 3 种实验测量方法,采用前两种方法的实验测量较少,且不确定度较大,所以,大多实验采用第 3 种测量方法。在实验数据评价时,主要考虑第 3 种测量方法的实验数据。在图 4 中,标有方框的原实验测量所采用的衰变信息与目前最新的推荐值<sup>[23]</sup>间存在一定的差异,特别是  $^{236}\text{Np}^g$  和  $^{236}\text{Np}^m$ 。图 4 中箭头后面的衰变信息是最新国际推荐值,由此可判断文献中所述通过测量剩余核  $^{236}\text{Np}^g$  是不正确的,实验测量量实际上是  $^{237}\text{Np}(n,2n)^{236}\text{Np}^m$ 。在图 4 中,虚线为文献中所描述的 3 种实验测量反应过程,相应实线为实验上真实的反应过程,粗实箭头表示实验测量转移的具体过程。

$^{237}\text{Np}(n,2n)^{236}\text{Np}^m$  反应占整个  $(n,2n)$  反应的比例约为 74%<sup>[18-19,24]</sup>。那么,再考虑衰变数据的变化等因素,对实验数据进行适当的修正。 $^{237}\text{Np}(n,2n)$  反应截面评价数据与修正后实验数据的对比如图 5 所示,两者间的一致性很好。本评价结果是在 FUNF 程序<sup>[25]</sup>的理论模型分析基础上,对实验数据进行拟合得到。本推荐值在  $E_n < 10$  MeV 能区与 CENDL-3.1 库和 JENDL-3.3 库的评价数据基本一致,且与修正后的 S. Daroczy<sup>[21]</sup> 及 T. Nishi<sup>[22]</sup> 的实验数据符合较好,这说明原有 CENDL-3.0 库中的评价数据在这一能区的推荐值小了一些。在  $E_n > 10$  MeV 能区,本推荐值与 JENDL-3.3 库的数据基本一致,并与修正后的 J. H. Landrum<sup>[18]</sup>、K. Lindeke<sup>[19]</sup> 及 T. Nishi<sup>[22]</sup> 的实验数据符合较好。整体上,在截面形状和大小上本

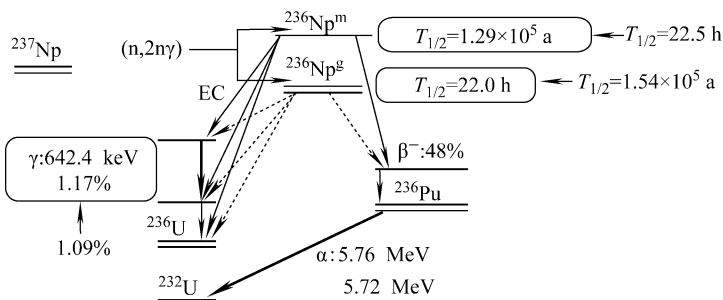


图 4  $^{237}\text{Np}(n,2n)$  反应截面实验测量中反应与衰变简要过程

Fig. 4 Simplified reaction and decay scheme of  $^{237}\text{Np}(n,2n)$  reaction

工作评价结果均较 ENDF/B-VII 库的更加合理, 更加符合实验数据。另外, 在 9~14 MeV 能区, 本工作评价结果较 ENDF/B-VII 库的明显高一些, 从实验数据整体走势上看更加合理。从实验数据的走势可推测, 在  $E_n > 15$  MeV 能区, ENDF/B-VII 库的结果明显偏高。

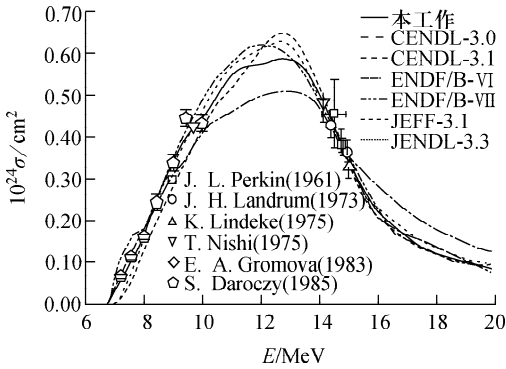


图5  $^{237}\text{Np}(n,2n)$  反应截面评价数据与修正后实验数据对比

Fig. 5 Comparison of evaluated data with corrected measurements for  $^{237}\text{Np}(n,2n)$  reaction

## 2 小结

以  $^{234}\text{U}(n,f)$  和  $^{237}\text{Np}(n,2n)$  反应截面实验数据评价为例, 对全套数据评价中最基本也是最重要部分展开深入的分析 and 阐述。通过对实验数据深入的分析与修正, 澄清实验数据、评价数据或两者间的分歧。并由理论模型分析与实验测量相结合, 得到全套的评价数据。由于篇幅所限, 对理论模型分析的详细过程不再叙述。

总结数据评价工作, 需注重调研国内外评价数据的现状, 对实验测量信息详尽地调研、收集、分析、修正与评价, 澄清分歧, 并深入调研新旧标准反应截面的变化及其对裂变核数据评价的影响。最后, 以实验数据评价为基础, 结合理论模型分析, 经统调与宏观基准检验, 根据反馈信息做进一步改进, 提高评价质量, 最终得到入库的评价数据。通过此次评价, 基本解决了角度微分截面大角度出负值、能谱出射与入射能点的取法、裂变谱文档要求、增加双微分截面数据及  $\gamma$  产生数据等问题, 提供给用户的裂变核评价数据更加全面、

可靠与可信。

## 参考文献:

- [1] YOUNG P, ARTHUR E. Evaluation of neutron nuclear data for ENDF/B-VII [R]. USA: [s. n.], 2006.
- [2] NAKAGAWA T, IWAMOTO O. Evaluation of neutron nuclear data for JENDL-3.3 [R]. Japan: [s. n.], 2002.
- [3] YOUNG P, ARTHUR E. Evaluation of neutron nuclear data for JEFF-3.0 [R]. [S. l.]: [s. n.], 2005.
- [4] UENOHARA Y, KANDA Y. Evaluation of neutron nuclear data for BROND-2.1 [R]. Russia: [s. n.], 2002.
- [5] CHEN Guochang. Evaluation of neutron nuclear data for CENDL-3.1 [R]. Beijing: China Institute of Atomic Energy, 2006.
- [6] HERMAN M. Data formats and procedures for the evaluated nuclear data file ENDF/B-VI and ENDF/B-VII [R]. USA: Brookhaven National Laboratory, National Nuclear Data Center, 2009.
- [7] WHITE P H, WARNER G P. The fission cross sections of  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$  relative to that of  $^{235}\text{U}$  for neutrons in the energy range 1-14 MeV [J]. J Nucl Energy, 1967, 21: 671-679.
- [8] JAMES G D, DABBS J W T, HARVEY J A, et al. Intermediate structure studies of  $^{234}\text{U}$  cross sections [J]. Phys Rev C, 1977, 15: 2 083-2 097.
- [9] LAMPHERE R W. Fission cross section and fission fragment angular distribution for fast neutron-induced fission of  $^{234}\text{U}$  [J]. Nucl Phys, 1962, 38: 561-589.
- [10] MEADOWS J W. The fission cross sections of uranium-234 and uranium-236 isotopes relative to  $^{235}\text{U}$  [J]. Nucl Sci Eng, 1978, 65: 171-174.
- [11] MEADOWS J W. The fission cross sections of  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{242}\text{Pu}$  relative to  $^{235}\text{U}$  at 14.74 MeV neutron energy [J]. Annual of Nuclear Energy, 1988, 15: 421-429.
- [12] BEHRENS J W, CARLSON G W, BAUER R W. Measurements of the neutron-induced fission cross sections of  $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ , and  $^{238}\text{U}$  relative to

- $^{235}\text{U}$  from 0.1 to 30 MeV[J]. Nucl Sci Eng, 1977, 63: 250-267.
- [13] KANDA K, IMARUOKA H, YOSHIDA K, et al. Measurement of fast neutron induced fission cross sections of  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{233}\text{U}$  and  $^{234}\text{U}$  relative to  $^{235}\text{U}$ [J]. Radiation Effects, 1986, 93: 233-236.
- [14] GOVERDOVSKII A A, GORDJUSHIN A K, KUZ'MINOV B D, et al. Fission cross-section measurement for heavy nuclei by the neutrons at energy sixteen MeV[J]. Atomic Energy, 1986, 60(6): 416-417.
- [15] GOVERDOVSKII A A, GORDJUSHIN A K, KUZ'MINOV B D, et al. Ratio of the fission cross sections of  $^{234}\text{U}$  and  $^{235}\text{U}$  in the neutron energy range 5-10.5 MeV [J]. Soviet Atomic Energy, 1987, 62(3): 238-240.
- [16] FURSOV B I, BARANOV B Y, KLEMYSHEV M P, et al. Cross-section ratios  $^{232}\text{Th}$  to  $^{235}\text{U}$  and  $^{234}\text{U}$  to  $^{235}\text{U}$  measurements in the neutron energy range 0.13-7.4 MeV[J]. Atomic Energy, 1991, 71(4): 320-325.
- [17] PERKIN J L, COLEMAN R F. Cross-sections for the (n, 2n) reactions of  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  and  $^{237}\text{Np}$  with 14 MeV neutrons[J]. J Nucl Energy, 1961, 14: 69-75.
- [18] LANDRUM J H, NAGEL R J, LINDNER M. (n, 2n) cross sections for  $^{238}\text{U}$  and  $^{237}\text{Np}$  in the region of 14 MeV[J]. Phys Rev C, 1973, 8: 1 938-1 944.
- [19] LINDEKE K, SPECHT S, BORN H J. Determination of the  $^{237}\text{Np}(n, 2n)^{236}\text{Np}$  cross section at 15 MeV neutron energy [J]. Phys Rev C, 1975, 12(5): 1 507-1 510.
- [20] GROMOVA E A, KOVALENKO S S, NEMILOV J A, et al. Measurement of  $^{237}\text{Np}(n, 2n)$  reaction cross section at 14.8 MeV neutron incident energy[J]. Soviet Atomic Energy, 1983, 54(2): 116-120.
- [21] DAROCZY S, RAICS P, CSIKAI J, et al. Measurement of  $^{237}\text{Np}(n, 2n)^{236}\text{Np}$  (22.5 hrs) cross section for neutron energy between 7 and 10 MeV[J]. Atom Energy, 1986, 60(1): 68-70.
- [22] NISHI T, FUJIWARA I, IMANSHI N. (n, 2n) cross sections for  $^{237}\text{Np}$ , INDC(JAP)-28L[R]. Austria: INDC, 1975.
- [23] BROWNE E, TULI J K. Nuclear data sheets for  $A = 236$  [J]. Nuclear Data Sheets, 2006, 107: 2 649-2 714.
- [24] MYERS W A, LINDNER M. The isomer ratio  $^{236}\text{Np}(1)/^{236}\text{Np}(s)$  in the reaction  $^{237}\text{Np}(n, 2n)^{236}\text{Np}$  from neutrons produced in thermonuclear devices[J]. Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry, 1975, 37(3): 637-639.
- [25] ZHANG Jingshang. FUNF code for fission nuclei reactions[M]//User manual of FUNF code. [S. l.]: [s. n.], 2005.