ADS相关核数据实验研究进展

陈志强^{1*}, 韩瑞^{1,2*}, 田国玉¹, 石福栋¹

1. 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000;

2. 中国原子能科学研究院核物理研究所, 北京 102413

*联系人, 陈志强, E-mail: zqchen@impcas.ac.cn; 韩瑞, E-mail: hanrui516@impcas.ac.cn

收稿日期: 2019-07-04; 接受日期: 2019-08-09; 网络出版日期: 2019-10-31

国家自然科学基金委员会-中国科学院大科学装置科学研究联合基金(编号: U1832205)和国家自然科学基金(编号: 11875298, 11605257)资助项目

摘要 本文简要介绍了中国科学院近代物理研究所ADS相关核数据实验研究进展. 基于兰州重离子加速器冷却储存环(HIRFL-CSR)搭建了核数据实验测量终端, 建立中子飞行时间谱仪、轻带电粒子谱仪和水浴活化等实验装置, 并开展了一系列ADS关键材料的核数据实验研究, 包括400 MeV/u ^{16}O 离子束轰击钨靶和铅靶的实验, 296 MeV 氦束轰击铅靶和厚铍靶的实验, 以及250 MeV质子轰击厚钨靶和厚铅靶的水浴活化实验. 实验测量主要研究了ADS散裂反应相关的中子产额、能谱、双微分截面等数据. 另一方面, 基于中国原子能科学研究院核数据重点实验室的中子积分实验装置, 开展了ADS靶堆耦合相关材料镅、石墨、碳化硅、钨、铀等样品的积分实验, 检验了ENDF/B-VII.1, CENDL-3.1, JENDL-4.0, JEFF-3.2及TENDL-2015等数据库中相关材料的中子评价数据.

关键词 ADS, 核数据测量, 中子飞行时间谱仪, 积分实验, 评价核数据

PACS: 28.20.Gd, 28.90.+i, 39.30.Hs, 29.30.Ep, 29.40.Mc

1 引言

加速器驱动的次临界系统(ADS)被认为是具有发展前景的安全洁净核能系统, 可以实现核废料嬗变及核燃料增殖, 有效提高核资源的利用率. ADS是由中高能强流质子加速器、散裂靶和次临界反应堆构成^[1]. 通过加速器产生的中高能强流质子轰击高功率散裂靶产生的次级中子作为外部强中子源, 提供给次临界反应堆产生持续可控的能源. ADS在能源及相关学科上具有重要的应用和发展前景, 与此

相关的一些领域, 如核能、核燃料、嬗变化学、散裂反应及相关核数据等也成为人们研究的热点, 尤其是中子数据. ADS相关设计需要精确、可靠的基础核数据支撑. 在实际应用中, 不仅需要测量一些关键点的实验数据, 还需要对一些实验数据、理论模型计算数据以及评价数据库中的相关核数据进行检验, 才能被用于核工程的设计. 基础核数据测量研究对于填补数据空白、检验中子评价数据库及相关核反应理论模型具有重要意义, 能够为ADS散裂靶、反应堆等的设计提供重要的数据支撑.

引用格式: 陈志强, 韩瑞, 田国玉, 等. ADS相关核数据实验研究进展. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2020, 50: 052007

Chen Z Q, Han R, Tian G Y, et al. Recent progress in nuclear data measurement for ADS (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2020, 50: 052007, doi: [10.1360/SSPMA-2019-0237](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2019-0237)

中国科学院于2011年启动了战略性先导科技专项“未来先进核裂变能-ADS嬗变系统”^[2], 第一阶段ADS先导专项, 主要旨在实现ADS强流超导质子直线加速器、重金属散裂靶、次临界反应堆三大系统关键技术突破, 目前已完成分项关键技术验证并建成国际首台ADS超导质子直线加速器示范样机及颗粒流散裂靶原理样机等装置. 第二阶段CiADS项目, 目标是建成国际上第一台加速器驱动的嬗变系统, 发展和掌握强流质子加速器、高功率中子散裂靶、次临界快中子反应堆的单项核心技术, 突破加速器、散裂靶和反应堆高功率耦合的技术瓶颈, 实现ADS的原理和工程技术验证.

基于ADS项目靶堆耦合相关核数据需求, 中国科学院近代物理研究所开展了一系列ADS关键材料的核数据实验研究, 测量了中子能谱、双微分截面、带电粒子产额、角分布、散裂反应余核产物以及中子泄漏谱等, 并对相关理论模型及国际上主要的中子评价数据库进行了的宏观检验. 本文主要介绍了中国科学院近代物理研究所ADS相关核数据实验研究进展.

2 ADS相关核数据需求

ADS系统靶堆耦合设计需要大量的实验测量数据和评价数据的支撑, 实验测量数据既可以用于研究靶堆相关材料的中子学特性, 又可以检验工程设计所需数据可靠性. ADS相关核数据涉及的数据种类较多、能量范围较广, 不仅包括中子数据, 还有质子、带电粒子等以及热工水力、材料、辐射防护等相关数据. 目前, EXFOR数据库包含了大量的实验数据, 但实验数据的类型、能区范围及核素种类有限, 因此, 评价数据库显得尤为重要, 数据库中的相关数据必须经过检验才可用于核工程设计. 国际五大评价数据库主要针对反应堆设计需求, 数据大部分集中在20 MeV以下能区. ADS相关的高能实验及评价数据比较缺乏, 实验测量数据的质量和精度仍需提高, 评价数据需要向高能区扩展. 表1列出了ADS散裂靶、核燃料循环、结构材料、屏蔽材料等相关的一些核素和元素, 对于这些材料需要测量的数据主要有各种反应截面数据, 中子产额、通量、

表1 ADS相关核素的核数据需求^[3]

Table 1 The isotopes or elements, data of which need to be evaluated or validated for ADS [3]

类别	核素/元素
靶材料	^{209}Bi , $^{208,207,206,204}\text{Pb}$, ^{nat}Pb , $^{186,184,183,182}\text{W}$, ^{nat}W ^{181}Ta , ^{nat}Ta , Zr , Sn , Hg , U , Pu , F , Cl , Na , Fe , Al
Po产物	$^{209}\text{Bi}(\text{p}, \text{xn})^{207,208,209}\text{Po}$, $^{209}\text{Bi}(\text{n}, \gamma)^{210}\text{Bi} \rightarrow ^{210}\text{Po}$
铜系	$^{237,238}\text{Np}$, $^{241,242,242m,243}\text{Am}$, $^{242,243,244,245,246,248}\text{Cm}$
长寿命FP	^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{126}Sn , ^{129}I , ^{135}Cs
燃料	$^{238,235}\text{U}$, $^{239,238}\text{Pu}$, $^{14,15}\text{N}$, O , F , Al
Th循环	^{232}Th , $^{231,232,233}\text{Pa}$, $^{233,234}\text{Pa}$
结构材料	Zn , Cu , Ni , Co , Fe , Mn , Cr , Ti , Ca , Ar , Al , Mg Na , O , N , C , B , Be , He , ^3T
屏蔽材料	O , Si , P , Ca , Ti , Fe

能谱及空间分布, 轻带电粒子产额、角分布, 散裂产物的质量及电荷分布, 带电粒子在材料中的能量沉积, 中子及带电粒子对材料的辐照损伤及气体产生等物理量.

3 ADS相关核数据测量进展

基于我国大科学实验装置兰州重离子加速器冷却储存环(HIRFL-CSR), 从2011年开始, 中国科学院近代物理研究所核数据研究室建立了核数据实验测量终端, 搭建了中子飞行时间谱仪、轻带电粒子谱仪及水浴中子活化等实验测量装置, 并开展了400 MeV/u ^{16}O 离子束轰击钨靶和铅靶的实验, 296 MeV 氦束轰击铅靶和厚铍靶的实验, 以及250 MeV质子轰击厚钨靶和厚铅靶的水浴中子活化实验.

3.1 核数据实验测量装置

核数据实验测量终端^[4,5]利用HIRFL-CSRm可提供能量为GeV/u 量级的高能质子和重离子束流. 实验装置主要包括高真空金属膜束窗、远程控制换靶系统、实验测量探测器系统、电子学与数据获取系统及辐射屏蔽系统(束流阻挡和中子屏蔽), 实验装置如图1所示.

实验探测系统主要包括中子飞行时间谱仪、轻带电粒子谱仪和水浴中子活化实验测量装置. 靶前束流拾取探测器(薄塑料闪烁体BC408)用于束流定位和定时, 并确定入射粒子数. 中子飞行时间谱仪由

图 1 (网络版彩图)核数据实验终端装置示意图

Figure 1 (Color online) A schematic view of nuclear data measurement facility.

反符合带电粒子探测器(Veto探测器EJ212)和有机液体闪烁体探测器组成(BC501A, EJ301). 轻带电粒子谱仪由粒子能损dE探测器(薄塑料闪烁体BC408)和能量沉积E探测器(CsI(Tl)闪烁体)组成, 可测量轻带电粒子的飞行时间和能量. γ 探测器主要包括BaF₂, LaBr₃等探测器, 高纯锗探测器阵列主要用于水浴中子活化实验样品的离线测量. 核数据实验终端测量可获得中子能谱、截面、产额, 轻带电粒子产额、分布及剩余核产物等数据.

实验发展了一套基于VME总线的数据获取系统, 获取系统的软件设计基于CERN开发的ROOT框架, 运行于LINUX操作系统环境, 存储的数据是Tree格式, 非常方便用户的实验数据分析. 可实现数据获取、在线监测和离线数据分析等功能, 并具备简单便捷的图形界面操作模式. 软件系统主要包括前端数据获取和后端数据分析两个相互独立的程序. 前端数据获取的主要功能有硬件设备的初始化, 实验数据存储信息记录以及远程传输. 可以用图形界面实时监控当前数据获取的状态、事件率传输速度及电子学死时间等信息. 后端数据分析程序的功能是对前端获取的数据进行解码, 用于在线数据监测和离线处理.

3.2 中子能谱测量

(1) 400 MeV/u $^{16}\text{O}+\text{W}$, Pb

实验利用核数据实验测量终端的中子飞行时间

谱仪和轻带电粒子谱仪, 测量了400 MeV/u ^{16}O 轰击钨靶和铅靶在10°, 25°, 45°和60°方向的出射中子能谱、产额、伽马射线及带电粒子.

基于中子飞行时间谱仪测量了具有带电粒子和伽马本底的中子飞行时间谱, 采用 $\Delta\text{E}-\text{E}$ 方法结合液闪探测器的PSD本领, 剔除带电粒子和伽马本底, 得到出射中子能谱、产额及双微分截面, 并与QMD模型计算结果比较, 如图2所示, 对于钨靶和铅靶不同出射角的理论计算结果在整个能区范围内可以很好地再现了实验测量数据. 基于轻带电粒子谱仪, 结合 $\Delta\text{E}-\text{E}$ 和 $\Delta\text{E}-\text{TOF}$ 方法, 对轻带电粒子产物进行了粒子鉴别, 获得了p, d, t, ^4He 等粒子的清晰分区, 并得到了各轻带电粒子的产额和角分布. 图3是400 MeV/u ^{16}O 轰击钨靶和铅靶在15°, 30°和50°方向的p, d, t, ^4He 角分布.

(2) 296 MeV d+Be, Pb

实验利用飞行时间法测量了296 MeV 氘束轰击厚铍靶和薄铅靶在0°, 10°, 20° 和35°方向的出射中子能谱及双微分截面, 同时测量了氘在厚铍靶中布拉格峰的位置. 图4是实验测量得到的10°方向出射

图 2 (网络版彩图) 400 MeV/u ^{16}O 轰击钨靶(a)和铅靶(b)出射中子双微分截面

Figure 2 (Color online) Neutron double-differential cross section of 400 MeV/u ^{16}O bombarded on a tungsten (a) and lead (b) target.

图 3 (网络版彩图) 400 MeV/u ^{16}O 轰击钨靶和铅靶出射轻带电粒子 p, d, t, ^4He 角分布

Figure 3 (Color online) Angle distribution of light charge particle p, d, t, ^4He for 400 MeV/u ^{16}O bombarded on a tungsten and lead target.

图 4 (网络版彩图) 296 MeV 氘束轰击铅靶出射中子双微分截面

Figure 4 (Color online) Neutron double-differential cross section of 296 MeV deuteron bombarded on a lead target.

中子的双微分截面与理论计算结果的比较. 利用GEANT4程序中的INCL, BIC模型, MCNPX程序中的INCL, CEM模型及QMD理论模型的计算结果显示, GEANT4和MCNPX使用的INCL模型计算结果与实验数据符合较好.

3.3 散裂反应余核产物测量

利用中子活化法对散裂反应及相关中子学进行研究, 在线监测散裂反应生成中子的通量及空间分布, 并测量散裂反应余核产物等. 实验测量给出了

靶的轴向初始活度分布、中子通量分布, 中子产额及出射产物等, 并考虑了包Cd的影响.

图 5是水浴活化实验装置. 束流利用空气电离室进行监视, 束流强度通过铝膜给出, 使用荧光靶检测束斑大小. 实验使用50片Au活化片, 其中10片包Cd. 活化片使用HPGe伽马谱仪探测器阵列测量. 利用水浴活化实验装置, 测量了250 MeV质子与钨靶和铅靶的中子通量分布, 详细讨论见文献[6-8].

4 利用D-T中子源开展积分实验测量

随着核能的发展, 在反应堆、核燃料循环、核医学及核能工程等相关领域中, 核数据的需求在不断增长 [9, 10]. 评价数据是核数据中重要的一部分, 其可靠性和精准度直接影响核工程设计的质量. 因此, 对评价核数据进行检验也成为一项重要的研究内容, 它也是核数据评价过程中的一个必要环节. ADS所需的数据, 其数据种类、能量范围较广. 目前, 国际五大评价数据库相关数据可以直接采用, 但其数据类型、精度及能量范围等有限, 数据库中的高能数据普遍较缺乏, 在使用评价数据进行工程设计之前, 数据的可靠性需要确认. 对ADS关键靶核及相关核素评价核数据的基准检验, 不仅可以检验数据和模型的可靠性, 同时为CENDL库提供基准检验实验数据, 有助于提高核数据的精度, 缩小差异, 使各类核能工程的设计达到最优化.

图 5 (网络版彩图) 水浴活化实验装置

Figure 5 (Color online) Water-bath neutron activation measurement setup.

4.1 积分实验装置

基于中国原子能科学研究院核数据重点实验室的300 kV高压倍加器上的D-T(Ti)中子源, 氘束能量为300 keV, 通过 $T(d, n)^4\text{He}$ 反应产生14.8 MeV的单能脉冲中子与待测样品相互作用, 利用飞行时间法测量样品分别在 60° 和 120° 方向的泄漏中子谱. 束流平均流强约30 μA , 脉冲频率1.5 MHz, 脉宽约3 ns (FWHM), 束斑大小约 $\Phi 5\text{ mm}$. 图6是实验测量装置图. 实验中利用金硅面垒半导体探测器测量 $T(d, n)^4\text{He}$ 反应在反方向产生的 α 粒子来监测中子源强, 用于实验数据归一化处理, 同时在出射中子 0° 方向上放置BC501A($\Phi 5.08\text{ cm} \times 5.08\text{ cm}$)液体闪烁体探测器监测源中子获得加速器脉冲形状谱. 靶样品放置在准直系统中心轴线上, 通过左右移动靶在准直系统中心轴线上的位置, 可以改变泄漏中子谱的测量角度. 样品泄漏中子谱的测量角度 60° 和 120° , 对应中子源的中子出射角度分别为 30° 和 -30° , 它们具有相同的源中子能谱和角分布, 源中子能谱呈现高斯分布, 中心值约14.75 MeV. 实验屏蔽系统是由阴影锥、前级准直系统和嵌在2 m厚水泥墙内的准直器组成. 实验采用中子飞行时间法, 利用放置在水泥墙后测量大厅内的BC501A ($\Phi 5.08\text{ cm} \times 2.54\text{ cm}$, 中子探测器)液体闪烁体探测器, 测量靶样品的泄漏中子谱. 实验装置详细情况见参考文献[11–22].

4.2 实验测量样品

ADS靶堆耦合系统装置示意图如图7所示, 利

图6 (网络版彩图)实验测量装置图

Figure 6 (Color online) A schematic view of the experimental arrangement.

用高能质子束轰击钨靶, 产生次级中子作为外围中子源驱动次临界堆运行. 核燃料采用碳化硅包裹的铀-238燃料棒, 石墨作为反射层, 屏蔽层材料采用聚乙烯. 表2列出了部分ADS靶堆耦合系统的关键材料样品. 积分实验测量了镓、石墨、碳化硅、钨、钨球颗粒、铀、聚乙烯及钨、铀、碳、聚乙烯组合样品的中子泄漏谱, 样品的具体尺寸及测量角度见表2.

4.3 电子学与数据获取

实验采用CAMAC总线的多参数获取系统, 使用Kmax软件进行效应本底(有样测量)和本底谱(无样测量)的在线或离线分析. 图8是实验电子学线路

图7 (网络版彩图) ADS靶堆耦合系统装置示意图

Figure 7 (Color online) A schematic view of the experimental arrangement for ADS target and reactor system.

表2 实验测量样品参数

Table 2 Experimental measurement sample parameters

序号	样品	尺寸 (cm)	角度 ($^\circ$)
1	聚乙烯	$\Phi 13 \times 6$	60
2	镓	$\Phi 13 \times 3.2, \Phi 13 \times 6.4$	60, 120
3	石墨	$\Phi 13 \times 2, \Phi 13 \times 20$	60, 120
4	碳化硅	$\Phi 13 \times 2, \Phi 13 \times 20$	60, 120
5	钨	$10 \times 10 \times 3.5, 10 \times 10 \times 7$	60, 120
6	钨球颗粒	直径1 mm, 容器壁厚1 mm 腔内尺寸 $10 \times 10 \times 7.2$	60
7	铀	$10 \times 10 \times 2, 10 \times 10 \times 5$ $10 \times 10 \times 11$	60, 120
8	W+U	W: $10 \times 10 \times 3.5$, U: $10 \times 10 \times 2$	60
9	W+U+C	C: $10 \times 10 \times 2$	60
10	W+U+C+CH ₂	CH ₂ : $10 \times 10 \times 2$	60
11	U+C	U: $10 \times 10 \times 5$, C: $10 \times 10 \times 10$	60
12	U+C+CH ₂	CH ₂ : $10 \times 10 \times 10$	60

图8 实验电子学线路框图。PA: 前置放大器, 590: 主放大器, 567: 时间幅度转换器, 2160A: 脉冲形状甄别器, 935: 恒比定时器, VT120: 块时间前置放大器, 142B: 前置放大器, 572: 放大器, 551: 计时单通道分析仪, C257: 定标器

Figure 8 Block diagram of the electronic circuit for the present experiment. PA: preamplifier, 590: amplifier, 567: time-to-amplitude converter, 2160A: pulse shape discrimination module, 935: constant fraction discriminator, VT120: fast timing preamplifier, 142B: preamplifier, 572: amplifier, 551: timing single-channel analyzer, C257: scaler.

图, 共获取5路信号, 分别是: 中子探测器打拿极直接引出的脉冲高度谱(Pulse Height), 用来确定探测器的阈值; 脉冲形状甄别谱(PSD), 通过2160A 电子学插件来进行 n - γ 甄别; 中子飞行时间谱(TOF), 以中子探测器的阳极信号引出作为起始信号, 加速器脉冲拾取信号引出, 经过适当的时间延迟, 作为停止信号; 监视器的飞行时间谱(TOF of Monitor), 主要用来监视加速器的中子束流脉冲情况, 包括脉冲形状的对称性和脉宽等; α 粒子计数(Tally of α), 该信号是由金硅面垒半导体探测器完成, 绝对效率达100%, 通过计算可以得到中子源的强度, 用于实验数据的归一化处理。

4.4 MCNP模拟

蒙特卡罗模拟采用MCNP-4C程序, 模拟计算中详细考虑了实验装置的几何结构、源中子能谱和角分布、中子探测器的效率及响应函数等参数. 通过将MCNP模拟结果与实验测量结果比较, 对ENDF/B-VII.1, JENDL-4.0, JEFF-3.2, TENDL-2015及CENDL-3.1等数据库中的中子评价数据进行宏观基准检验. 模拟中, 源中子能谱和角分布采用TARGET程序计算的结果^[23], 中子探测器效率采用NEFF程序的计算结果^[24], 其响应函数通过中

国原子能科学研究院 $2\times 1.7\text{ MV}$ 小型串列加速器上的 ${}^9\text{Be}(\text{d}, \text{n}){}^{10}\text{B}$ 白光中子源^[25]的探测器标定实验来确定.

4.5 实验测量结果

4.5.1 实验不确定度分析

实验不确定度主要来自统计误差和系统误差。统计误差在5%左右, 包括: (1) 中子计数统计误差约5%; (2) 相对归一系数误差, 包括MCNP计算每个源中子产生n-p散射中子的统计误差, 以及实验测量的n-p散射中子的统计误差, 一般均小于5%; (3) α 粒子计数统计误差, 包括标准聚乙烯样品和铯样品测量中 α 粒子计数的统计误差, 一般均小于5%。系统误差包括相对中子探测效率误差($\leq 3\%$), 以及泄漏中子出射角度测量误差($\leq 1\%$)。实验数据处理中使用相对归一系数(即标准样品n-p散射峰面积的实验测量结果与模拟结果的比值), 可以消减大部分系统误差, 包括绝对探测效率以及 α 粒子和中子的立体角测量误差, 因此, 实验中总的不确定度一般在10%以内。

4.5.2 标准样品检验

实验测量了聚乙烯标准样品在 60° 的泄漏中子谱, 并采用MCNP程序进行了相应的模拟. 标准样品的测量结果可以检验实验系统的可靠性, 同时依据n-p散射峰面积的实验测量结果与模拟结果的比值, 可以得到一个相对归一系数, 用于镅样品的数据处理. 图 9是聚乙烯样品 60° 中子泄漏谱实验测量结果和MCNP模拟结果的对比. 由图可见, 标准样品的实验测量结果与MCNP采用ENDF/B-VII.1, CENDL-3.1, JEFF-3.2, JENDL-4.0和TENDL-2015数据库的模拟结果在整个能区范围内都符合得很好, 说明该实验系统和测量方法可靠.

4.5.3 镓样品检验

镓样品采用天然镓样品, 纯度可达99.99%。实验测量了两个不同厚度的镓样品分别在60°和120°方向的泄漏中子谱, 同时利用MCNP程

序, 对ENDF/B-VII.1, JENDL-4.0, JEFF-3.2, CENDL-3.1和TENDL-2015数据库中的中子评价数据进行了检验. 如图 10可见, 除了能量约为12 MeV(虚线之间)的非弹性散射峰之外, 模拟结果可以较好地符合实验测量值. ENDF/B-VII.1, JENDL-4.0和CENDL-3.1库的模拟结果没有给出12 MeV非弹性散射峰的贡献, 而TENDL-2015和JEFF-3.2库能够给出12 MeV左右非弹性散射峰的部分贡献, 60°的结果更为明显, 该非弹性散射峰主要来自镓核分立能级的贡献. 因此, 各评价数据库需进一步改善镓核中子评价数据, 详细讨论见文献[11, 12].

图 9 (网络版彩图)聚乙炔样品60°中子泄漏谱实验测量结果和MCNP模拟结果的对比

Figure 9 (Color online) The measured neutron leakage spectrum at 60° for polyethylene sample compared with MCNP simulated results.

图 10 (网络版彩图)镓样品的中子泄漏谱

Figure 10 (Color online) Neutron leakage spectrum for Gallium sample.

4.5.4 石墨样品检验

实验测量了20 cm石墨样品60°和120°, 以及2 cm石墨样品60°方向的泄漏中子谱, 检验了ENDF/B-VII.1, CENDL-3.1, JENDL-4.0, JEFF-3.2, FENDL-3.0和TENDL-2015数据库中的中子评价数据. 如图 11, 在3 MeV以上能区, 几家数据库模拟结果都可以较好地符合实验测量值. 3 MeV以下能区, 对于20 cm的石墨样品, ENDF/B-VII.1和JEFF-3.2数据库的模拟结果低估了实验值; 对于2 cm的石墨样品, 除ENDF/B-VII.1数据库的模拟结果低估了实验值外, 在7和9 MeV的波谷位置, 实验值和几家数据库之间差异较大, FENDL-3.0与TENDL-2015数据库结果完全一致, 详细讨论见文献[13, 16].

4.5.5 碳化硅样品检验

碳化硅样品是将碳化硅粉末压制成实心圆柱体, 封装在1 mm的铝盒子中, 实验测量了20 cm碳化硅样品60°和120°, 以及2 cm碳化硅样品60°方向的泄漏中子谱, 检验了ENDF/B-VII.1, CENDL-3.1, JENDL-4.0, JEFF-3.2, FENDL-3.0和TENDL-2015数据库中的中子评价数据. 如图 12, 总体上实验测量结果和数据库模拟结果符合较好, 在中子泄漏谱上可以清晰地观察到碳和硅的激发态数据, 数据库也可以给出相应激发态的贡献. 对于20 cm的厚样品,

图 11 (网络版彩图)石墨样品的中子泄漏谱

Figure 11 (Color online) Neutron leakage spectrum for Graphite sample.

图 12 (网络版彩图)碳化硅样品的中子泄漏谱

Figure 12 (Color online) Neutron leakage spectrum for Silicon carbide sample.

FENDL-3.0, JEFF-3.2和ENDF/B-VII.1数据库与实验数据符合较好. 对于2 cm的薄样品, 3 MeV能量以下, 由于ENDF/B-VII.1和JEFF-3.2数据库中碳评价数据的低估, 使得碳化硅的模拟结果低于实验值. 实验测量与数据库中子评价数据的最大差异主要来源于硅的激发态数据, 详细讨论见文献[14, 16].

4.5.6 钨样品检验

钨的硬度和熔点都比较高, 具有良好的中子学性能, 是重要的散裂靶材料. 实验中钨样品是纯度和密度分别为99.9%和18.1 g/cm³的板状样品. 实验测量了两个不同厚度的钨样品分别在60°和120°方向的泄漏中子谱, 检验了ENDF/B-VII.1, CENDL-3.1, JENDL-4.0, ADS-2.0和FENDL-3.0数据库中的中子评价数据. 如图 13, 在10 MeV左右, CENDL-3.1数据库严重低估了实验值, ENDF/B-VII.1和ADS-2.0数据库在整个能区范围与实验值符合较好. FENDL-3.0与ENDF/B-VII.1数据库的结果完全一致, 详细讨论见文献[17, 18].

4.5.7 钨球颗粒样品检验

ADS散裂靶初期拟采用中国科学院ADS研究团队提出的以钨基合金小球颗粒为材料的新型流化固体颗粒散裂靶. 钨球颗粒样品是将直径为1 mm的钨基合金小球颗粒封装在壁厚为1 mm钨盒子中, 实

验测量了钨球颗粒样品60°方向的泄漏中子谱, 检验了ENDF/B-VII.1, CENDL-3.1, JENDL-4.0, FEFF-3.2和TENDL-2015数据库中的中子评价数据库, 并对中子在钨球颗粒靶中的输运行为进行了研究.

钨球颗粒样品的几何结构具有特殊性, 在MCNP模拟中要考虑钨球颗粒在钨盒子中的排列分布结构. 实验测量中钨球颗粒是随机分布结构, 实际填充率为57.8%. MCNP模拟中考虑了块状(Block)、面心立方(FCC)、体心立方(BCC)、六棱柱(CHPOP)和正立方体(SC)五种分布结构, 五种结构分布对应的最大填充率分别为100%, 74%, 68%, 60.46%和52%, 如图 14所示.

图 15是最大填充率下, 五种不同球颗粒分布结构下的中子泄漏谱的MCNP模拟结果. 图 16是固定填充率为52%时, SC, CHPOP, BCC和FCC四种排列分布结构下的中子泄漏谱的MCNP模拟结果. 从模拟结果可以看出泄漏中子谱的分布主要取决于钨球颗粒的填充率; 在固定填充率下, 不同钨球颗粒的分布结构对泄漏中子谱的影响很小. 为检验各评价数据库中钨球颗粒的中子评价数据, 采用适中的BCC球颗粒分布结构, 使其填充率与实验样品一致, 中子泄漏谱的实验测量与MCNP模拟结果的比较如图 17. 检验结果与钨块的结果基本一致, CENDL-3.1数据库10 MeV左右的评价数据需要改善. ENDF/B-VII.1和TENDL-2015数据库与实验结

图 13 (网络版彩图)钨样品的中子泄漏谱

Figure 13 (Color online) Neutron leakage spectrum for Tungsten block sample.

图 14 (网络版彩图) SC, CHPOP, BCC和FCC晶胞结构(a)及对应的球颗粒堆积排列分布结构(b) [19]

Figure 14 (Color online) Characteristics of the unit cell (a) and accumulation structure (b) for the SC, CHPOP, BCC and FCC lattices [19].

图 15 (网络版彩图) Block, FCC, BCC, CHPOP和SC五种不同排列分布结构在最大填充率下中子泄漏谱的MCNP模拟结果 [19]

Figure 15 (Color online) The leakage neutron spectra simulated by MCNP code using Block (solid), FCC (dashed), BCC (dot), CHPOP (dot-dashed) and SC (dot-dot-dashed) geometry arrangements [19].

图 16 (网络版彩图) FCC, BCC, CHPOP和SC四种不同排列分布结构在固定填充率52%下中子泄漏谱的MCNP模拟结果 [19]

Figure 16 (Color online) The leakage neutron spectra simulated by MCNP code using the same filling factor of 52% for FCC (dashed), BCC (dot), CHPOP (dot-dashed) and SC (dot-dot-dashed) lattices arrangements [19].

果符合较好, 详细讨论见文献[19].

4.5.8 铀样品检验

实验测量了三种不同厚度的铀样品在60°和120°方向的泄漏中子谱, 检验了ENDF/B-VII.1, CENDL-3.1, JENDL-4.0, JEFF-3.2和TENDL-2015数据库中的中子评价数据. 如图 18, 整体上, 几家数据库在整个能区范围可以较好符合实验结果, ENDF/B-VII.1符合最好. CENDL-3.1数据库与实验结果差异较大, 详细讨论见文献[20].

4.5.9 钨、铀、碳及聚乙烯的组合样品检验

基于ADS散裂靶的初步设计, 实验以靶材料钨、堆芯材料铀、反射层材料碳及屏蔽材料聚乙烯的不同组合方式为待测样品, 测量了样品60°方向的泄漏中子谱, 检验了ENDF/B-VII.1, CENDL-3.1, JENDL-4.0, JEFF-3.2, FENDL-3.0和TENDL-2015数据库中的中子评价数据. 第一种样品为钨、铀、碳及聚乙烯的组合, 具体样品尺寸见表 2, 并与钨、铀、钨、铀、碳的三种组合样品测量结果做了对比,

如图 19 所示, 从(a)–(d)的结果可以看出, 对于不同的材料, 数据库与实验结果存在不同的差异, 这个差异在(d)中降到了最小, 不同材料之间的差异相互补偿, 使得最终钨、铀、碳及聚乙烯的组合样品的几家数据库和实验结果都符合得很好。

第二种样品为铀、碳及聚乙烯的组合(厚样品), 具体样品尺寸见表 2, 并与铀、及铀、碳的两种组

合样品测量结果做了对比, 如图 20 所示, 同样从(a)–(c)的结果可以看出, 铀样品数据库与实验结果的差异, 在(b)和(c)中几乎观察不到, 但由于碳样品和聚乙烯样品较厚, ENDF/B-VII.1 和 JEFF-3.2 数据库在 3 MeV 以下, 对碳中子数据的低估仍然存在, 3 MeV 以上能区, 组合样品(b)和(c)的实验结果与数据库符合很好, 详细讨论见文献[15, 16]。

图 17 (网络版彩图)钨球颗粒样品的中子泄漏谱 [19]

Figure 17 (Color online) Neutron leakage spectrum for Tungsten granular sample [19].

图 18 (网络版彩图)铀样品的中子泄漏谱

Figure 18 (Color online) Neutron leakage spectrum for Uranium block sample.

图 19 (网络版彩图)组合样品(1)的中子泄漏谱. (a)铀靶; (b)钨+铀靶; (c)钨+铀+石墨靶; (d)钨+铀+石墨+聚乙烯靶

Figure 19 (Color online) Neutron leakage spectrum for multiple-slab (1) sample. (a) Uranium target; (b) tungsten+uranium target; (c) tungsten+uranium+graphite target; (d) tungsten+uranium+graphite+polyethylene target.

图 20 (网络版彩图)组合样品(2)的中子泄漏谱. (a)铀靶; (b)铀+石墨靶; (c)铀+石墨+聚乙烯靶

Figure 20 (Color online) Neutron leakage spectrum for multiple-slab (2) sample. (a) Uranium target; (b) uranium+graphite target; (c) uranium+graphite+polyethylene target.

5 总结

为满足ADS项目靶堆耦合系统设计相关核数据需求, 中国科学院近代物理研究所开展了一系列ADS关键材料的核数据实验研究. 基于兰州重离子加速器冷却储存环建立了核数据实验测量终端, 搭建了中子飞行时间谱仪, 轻带电粒子谱仪和水浴中子活化等装置, 开展了400 MeV/u ^{16}O 束轰击钨靶和铅靶的实验, 296 MeV 氘束轰击铅靶和厚钨靶的实验, 以及250 MeV质子轰击厚钨靶和厚铅靶的水浴中子活化实验测量. 实验测量主要获得了中子双微分截面、产额、能谱及带电粒子产额、角分

布, 以及活化法测量得到了余核产物分布等, 对相关理论模型进行了检验. 基于中国原子能科学研究院核数据重点实验室的中子积分实验装置, 开展了ADS靶堆耦合相关材料镅、石墨、碳化硅、钨、铀等样品的积分实验, 利用飞行时间法测量了中子泄漏谱, 研究了中子在厚靶材料中的输运行为, 并检验了ENDF/B-VII.1, CENDL-3.1, JENDL-4.0, JEFF-3.2及TENDL-2015等数据库中相关材料的中子评价数据. 研究结果为ADS靶堆耦合系统设计提供了重要的科学依据和数据库支持, 推荐出合适的散裂反应理论模型及一套可靠的中子评价数据库, 为ADS专用数据库的建立打下坚实的基础.

致谢 感谢中国科学院近代物理研究所HIRFL团队对加速器运行工作的辛勤付出; 感谢中国原子能科学研究院核数据重点实验室300 kV高压倍加器装置实验团队的努力工作和大力支持.

参考文献

- 1 Nifenecker H, Meplan O, David S. Accelerator Driven Subcritical Reactors. Bristol, Philadelphia: Institute of Physics Publishing, IOP Publishing Ltd., 2003
- 2 Xiao G Q, Xu H S, Wang S C. HIAF and CiADS National Research Facilities: Progress and prospect (in Chinese). Nucl Phys Rev, 2017, 34: 275–283 [肖国青, 徐珊瑚, 王思成. HIAF及CiADS 项目进展与展望. 原子核物理评论, 2017, 34: 275–283]
- 3 Ikeda Y. Nuclear data relevant to accelerator driven system. J Nucl Sci Tech, 2002, 48: 4–12
- 4 Chen Z Q. Recent progress in nuclear data measurement for ADS at IMP. Nucl Sci Tech, 2017, 28: 184
- 5 Zhang S Y L T, Chen Z Q, Liu J L, et al. Development and the first test experiment of experimental setup for measuring of ADS nuclear data (in Chinese). Atomic Energy Sci Tech, 2014, 48: 45–49 [张苏雅拉吐, 陈志强, 刘建立, 等. ADS核数据实验测量装置建设及首次测试实验. 原子能科学与技术, 2014, 48: 45–49]
- 6 Zhang X, Zhang Y, Ma F, et al. Neutron production for 250 MeV protons bombarding on thick grain-made tungsten target. Eur Phys J A, 2015, 51: 106
- 7 Chen L, Ma F, Zhanga X Y, et al. Spallation yield of neutrons produced in thick lead target bombarded with 250 MeV protons. Nucl Instruments Methods Phys Res Sect B, 2015, 342: 87–90
- 8 Ju Y Q, Zhang X Y, Ma F, et al. The production of residual radionuclides by a 250 MeV proton beam. J Phys G-Nucl Part Phys, 2015, 42: 125102
- 9 Liu T J. The present status and development of neutron nuclear data evaluation. Atomic Energy Sci Tech, 1995, 29: 321
- 10 Koning A J, Delaroche J P, Bersillon O. Nuclear data for accelerator driven systems: Nuclear models, experiments and data libraries. Nucl Instruments Methods Phys Res Sect A, 1998, 414: 49–67
- 11 Han R, Wada R, Chen Z, et al. Fast neutron scattering on Gallium target at 14.8 MeV. Nucl Phys A, 2015, 936: 17–28
- 12 Han R, Chen Z Q, Nie Y B, et al. Measurement and analysis of leakage neutron spectrum from Gallium sample (in Chinese). Atomic Energy Sci Tech, 2018, 52: 1200–1205 [韩瑞, 陈志强, 聂阳波, 等. 镅圆柱样品泄漏中子谱的测量与分析. 原子能科学与技术, 2018, 52: 1200–1205]
- 13 Luo F, Han R, Chen Z, et al. Measurement of leakage neutron spectra from graphite cylinders irradiated with D-T neutrons for validation of evaluated nuclear data. Appl Radiat Isotopes, 2016, 116: 185–189
- 14 Luo F, Han R, Nie Y, et al. Measurement of leakage neutron spectra from silicon carbide cylinders with D-T neutrons and validation of evaluated nuclear data. Fusion Eng Des, 2016, 112: 355–359
- 15 Luo F, Han R, Chen Z, et al. Measurements and analysis of leakage neutron spectra from multiple-slab sample assemblies comprising W,U,C, and CH_2 with D-T neutron irradiation. Appl Radiat Isotopes, 2018, 137: 123–128

- 16 Luo F, Han R, Chen Z, et al. Benchmark test of JEFF-3.2, FENDL-3.0 and TENDL-2015 with TOF experiments for graphite, silicon carbide, uranium and multiple-slab samples. [Nucl Eng Des](#), 2018, 331: 342–347
- 17 Zhang S, Chen Z, Nie Y, et al. Measurement of leakage neutron spectra for Tungsten with D-T neutrons and validation of evaluated nuclear data. [Fusion Eng Des](#), 2015, 92: 41–45
- 18 Zhang S, Nie Y B, Ren J, et al. Benchmarking of JEFF-3.2, FENDL-3.0 and TENDL-2014 evaluated data for tungsten with 14.8 MeV neutrons. [Nucl Sci Tech](#), 2017, 28: 27
- 19 Han R, Chen Z, Nie Y, et al. Neutron transport and benchmark on granular tungsten samples with 14.8 MeV neutrons. [Fusion Eng Des](#), 2018, 135: 116–120
- 20 Sun Q, Chen Z, Han R, et al. Experiment on uranium slabs of different thicknesses with D-T neutrons and validation of evaluated nuclear data. [Fusion Eng Des](#), 2017, 125: 9–17
- 21 Nie Y, Bao J, Ruan X, et al. Benchmarking of evaluated nuclear data for uranium by a 14.8 MeV neutron leakage spectra experiment with slab sample. [Ann Nucl Energy](#), 2010, 37: 1456–1460
- 22 Nie Y, Ren J, Ruan X, et al. The benchmark experiment on slab beryllium with D-T neutrons for validation of evaluated nuclear data. [Fusion Eng Des](#), 2016, 105: 8–14
- 23 Schlegel D. TARGET User's Manual, laborbericht PTB-6.42-05-2. Braunschweig, 2005
- 24 Dietze G, Klein H. NRESP4 and NEFF4 Monte Carlo code for the calculation of neutron response functions and detection efficiencies for NE213 scintillation detectors. Braunschweig: Physikalisch-Technische Bundesanstalt, 1982. PTB-ND-22
- 25 Huang H X, Ruan X C, Chen G C, et al. Detectors and experimental methods: Measurement of the response function and the detection efficiency of an organic liquid scintillator for neutrons between 1 and 30 MeV. [Chin Phys C](#), 2009, 33: 677–681

Recent progress in nuclear data measurement for ADS

CHEN ZhiQiang^{1*}, HAN Rui^{1,2*}, TIAN GuoYu¹ & SHI FuDong¹

¹*Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;*

²*Department of Nuclear Physics, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China*

Recent progress in nuclear data measurement for ADS at IMP is reviewed briefly. Based on the Cooler Storage Ring of Heavy Ion Research Facility in Lanzhou (HIRFL-CSR), the nuclear data terminal was established, which mainly includes neutron time-of-flight spectrometer, light charged particles spectrometer and water-bath neutron activation setup. A number of experiments have been conducted in the nuclear data terminal. The experiments of 400 MeV/u ¹⁶O bombarded on tungsten target and lead target, 296 MeV deuteron bombarded on lead target and thick beryllium target, 250 MeV protons incident on a thick grain-made tungsten target and a thick solid lead target using the water-bath neutron activation method were performed in the nuclear data terminal. The nuclear data of neutron yields, energy or time spectrum, double differential cross section and so on have been investigated. On the other hand, based on the neutronics integral experimental setup at China Institute of Atomic Energy, benchmarking of evaluated nuclear data libraries was performed on ADS relevant materials gallium, graphite, silicon carbide, tungsten, uranium samples and so on. ENDF/B-VII.1, CENDL-3.1, JENDL-4.0, JEFF-3.2 and TENDL-2015 libraries were validated.

ADS, nuclear data measurement, neutron time-of-flight spectrometer, integral experiment, evaluated nuclear data

PACS: 28.20.Gd, 28.90.+i, 39.30.Hs, 29.30.Ep, 29.40.Mc

doi: [10.1360/SSPMA-2019-0237](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2019-0237)