

裂变产物的中子核反应数据研究现状

刘 燕 平

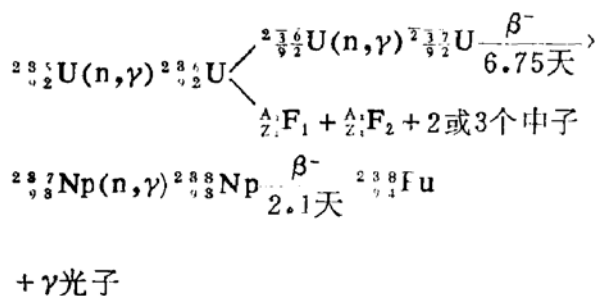
(武汉大学物理系)

一、前 言

重原子核在中子、质子、重核、介子和 γ 光子作用下均能发生裂变。其中最 有实用价值的是铀和钚在中子作用下的裂变,因为这些裂变产生新中子,新中子又能够继续引起裂变,从而实现链式反应,大规模地释放核能。

当前,核能利用中使用最多的是 ^{235}U 和 ^{239}Pu ,后者主要用于核武器,前者除用于核武器之外更广泛地用于各种类型的反应堆。

天然存在的由中子引起裂变的只有一种核素—— ^{235}U ,它与中子的反应为:



其中 $\frac{A}{2}\text{F}_1$ 和 $\frac{A}{2}\text{F}_2$ 表示一个 ^{235}U 裂变产生两个新核。

中子引起重核裂变的机理,在文献中有详细的描述,例如文献[1],中子与重核相互作用,首先发生辐射俘获,形成复合核,复合核(例如 ^{236}U)处于激发态,其最低激发能等于它所吸收的中子的结合能。含奇数个中子数的重核(质子为偶数,中子为奇数),如 $^{235}_{92}\text{U}$, $^{239}_{94}\text{Pu}$ 等,它们的裂变势垒低于中子的结合能,所以任何动能的

中子均可引起它们裂变。这三种核常称为核燃料。而 $^{238}_{92}\text{U}$ 和 $^{232}_{90}\text{Th}$ 等,含偶数个质子和偶数个中子,中子的结合能小于它们的裂变势垒,必须中子的动能足够大(中子动能与结合能之和大于裂变势垒)才能引起裂变。

$^{238}_{92}\text{U}$ 和 $^{232}_{90}\text{Th}$ 由中子引起裂变的阈能分别为1MeV和1.2MeV。

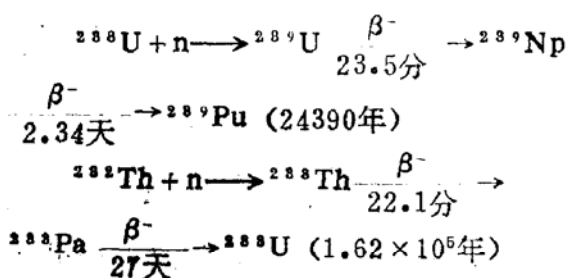
一个核裂变生成两个新核,通常叫裂变碎片。这些碎片含有过多的中子,每个碎片在从激发态转入基态的过程中,放出一个或几个中子以及 γ 光子,称之为瞬发中子和瞬发 γ 光子。裂变碎片放出瞬发中子之后便成为裂变产物。

重核裂变生成的裂变产物与中等质量的稳定核素相比,具有过多的中子,因而不是稳定的 β 放射性核。有一些短寿命的裂变产物(如溴、碘等同位素)还能直接放出中子,叫做缓发中子。平均地,大部分初始裂变产物在到达稳定状态之前要经过3—4次放射性蜕变。一系列的 β 衰变构成同量异位链。文献[2]中列出了质量数由72—166的全部同量异位链图。

^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu 、 ^{238}U 和 ^{232}Th 等由慢中子或快中子引起裂变时,产生原子序数由30—65的36种元素的300多种同位素[3],其中少数是稳定同位素,大部分是放射性同位素。各裂变产物的产额不同,其半衰期的长短相差悬殊,从小于一秒钟到几百万年,直至稳定同位素。裂变产物的质量产额形成所谓费米双峰曲线[4],其他种类的裂变也得到类似的曲线,但极大值和极小值位置略有移动。裂变产物的质量产额可参考文献[2]。

裂变产物的中子数据对预言快中子反应堆的长期特性很重要,尤其是预言反应堆的反应性,需要精度很高的裂变产物中子反应截面,因而在快中子反应堆设计、运行、生产和研究等各方面都十分重要。

快中子反应堆是现在已知的利用 ^{238}U 或 ^{232}Th 大量生产核燃料的唯一方法。它利用 ^{235}U 的快中子裂变链式反应,产生很高的快中子通量,使 ^{238}U 和或 ^{232}Th 有相当大的中子吸收率,从而产生核燃料。因此又称 ^{238}U 和 ^{232}Th 为核原料。其反应过程如下:



目前各国对裂变产物中子核反应的评价数据还有相当大的差别,以致预言反应性使 $\Delta K/K$ 有1%以上的不确定性。

二、评价数据现状

国外在七十年代初才开始进行一些裂变产物的中子核反应截面的实验测量、理论计算及数据的综合评价工作。例如在1970年,日本核数据委员会(JNDC)的裂变产物数据研究组开始了裂变产物中子截面的评价,至1974年系统地评价了一批数据。但在这早期的工作中,能区为100eV~15MeV,没有考虑截面随能量变化的共振结构,然而在大型快中子反应堆中,能量低于几个KeV的共振结构是很重要的。早期的工作在理论计算中还忽略了中子能级宽度涨落与相干效应,结果过高估计了俘获截面和非弹散射截面,而低估了复合核弹性散射截面。

1981年日本原子能研究所根据JENDL—1的数据,发表了快中子反应堆计算中最

重要的28种裂变产物数据的评价报告^[6]。这28种核是:

^{90}Sr , ^{93}Zr , ^{95}Mo , ^{97}Mo , ^{99}Tc , ^{101}Ru ,
 ^{102}Ru , ^{103}Rh , ^{104}Ru , ^{106}Pd , ^{108}Ru , ^{107}Pd ,
 ^{109}Ag , ^{129}I , ^{131}Xe , ^{133}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs ,
 ^{142}Nd , ^{144}Ce , ^{144}Nd , ^{145}Nd , ^{147}Pm , ^{147}Sm ,
 ^{149}Sm , ^{151}Sm , ^{153}Eu , ^{155}Eu 。

该报告认为,这28种核在大型快中子反应堆中大约占堆芯裂变产物宏观俘获反应的80%。

评价方法是根据实验测量数据与理论计算结果综合进行的。在理论计算中,对截面平滑变化的能区采用光学模型与统计理论,对共振区则采用修正的多能级Breit—Wigner公式。评价中所用的各种物理参数和能级图与其他数据库(如ENDF/B—4, CEA, CNE—2和RCN—2等)的评价中所采用的一致。评价的结果与其他评价数据和新近测量的数据作了比较^[6]。其中,对实验情况的比较主要有:总截面实验数据的现状;直至1980年3月的中子俘获截面实验数据现状;非弹性散射实验数据现状,等等。理论计算情况的比较主要有:S波和S波中子强度函数;能级密度参数;辐射宽度、平均能级间隔和 γ 强度函数;有效散射半径;共振参数现状;俘获共振积分;以及对28个核评价所用的能级图等等。

各国的裂变产物评价数据差别很大,例如在30KeV, ENDF/B—4和JENDL—1对 ^{147}Pm 的评价总截面相差达80%而对2MeV的俘获截面进行比较, ENDF/B—4的 ^{145}Nd 俘获截面为JENDL—1的3.61倍。

三、理论计算概要

由于实验上的困难,现有的裂变产物中子数据多来源于理论计算。其理论计算概要如下。

1. 光学模型

在中子能量的中、高能区,截面随能量

变化可用平滑曲线近似, 并采用光学模型和统计理论计算。

国外采用的光学模型的唯象光学势参数公式^[6]与国内对反应堆结构材料的中等质量核的理论计算所采用的球光学模型唯象光学势参数公式^{[7][8]}有许多类似之处。

计算过程中, 首先使总截面的理论值与实验值的趋势一致, 然后调整弹性散射、非弹性散射以及弹性散射角分布的理论值与实验值之间的一致性。BNL—325^[9]、ENDF/B—4、CEA、CNEN—2、RCN—2和JENDL—1等的计算结果表明, 总截面符合较好, 其他数据均有较大差异。

2. 统计理论

裂变产物对中子的俘获、复合弹性散射、非弹性散射等截面的计算, 采用建立在Moldauer方法^{[10][11]}基础上的修正统计模型, 此模型考虑到了中子宽度涨落与能级之间的干涉。但忽略了直接俘获与集体俘获过程, 这使几个MeV以上的俘获截面的计算值偏低。另外, 还忽略了 $(n, 2n)$ 和 (n, p) 等, 导致过高估计了高于这些反应阈能的非弹性散射截面。然而, 对于反应堆计算来说这些缺点并不严重, 因为在那样高的能区, 裂变产物的截面很少影响反应堆的计算。

3. 能级密度

统计模型计算中所需要的复合核与剩余核的能级密度, 一般采用稍作修正的^[12]Gibert和Cameron的能级密度公式^[13]。但各国在计算能级密度时使用的公式都不尽相同, 文献[5]中讨论了这些差别。

4. 多能级Breit—Wigner公式

当中子能量较低——热能区和共振能区, 裂变产物中子数据对热中子反应堆计算非常重要。但在此能区采用唯象光学势的光学模型不适用。对共振能区ENDF/B—4中采用了修正B—W公式。应用多能级B—W公式时, 各能级的总角动量 J 必须已知, 但对大多数核来说, J 并不总是给定的, 于是

对各能级统计地取一个 J 值, 得到俘获截面和弹性散射截面。

文献[5]给出了单能级与多能级B—W公式计算的弹性散射截面, 对于¹⁰⁹Ag, 两种公式计算的结果比较一致。

5. 连接能

在某些合理的能区, 共振截面将平滑地与统计理论计算结果相连接, 其连接处的能点叫连接能。连接能由下述方法确定:

①、对某些核如果没有可获得的共振参数, 则取连接能为 $E_c = D_{0.65}/2$, 其中 $D_{0.65}$ 是S波共振的平均能级间隔。

②、如果只有几条观察到的共振能级, 则取连接能 $E_c = E_{max} + D_{0.65}/2$, 其中 E_{max} 是观察到的最高共振能级的能量。

③、有许多观察到的共振能级, 连接能取共振区的上限。

但是, 由现有的评价数据看来, 采用上述方法给弹性散射截面带来很大的差异。不过, 低能弹性散射截面的这些差异对反应堆计算并不重要。

四、问题与展望

1. 当前评价数据的分歧

由于对裂变产物中子数据的研究工作还很不够, 各评价数据还存在着较大的分歧。

例如总截面: 高能时符合较好, 低能时分歧较大。表一比较了几种核在能量2MeV和30KeV的总截面。由表中可见, 在30KeV时, 总截面的评价数据最大分歧达到80%。

又如俘获截面: 仍以能量30KeV和2MeV为例, 在30KeV时, 各评价数据比较接近, 而在2MeV时有些核的俘获截面相差很大。例如¹⁵⁵Eu, ENDF/B—4给出的俘获截面值为JENDL—1给出值的3.34倍。

再如非弹性散射截面:

按典型的大型快中子反应堆裂变谱平均的非弹性散射截面比较, 各评价数据的分歧在15%以内; 一般地CNEN—2给出的值比

JENDL-1的值大; ENDF/B-4 的值一般低于JENDL-1的值; 对于质量数大于147

的核的非弹散射截面, 比 A 小于147的非弹散射截面大。

表一 在30KeV和2MeV时的总截面比较

核	能量 (MeV)	ENDF/B-4	CNEN-2	RCN-2	JENDL-1
^{95}Mo	0.03	8.01(0.96)*	8.27(0.9)	8.53(1.00)	8.51
	2	4.50(0.96)	4.69(1.00)	4.47(0.69)	4.67
^{145}Nd	0.03	16.7(1.69)	14.6(1.43)	10.1(1.02)	9.87
	2	7.74(1.07)	6.99(1.00)	6.99(1.00)	6.99
^{143}Nd	0.03	13.6(1.43)	13.8(1.50)	9.23(1.00)	9.21
	2	7.34(1.06)	6.92(1.00)	6.92(1.00)	6.92
^{147}Pm	0.03	19.7(1.79)	13.6(1.24)	9.85(0.90)	11.0
	2	7.39(1.05)	7.05(1.00)	7.05(1.00)	7.05

*)表中括号内的数值是对 JENDL-1的比较, 其余类推。

2. 实验测量的困难

对于反应堆运行和控制 的物理特性来说, 裂变后几分钟乃至几秒钟以内的初级产物是很重要的。例如, 研究反应堆的动态控制特性, 必须了解几秒钟 以内的反应性响应; 中毒、碘坑特性要由几小时以内的反应性变化决定。而那些长寿命的和稳定的核, 只是在研究燃耗和结渣等长期反应性效应时显得重要。

但是, 初级裂变产物都是不稳定的, 而且大部分是短寿命的。对它们的中子数据的实验测量十分困难。当前的实验测量多数是对这些初级产物经一系列 β 衰变后生成的稳定核进行的, 而且只是在有限的中子能点进行了实验测量。对不稳定核 (尤其是对短寿命核) 实验数据极少。因此, 为了系统地研究裂变产物的中子数据, 十分需要理论计算的配合。

3. 行一步工作的展望

当前国内的工作首先可以广泛收集国外的实验数据进行综合评价, 并利用国内现有的实验条件 (反应堆、加速器等) 进行实验检验, 为进一步发展实验工作打好基础。

与此同时, 应注意开展理论与计算工作。根据国外研究情况, 理论研究的改善主要有以下几方面:

改进光学势参数。如前述的球光学势对 ^{133}Cs 和 ^{153}Eu 等, 过高估计了S波强度函数, 对 ^{101}Ru 、 ^{103}Rh 、 ^{109}Ag 、 ^{145}Nd 和 ^{149}Sm 等, 又过低估计了S波强度函数。有效散射半径 R 在 $A = 147$ 处不连续, 引起总截面和弹散截面的误差。为了避免这些不合理性, 各国都采用了一些改进措施, 如Delaroche等的所谓SPRT模型^[14], 取得了一定的成功。

能级图的修订。这对俘获截面有较大的影响, 例如 Matumoto 等^[15]用新的实验数据修订了能级图, Iijima^[16]指出, 在MeV能区对 ^{103}Rh 的俘获截面改善约14%。

考虑直接俘获作用。因为统计模型只计及复合核吸收反应, 低估了俘获截面。实际上在几个MeV以上能区的直接俘获过程是不能忽视的。

国内对裂变产物稳定核的计算, 正着手采用球光学模型理论、带宽度涨落的 Hauser—Feshbach 统计理论和包括予平衡发射机制的蒸发模型理论, 而对不稳定核则采用

微观光学势以代替唯象光学势。

参 考 文 献

1. Климов А.Н., Ядерная Физика и Ядерные Реакторы, М., Атомиздат, 1971.
2. Н. Г. Гусев, П. М. Рубцов, В. В. Коваленко, В. М. Колобашкин, Радиационные Характеристики Продуктов Деления Справочник, Атомиздат, 1974.
3. 裂片元素 (译文集), 原子能出版社, 1978.
4. Samuel Glasstone, Milton C. Edlund, The Elements of Nuclear Reactor Theory, 1955.
5. JAERI—1268, 1981.
6. Japanese Nuclear Data Committee, Evaluation of Fission Product Nuclear Data for Fast Reactor, JAERI—M5752, 1974.
7. 万鸿声、周兰, hsj—78219, 1980.
8. 申庆彪、赵小麟、顾英圻、卞晓云, hsj—78224, 1980.
9. Mughabgab S. F. and Garber D. I., Neutron Cross Section, Vol. 1 Resonance Parameters, BNL—325, 3rd Edition, 1973.
10. Moldauer P. A., Phys. Rev., 1961.
11. Moldauer P. A., Phys. Rev., 1964.
12. Igarasis., J. Nucl. Sci. Technol., 1975.
13. Gilbert A. and Cameron A. G. W., Can. J. Phys., 1965.
14. Delaroche J. P., Lagrange C. and Salvay J., Nuclear Theory in Neutron Nuclear Data Evaluation, Proc. IAEA Consultants Meeting, Trieste, 8—11 Dec. 1975, Vol. 1, P. 251, IAEA—190 (1976).
15. Matumoto Z., Murata T. and Nakasima R., Level Schemes for some Fission Product Nuclides—Comparison of Level Schemes used by JAERI and Petten, JAERI—M 7734 (1978).
16. Iijima S., Fission Product Nuclear Data (FPND)—1977, Proc. 2nd IAEA Advisory Group Meeting on Fission Product Nuclear Data, Petten, Netherlands, 5—9 Sept. 1977, Vol. 1, P. 279, Review Paper No. 9, IAEA—213 (1978).

人物介绍

GSI的新任所长

鲍尔·肯勒教授

最近, 德国联邦政府和黑森州政府通过了一项任命, 来自慕尼黑的鲍尔·肯勒教授接替楚·普特利茨教授, 担任塔姆城GSI研究所的业务所长。后者从去年冬季学期开始, 调往海德堡大学任校长。

新所长已于数周前与职工们见面。政府研究部长海茨·里森和黑森州财政部长海锐伯特·莱茨已公开宣布同意这项任命。对于这次领导阵容的更换, 两位部长说GSI今后将由联邦政府和州政府共同提供经费。其中, 联邦政府提供90%, 州政府提供10%。

鲍尔·肯勒教授不仅担任业务所长, 还同时担任这个科研单位的科学理事会主席。GSI的行政所

长仍由舒夫博士担任。鲍尔·肯勒教授出生于联邦德国威海姆, 在慕尼黑上大学。他的教授生涯开始于塔姆城的工学院。在取得授课资格后, 他成为该院的一名出色教授, 并于1963年至1965年升为射线物理和原子核物理的讲座教授。随后, 这位现年53岁的物理学家又调往慕尼黑工业大学, 并担任慕尼黑大学和慕尼黑工大共管的加速器实验室的主任。在他的科研生涯中, 他一直从事重离子的加速和贮存工作。

联邦政府研究部在一次通知中提出, 实现GSI加速器设备的扩建是鲍尔·肯勒教授的一项重要使命。该加速器在发现107和109号人工合成重离子元素方面曾经作出了重要贡献。

(周云雁译自“GSI Nachrichten 1—84”)