TMSR-SF 高温下多群核数据库的研究

周雪梅 1,2 王小鹤 1,2,3

1 (中国科学院上海应用物理研究所 嘉定园区 上海 201800) 2 (中国科学院核辐射与核能技术重点实验室 上海 201800) 3 (中国科学院大学 北京 100049)

摘要 基于最新发布的评价核数据库 ENDF/B-VII.1,简要介绍了利用标准程序 NJOY 加工固态燃料钍基熔盐 堆(Thorium Molten Salt Reactor-Solid Fuel, TMSR-SF)中子能谱测量所需温度下多群截面库的过程。详细分析了两个典型的核素加工所得核反应道的多群截面与温度的关系,并将不同温度下的截面库用于中子能谱测量,分析了中子能谱测量结果的误差与温度所引起截面库变化的关系。结果表明,不同类型核反应道的截面所受温度影响不同,特别是核素对超热中子的截面存在共振峰问题受温度影响最大,这是由于多普勒效应影响,所以中子能谱测量结果受核反应道选择的影响符合物理规律,加工所得 873 K 下的核截面库可用于 TMSR-SF 相关中子能谱测量。

 关键词
 ENDF/B-VII.1,中子能谱,多群核截面加工,TMSR-SF 反应堆

 中图分类号
 TL329

 DOI: 10.11889/j.0253-3219.2014.hjs.37.120602

"未来先进核裂变能——钍基熔盐堆核能系统 (Thorium Molten Salt Reactor System, TMSR)"是中 国科学院首批启动实施的战略性先导科技专项,依 托中国科学院上海应用物理研究所实施。TMSR-SF 是一种以液态熔盐为冷却剂的实验堆, 拟采用活化 法并利用基于迭代原理的软件 SAND-II 解谱以得到 TMSR-SF 待测点的中子能谱。中子能谱测量点的环 境温度约为873 K^[1],所以首先需要知道在相应环境 温度下具有各种不同能量的中子和各种物质相互作 用的核反应及其相应的微观截面和有关参数,它是 SAND-II 解谱所需的基本数据,也是计算的出发点 和依据。具有一定精确度的核数据库非常重要,因 为它是获得正确测量和计算结果的前提和基础。本 工作目的是利用截面加工软件 NJOY 加工 TMSR-SF 环境温度下 SAND-II 解谱所需的核反应 道截面, 并证明所加工截面的必要性和正确性。

1 TMSR-SF 中的多群核截面加工需求

TMSR-SF 拟定中子能谱待测点空间比较小,环境温度达 873 K,通过对多种中子能谱测量方法的比较,拟采用活化法和基于迭代法的解谱软件 SAND-II 完成中子能谱的测量。活化与解谱的基本原理如下。

将一组活化截面已知的活化探测箔样品放入到 待测的中子场中辐照,则活化探测箔的单核饱和反 应率与待测中子能谱有:

$$A_i = \int_0^\infty \phi(E)\sigma_i(E) dE$$
 (*i*=1, 2, ..., *n*) (1)

式中, A_i 为第 i 个活化箔的单核反应率, s^{-1} ; $\phi(E)$ 为待测中子能谱, $n \cdot eV^{-1} \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$; $\sigma_i(E)$ 为第 i 个活化箔相应的核反应截面, cm^2 ; n 为所利用核反应道的数目。

由于式(1)在实际中无法实施,故将式(1)离散化处理,得到求和形式的式(2):

$$A_i = \sum_{j=1}^{m} \phi_j \sigma_{i,j}(E) \Delta E_j$$
 (i=1, 2, ..., n) (2)

式中, ϕ_i 表示待测中子谱的第 j 群平均中子通量; $\sigma_{i,j}(E)$ 为第 i 个活化探测箔在第 j 群中子能量间隔内的平均核反应截面; ΔE_j 为第 j 群中子的能量间隔;m 代表划分的能群数目 $^{[2]}$ 。

SAND-II 是基于迭代法实现解谱,解谱的基本原理与过程^[3-4]如下: 首先根据式(2),将待测中子谱能量区间划分为m个能群,如果有n个活化探测器(n实际为反应道的数目,一般反应道的数目要大于活化探测器的数目),由此得到n个彼此独立的

中国科学院战略性先导研究项目(No.XDA02001003)资助

第一作者:周雪梅,女,1979年出生,2013年于中国科学院上海应用物理研究所获博士学位,研究领域为反应堆物理及参数测量,E-mail: zhouxuemei@sinap.ac.cn

收稿日期: 2014-09-15, 修回日期: 2014-10-08

线性方程组。利用假定初始输入谱 $\phi_j^{[0]}(E)$,经过多次的迭代及与测量值的比较,最终得到满足要求的中子能谱。

在中子能谱测量中,由于所划分的能群和所采用的反应道各不相同,那么所对应的核反应截面也不同。而作为高温堆的 TMSR-SF,拟将中子能量划分为 642 群,加工得到较精确的群截面是测量中子能谱的关键步骤之一。

2 SAND-II 解谱中所需群截面的加工过程

TMSR-SF 中子能谱测量中所需的温度为 873 K, 642 群的多道核反应截面主要是利用核数据库 ENDF (Evaluated Nuclear Data File)的数据,通过 NJOY 加工程序得到。自制库中,温度点分别为 293 K 和 873 K, 把中子能量 10^{-5} eV-20 MeV 划分为 642 群,核反应道共 80 个,涵盖了 TMSR-SF 的中子能谱的能量范围。

ENDF 是美国 BNL 所提供的评价核数据库,被广泛用于核反应堆设计的截面库, ENDF/B-VII.1 是2011 年发布的最新版本。相对于 2009 年发布的ENDF/B-VII 而言, ENDF/B-VII.1 的中子库更加完善, 由原库的 293 个评价核增加到现库的 423 个评价核^[5]。NJOY^[6]是一个将 ENDF 格式的核数据转化为可供各种计算程序使用的数据库格式的标准程序。NJOY 使用数据流模型处理评价核数据。每个模块从一个或多个输入文件中读入、转换数据,并将结果写入一个或多个输出文件。加工过程使用的程序有 NJOY,并利用 Python、Fortron 进行编程以获取所需数据。加工中所使用的 NJOY 中的主要模块及其功能描述如下:

(1) NJOY 是显示经过其他模块的数据流,含有

其他模块通用的函数库和子程序库;

- (2) RECONR 是共振重造,利用 ENDF 中的共振参数和插值方法重新构建点截面;
- (3) BROADR 是多普勒展宽,将共振重造后的 截面展宽到所需温度下的截面;
 - (4) UNRESR 是不可分辨共振区数据处理;
 - (5) GROUPR 是多群截面加工;
 - (6) MODER 是转换 ENDF 文件。

加工的主要流程如图 1 所示。

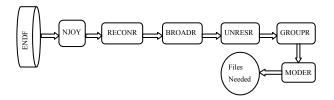
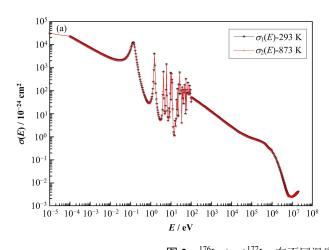


图 1 NJOY 加工所需核反应截面文件的流程图 **Fig.1** Flow chart of nuclear cross section made by NJOY.

3 典型群截面加工的结果与分析

在 TMSR-SF 的中子能谱测量中, 要将 642 个能群、80 个反应道都要加工为 873 K 时的截面,不能一一叙述,这里以热中子能谱区和快中子能谱区的两个典型核的截面加工结果进行分析。

(1) 以在热区反应截面较大,并且在中能区出现许多共振峰的 176 Lu(n, γ) 177 Lu 为例分析截面加工的结果。图 2 为 176 Lu(n, γ) 177 Lu 在不同温度下核反应截面与中子能量的对应关系和核反应截面差异。图 2(a)中, $\sigma_1(E)$ -293 K 和 $\sigma_2(E)$ -873 K 分别表示 176 Lu(n, γ) 177 Lu 在 293 K 和 873 K 温度下的核反应截面;图 2(b)中, $\Delta\sigma(E)/\sigma_1(E)$ =[$\sigma_2(E)$ - $\sigma_1(E)$]/ $\sigma_1(E)$ × 100%。



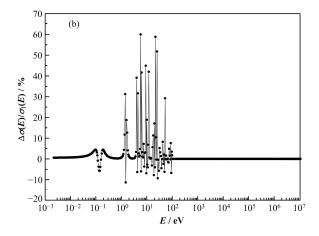


图 2 176 Lu(n, γ) 177 Lu 在不同温度下的核反应截面(a)和差异(b) **Fig.2** Nuclear cross section (a) and difference (b) of 176 Lu(n, γ) 177 Lu at different temperatures.

从图 2 可以看出,在 293 K 和 873 K 这两种温度下,¹⁷⁶Lu(n,γ)¹⁷⁷Lu 的核反应截面在热区和快区基本不变;在共振区存在共振核反应,由于温度的增加使共振峰值减小;在共振峰密集的区域,共振峰的宽度将随温度而增加,导致在共振区,温度对核反应截面的影响很大。多普勒效应是由于靶核的热运动随温度而增强,共振峰的宽度随温度而增加,同时峰值截面也逐渐减小。由此可见,截面加工的结果与多普勒效应一致,加工的过程正确。

(2) 以仅在快区才有阈反应的 ⁵⁴Fe(n,p)⁵⁴Mn 为例分析截面加工的结果。图 3 给出其在不同温度下的核反应截面。

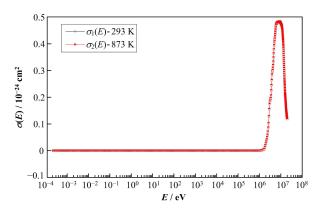


图 3 ⁵⁴Fe(n,p)⁵⁴Mn 在不同温度下的核反应截面 **Fig.3** Nuclear cross section of ⁵⁴Fe(n,p)⁵⁴Mn at different temperatures.

从图 3 可以看出,在 293 K 和 873 K 这两种温度下, 54 Fe(n,p) 54 Mn 的核反应截面在快区很小,所

以通过两种温度的计算,其截面变化仅为 0.1%,可以认为基本不变,即温度对核反应截面较小的(n,p)反应基本没有影响。

4 中子能谱测量验证加工截面

为了验证加工截面的正确性,在一研究堆的辐照腔内进行了中子能谱测量,待测点的环境温度约293 K。待测点由于铅的屏蔽作用,部分热中子被屏蔽掉。考虑到待测点中子能谱的特点,本次实验选取了15 种活化箔(18 个反应道), Mg 和 Mo 活化箔直径分别为8 mm,其余活化箔直径为20 mm。活化箔的特性参数及测量所得单核反应率如表2所示。被辐照后的箔片经过适当冷却后,根据探测器对箔片尺寸的标定,放入高纯锗探测器上对γ进行测量。测量前高纯锗探测器已经完成效率刻度。单核反应率根据式(3)计算得到:

$$A_{i} = \frac{C \lambda_{i}}{\gamma_{d} \varepsilon N_{i} \left(1 - e^{-\lambda_{i} t_{0}}\right) e^{-\lambda_{i} (t_{1} - t_{0})} \left(1 - e^{-\lambda_{i} (t_{2} - t_{1})}\right)}$$
(3)

式中,C 为探测器测得的净峰面积总计数; γ_d 为待测 γ 射线的分支比; ϵ 为对应的探测效率; N_i 为 i 核数目, N_i =(m_i / M_i) θ_i ×6.023×10²³; m_i 为 i 箔质量; M_i 为 i 核同位素原子量; θ_i 为 i 核同位素的含量; λ_i 为 i 核衰变常数; t_0 为辐照时间; t_1 - t_0 为冷却时间; t_2 - t_1 为测量时间。

表 2 活化箔参数与测量所得反应率 Table 2 Characteristic parameters of each activated foil and measured reaction rate.

Tubic 2 Characteristic parameters of each activated for and measured reaction face.							
核反应	质量	丰度	γ射线能量	$\gamma_{ m d}$	单核反应率		
Nuclear reaction	Mass / mg	Abundance / %	Energy of γ / keV	/ %	Mononuclear reaction rate / s ⁻¹		
⁴⁶ Ti(n,p) ⁴⁶ Sc	171.15	8	889.26	99.98	2.046 5×10 ⁻¹⁶		
$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	171.15	7.3	159.4	68	$3.643~0\times10^{-16}$		
$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	171.15	73.8	983.4	99.99	$6.266 6 \times 10^{-18}$		
27 Al(n,a) 24 Na	84.21	100	1 368.55	100	$1.468\ 0\times10^{-17}$		
63 Cu(n, γ) 64 Cu	141.55	69.17	1 345.76	0.49	$7.262\ 6\times10^{-15}$		
⁵⁹ Co(n,γ) ⁶⁰ Co	145.55	100	1 332.51	99.98	4.792 3×10 ⁻¹⁴		
54 Fe(n,p) 54 Mn	264.05	5.9	834.81	99.98	$1.358~8 \times 10^{-15}$		
56 Fe(n,p) 56 Mn	264.05	91.72	846.6	99	2.200 1×10 ⁻¹⁷		
24 Mg(n,p) 24 Na	265.14	78.99	1 368.55	100	2.954 1×10 ⁻¹⁷		
64 Zn(n,p) 64 Cu	446.29	48.6	1 345.76	0.49	$6.195\ 7\times10^{-16}$		
115 In $(n,\gamma)^{116m}$ In	0.099 51	95.7	1 293.54	85	2.255 5×10 ⁻¹³		
45 Sc $(n,\gamma)^{46}$ Sc	4.656 0	100	1 120.52	99.99	$6.393~3\times10^{-15}$		
23 Na(n, γ) 24 Na	2.551	100	1 368.55	100	$2.802\ 1\times10^{-16}$		
164 Dy $(n,\gamma)^{165}$ Dy	8.805	28.2	361.67	0.84	2.651 5×10 ⁻¹³		
176 Lu(n, γ) 177 Lu	6.011	2.6	208.36	11	7.651 7×10 ⁻¹³		
55 Mn(n, γ) 56 Mn	0.207 3	100	846.6	99	$3.706 \ 9 \times 10^{-14}$		
197 Au(n, γ) 198 Au	0.065 47	100	411.8	95.53	$3.525\ 1\times10^{-13}$		
98 Mo(n, γ) 99 Mo	22.65	24.13	140.46	90.9	1.388 7×10 ⁻¹⁴		

待测点由于铅的屏蔽作用,使得 10^{-5} -3.6× 10^{-3} eV 能量区间的绝大部分中子被屏蔽,所以这区间的中子数目在模拟计算时设为 0。利用 MCNP 模拟计算待测点 3.6× 10^{-3} -2× 10^{7} eV 能量区间的中子能谱,将此作为初始谱。利用测量所得各反应道的单核反应率、初始谱、加工所得的核截面库及解谱软件 SAND-II,得到在实验环境温度约293 K 时各反应道的单核反应率与测量值如表 3 所示。表 3 中,A(I)表示测量所得第 I 个反应道的单核反应率;A'(I)表示解谱计算后第 I 个反应道的单核反应率; δ =100×[A(I)-A'(I)]/A(I)。

表 3 测量与解谱所得单核反应率的比较 Table 3 Comparison of mononuclear reaction rates between the measured and the spectrum unfolding values.

反应道	A(I)	A'(I)	δ/%
Nuclear reaction			
$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	$2.046\ 5\times10^{-16}$	$2.024\ 2\times10^{-16}$	1.090 9
$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	$3.643~0\times10^{-16}$	$3.551\ 1\times10^{-16}$	2.521 5
48 Ti(n,p) 48 Sc	$6.266~6\times10^{-18}$	$6.948\ 1\times10^{-18}$	10.875 5
27 Al $(n,\alpha)^{24}$ Na	$1.468~0 \times 10^{-17}$	$1.373\ 1\times10^{-17}$	6.464 9
63 Cu(n, γ) 64 Cu	$7.262~6 \times 10^{-15}$	$7.407\ 4\times10^{-15}$	1.993 9
59 Co(n, γ) 60 Co	$4.792\ 3\times10^{-14}$	$5.007\ 5\times10^{-14}$	4.489 7
54 Fe(n,p) 54 Mn	$1.358~8 \times 10^{-15}$	$1.418\ 5\times10^{-15}$	4.394 0
56 Fe(n,p) 56 Mn	2.200 1×10 ⁻¹⁷	$2.064\ 5\times10^{-17}$	6.161 6
24 Mg(n,p) 24 Na	$2.954\ 1\times10^{-17}$	$3.128\ 2\times10^{-17}$	5.893 4
64 Zn(n,p) 64 Cu	$6.195\ 7\times10^{-16}$	$6.161\ 2\times10^{-16}$	0.557 0
115 In $(n,\gamma)^{116m}$ In	$2.255\ 5\times10^{-13}$	$2.327\ 1\times10^{-13}$	3.172 3
45 Sc $(n,\gamma)^{46}$ Sc	$6.393~3\times10^{-15}$	$6.292\ 3\times10^{-15}$	1.579 0
23 Na $(n,\gamma)^{24}$ Na	$2.802\ 1\times10^{-16}$	$2.794\ 7\times10^{-16}$	0.265 0
164 Dy $(n,\gamma)^{165}$ Dy	$2.651\ 5\times10^{-13}$	$2.671~8 \times 10^{-13}$	0.767 4
176 Lu(n, γ) 177 Lu	$7.651\ 7\times10^{-13}$	$7.644~0\times10^{-13}$	0.100 6
55 Mn(n, γ) 56 Mn	$3.706 \ 9 \times 10^{-14}$	$3.486\ 44\times10^{-14}$	5.947 3
197 Au(n, γ) 198 Au	$3.525\ 1\times10^{-13}$	$3.607\ 1\times10^{-13}$	2.326 6
⁹⁸ Mo(n,γ) ⁹⁹ Mo	1.388 7×10 ⁻¹⁴	1.447 4×10 ⁻¹⁴	4.228 4

从表 3 可以看出,除 ⁴⁸Ti(n,p) ⁴⁸Sc 外的各反应道,测量与解谱所得单核反应率的差异基本都在 10%以内。可以判断 ⁴⁸Ti(n,p) ⁴⁸Sc 这个反应道测量中的误差较大,为了得到更为接近的中子能谱,舍弃这个反应道,再次利用软件解谱。

将除 ⁴⁸Ti(n,p)⁴⁸Sc 外的各反应道、两种温度下的 多群核反应截面库及初始模拟谱代入解谱程序中, 以分析不同数据库所引起的中子能谱解谱结果的差 异,图 4 中展示了初识谱与不同温度下的解谱结果。

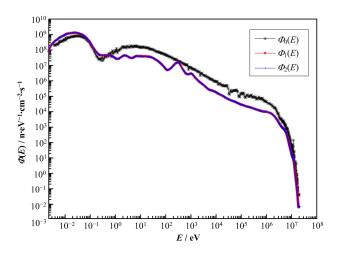


图 4 待测点的中子能谱解谱结果
Fig.4 Unfolding results of neutron energy spectrum in needed.

图 4 中, \mathbf{o}_0 表示模拟所得初始谱; \mathbf{o}_1 表示调用 293 K 下的核截面库所得的解谱结果; \mathbf{o}_2 表示调用 873 K 下的核截面库所得的解谱结果,但是图 4 中看不出解谱结果的差异。图 5 展示了两种温度下的核截面所引起的解谱结果的差异。

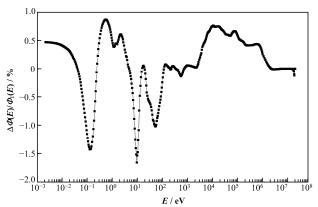


图 5 两种温度下的核截面所引起的解谱结果的差异 Fig.5 Difference of unfolding results caused by nuclear cross sections at two different temperatures.

图 5 中, $\Delta \Phi(E)/\Phi_1(E)=(\Phi_2(E)-\Phi_1(E))/\Phi_1(E)\times 100\%$ 。从图 5 中可以看出,两种温度下的核截面库引起的中子能谱差异在 1%-2%。

由表 3 和图 4 可知,单核反应率的测量结果与解谱结果相对误差的平均值为 3.49%,此次解谱结果比较接近实际的中子能谱,表明在 293 K 温度下加工的核截面库是正确的。由于中子能量所划分的群、所采用的核反应道及试验环境的温度不同,在解谱中所需加工的核截面库有所差异。由于在873 K 与 293 K 温度下加工核截面库的方法一样,所以 873 K 温度下的核截面库是正确的。由图 5 可以看出,差异出现比较大的区域是共振区,说明高

温引起的多普勒效应在核反应截面比较大的共振区应该考虑,否则会影响中子能谱的测量结果。由于本次实验采用的共振区的核反应道数目不多,故不同温度下的核截面库引起的解谱结果在总体上差异不大。TMSR-SF是热堆,中子能谱待测点热中子所占份额达90%,拟采用较多热区和共振区反应截面较大的核反应道,高温对核截面的影响较大,进而影响中子能谱测量的准确性。

5 结语

本工作介绍了 TMSR-SF 核截面库加工的必要性和 NJOY 加工测量中子能谱所需的核反应截面库的流程,加工了两种温度下 80 个反应道的多群截面库,并将所加工的核反应截面库用于中子能谱测量的实验中,中子能谱测量结果表明加工核反应截面库的方法是正确的,所加工的高温下的核反应截面库可用于拟建的 TMSR-SF 中。

参考文献

1 周雪梅. 钍基熔盐堆中子能谱测量方法的研究[D]. 中 国科学院大学, 2013

ZHOU Xuemei. Study of neutron energy spectrum for Thorium Molten Salt Reactor[D]. University of Chinese Academy of Sciences, 2013

- Zhou X M, Liu G M, Li D, et al. Using activation method to measure neutron spectrum in an irradiation chamber of a research reactor[J]. Nuclear Science and Techniques, 2014, 25: 010603
- 3 邓勇军. 反应堆中子能谱测量技术研究[D]. 中国原子 能科学研究院, 2006
 - DENG Yongjun. Study of neutron energy spectrum measurement technology in the reactor[D]. China Institute of Atomic Energy, 2006
- 4 史永谦. 核反应堆中子学实验技术[M]. 北京: 中国原子能出版社, 2011: 343-345
 - SHI Yongqian. Experimental technology of neutronics in nuclear reactor[M]. Beijing: Atomic Energy of China Publishing Press, 2011: 343–345
- 5 李志峰, 于涛, 何丽华. 基于 ENDF/B-VII.1 的热化截 面库的加工方法研究[J]. 科学技术与工程, 2013, **13**(5): 1165-1169
 - LI Zhifeng, YU Tao, HE Lihua. Study for the processing method of thermalization cross section library based on ENDF/B-VII.1[J]. Science Technology and Engineering, 2013, **13**(5): 1165–1169
- 6 MacFarlane R E, Muir D W, Boicourt R M, et al. The NJOY nuclear data processing system[M]. Los Alamos National Laboratory, 2012: 19–371

Study on multigroup nuclear cross section library for TMSR-SF at high temperature

ZHOU Xuemei^{1,2} WANG Xiaohe^{1,2,3}

1(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Jiading Campus, Shanghai 201800, China)

2(Key Laboratory of Nuclear Radiation and Nuclear Energy Technology, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

3(University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract Background and Purpose: Thorium Molten Salt Reactor-Solid Fuel (TMSR-SF) is a new type reactor. The neutron energy spectrum, an important parameter for TMSR-SF, needs to be measured, although the environment temperature is very high. The needed libraries for the measurement must be processed due to the special measurement environment. Therefore, the processes and the accuracy for the cross section library are important to the measurement result. Methods: Based on the recently released ENDF/B-VII.1 library, the process of using NJOY to obtain multigroup cross section needed by the neutron energy spectrum measurement of TMSR-SF at certain temperature is introduced. The relationship between multigroup cross section for two typical nuclear reactions and the temperature is analyzed. Homemade libraries at different temperatures are used in the neutron energy spectrum measurement. The difference of the results for neutron energy spectrum with different libraries is shown. Results: Analysis results indicate that the temperature will affect the cross sections of nuclear reactions, especially on the nuclide section of epithermal neutron with resonance peaks due to Doppler effect. The result of neutron energy spectrum measurement is influenced by the selected nuclear reaction. The result accords with the relevant physical laws. Conclusion: The homemade library in 873 K can be used in the neutron energy spectrum calculation for TMSR-SF.

Key words ENDF/B-VII.1, Neutron energy spectrum, Multigroup nuclear cross section processing, Thorium Molten Salt Reactor-Solid Fuel (TMSR-SF)

CLC TL329