

文章编号: 1007-4627(2013)03-0374-05

# $n + {}^{233}\text{U}$ 裂变碎片质量分布的唯象模型研究

刘丽乐, 舒能川, 刘廷进, 孙正军, 吴锡真, 陈永静, 钱晶

(中国原子能科学研究院核数据重点实验室, 北京 102413)

**摘要:** 本模型基于裂变多通道无规颈断裂模型, 考虑宏观液滴能、壳效应能以及壳效应与温度的关系, 得到参数化的势能表示形式。通过拟合不同测量方法得到的实验数据(经过评价)获得3组模型参数。3组参数计算的碎片质量分布均很好地再现了不同能点的实验数据, 除了基于动能法实验数据得到的参数外, 其14 MeV的计算结果与实验数据符合较差。研究发现, 不同入射中子能量的裂变碎片质量分布有4个主要交叉点, 在交叉点之上的产额随入射中子能量增加减少, 之下的产额则随入射中子能量上升; 内侧(或外侧)的两个交叉点质量数之和近似等于裂变复合核的质量数; 不同裂变系统的重峰左侧的交叉点都保持在132附近。

**关键词:**  ${}^{233}\text{U}$ ; 裂变产额; 质量分布; Th/U循环

**中图分类号:** O571.4   **文献标志码:** A   **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.30.03.374

## 1 引言

核能是一种比较经济、安全和清洁的能源, 其中Th一直被认为是潜在的核能资源。Th本身不是裂变材料, 但其吸收热中子后经过两次 $\beta^-$ 衰变可转换为易裂变的 ${}^{233}\text{U}$ ( ${}^{232}\text{Th} + n \rightarrow {}^{233}\text{Th} \xrightarrow[22.3\text{min}]{\beta^-} {}^{233}\text{Pa} \xrightarrow[27\text{d}]{\beta^-} {}^{233}\text{U}$ )。理论上可建立Th/U循环的先进反应堆, 相比U反应堆具有相当大的优势。其中, 相关核数据(裂变产额、产额与入射中子能量的关系、质量分布等)是Th/U循环核燃料增殖与嬗变的重要数据基础, 其中包括 ${}^{233}\text{U}$ 中子诱发裂变的产额及产额能量关系数据。

现有的中子诱发 ${}^{233}\text{U}$ 裂变产额实验数据主要集中在热能点、裂变谱及14 MeV附近, 在8~13 MeV能区基本没有实验数据, 已测得的产额数据各家彼此分歧较大, 通过直接拟合实验数据无法给出产额能量关系, 有的走向也无法确定, 因而需要通过模型研究, 给出其他能点的产额。

由于微观裂变理论的复杂性, 尤其是核力问题和多体问题尚未解决, 至今还无法达到可实际应用的需求; 系统学方法由于缺乏物理基础, 推广到无实验测

量的核素、能区可靠性差。而唯象模型, 如Benlliure等<sup>[1]</sup>采用的方法, 综合系统学方法, 加入微观理论的基本物理思想, 简化了理论计算公式, 同时引入可调参数, 既有一定的物理基础, 又使计算大为简化, 从而达到可应用的目的。在以前工作中, 我们用唯象模型研究了 $n+{}^{235}\text{U}$ <sup>[2]</sup>和 $n+{}^{239}\text{Pu}$ <sup>[3]</sup>的裂变, 取得较为满意的结果。在本工作中, 该模型将用于中子诱发 ${}^{233}\text{U}$ 裂变碎片产额规律的研究。

## 2 数据基础

产额是指裂变核发生一次裂变产生某种产物核的几率, 其中累积产额是指裂变直接产生和由 $\beta^-$ 衰变累积到某特定核素的份额, 链产额指 $\beta^-$ 衰变链上最后一个稳定核的累积产额。本工作所采用的 $n+{}^{233}\text{U}$ 裂变累积产额和链产额实验数据, 主要从EXFOR库<sup>[4]</sup>和CINDA索引库<sup>[5]</sup>检索得到, 其次从网站上进行最新文献的搜索得到。本工作共搜集采用了40家实验测量的632个链产额数据, 涉及到73个质量链。其中, 利用放化法、直接 $\gamma$ 谱法、质谱法测量的有38家, 主要有:

收稿日期: 2012-12-18; 修改日期: 2013-04-03

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(91126010, U1230127, 91226102); 国防基础科研计划项目(B0120110034)

作者简介: 刘丽乐(1989-), 女, 山西运城人, 硕士生, 从事核数据研究; E-mail: lele19890521@163.com.

通信作者: 舒能川, E-mail: nshu@ciae.ac.cn

<http://www.npr.ac.cn>

## (1) 入射中子能量为热能点

主要有美国伊利诺伊大学(USAUI) WEHRING等<sup>[6]</sup>, 爱达荷核工业集团公司(USAMTR) LISMAN等<sup>[7]</sup>, 加拿大麦克马斯特大学(CANMCM) BIDINOS-TI等<sup>[8]</sup>测量的数据。

## (2) 入射为裂变谱中子

主要有美国爱达荷国家实验室(USAINL) MAECK等<sup>[9-10]</sup>测量的0.4, 0.7 MeV的实验数据, 德国卡尔斯鲁厄研究中心(GERKFK) KOCH等<sup>[11]</sup>测量的1.0 MeV的实验数据。

## (3) 入射为~14 MeV中子

主要有法国原子能委员会军用方向研究机构(CEA-DAM) LAUREC<sup>[12]</sup>测量的14.7 MeV实验数据, 美国阿肯色大学(USAARK) BORDEN等<sup>[13]</sup>测量的14.8 MeV实验数据, 美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室(USALRL) Nethaway等<sup>[14]</sup>测量的14.8 MeV实验数据。

动能法测量的数据有两家, 为俄罗斯奥布宁斯克物理能源科技研究所(CCPFEI)的SERGACHEV等<sup>[15]</sup>测量的0.45, 1.04, 1.45, 1.94, 2.54, 3.15, 3.97, 4.58和5.42 MeV的实验数据和SURIN等<sup>[16]</sup>测量的热能点和5.42 MeV数据。

文献资料上的产额数据有绝对产额、比值以及比值的比值。在利用实验数据调参之前对所搜集的实验数据进行了修正评价。一般评价步骤为: 数据取舍、数据修正、误差调整、画图分析比较再评价、同时评价和加权平均, 最终得到评价推荐值<sup>[17]</sup>。

### 3 唯象模型

通常, 钢系核形变至断前形状有3种路径(即3个模式): 超长形变(SL)、标准I(SI)和标准II(SII)形变裂变, 分别对应3种裂变模式<sup>[18]</sup>。其中, SL是对称裂变, 可由液滴模型描述, 相应的中子发射后的裂变碎片质量产额 $Y(A)$ 围绕中心点 $\frac{A_{\text{cn}} - \bar{\nu}}{2}$ 对称分布( $A_{\text{cn}}$ 为复合核的质量数,  $\bar{\nu}$ 为每次裂变放出的平均瞬发中子数); SI和SII是非对称裂变, 由壳修正引起, SI裂变的重碎片质量围绕~134分布( $A \sim 134$ 接近于50和82双满壳的球形幻核, 比较稳定), SII裂变的重碎片的质量围绕~140分布( $A \sim 140$ 有对应中子数 $N = 88$ 的形变的中子壳团)。

裂变产额为3个裂变模式的产额之和, 每个裂变模式可由类高斯分布来表示:

$$Y(E^*, N) = C_0 \sum_{i=1}^5 Y_i \exp \left[ \frac{-(N_i - N)^2}{\sigma_i^2} \right], \quad (1)$$

其中:  $i = 4(2)$ 为SI裂变重峰(及对称的轻峰)处的碎片产额分布;  $i = 5(1)$ 为SII的重峰(轻峰)处的产额分布,  $i = 3$ 为SL裂变的碎片分布。其中

$$Y_i = \exp \left( 2\sqrt{aE_i^*} \right) \quad (2)$$

为各裂变模式在断点的最大几率,  $a$ 为能级密度参数,  $E_i^*$ 为断点处系统激发能:

$$E_i^* = E_0^* - U, \quad (3)$$

$E_0^*$ 为形成复合核时的激发能, 近似为入射中子动能和复合核最后一个中子结合能之和,  $U$ 为系统势能, 由3个部分组成(对应3种裂变模式), 宏观液滴能和2个壳修正能:

$$U = E_{\text{mac}} + E_{\text{sh}, 1} + E_{\text{sh}, 2}. \quad (4)$$

理论上可以通过多维位能曲面或能量密度泛函的方法来求解该势能曲线, 但由于形变的复杂性目前离应用还有一定距离, 本工作用唯象方法对其进行参数化, 然后用拟合实验数据方法得到该参数, 参数化的能量表达式为

$$E_{\text{mac}} = C_{\text{mac}} \left( \frac{N_{\text{cn}}}{2} - N \right)^2, \quad (5)$$

$$E_{\text{sh}, i} = [\delta U_i + C_i(N_i - N)^2] \exp(-\gamma \epsilon), \quad i = 1, 2 \quad (6)$$

$C_{\text{mac}}$ 引用了Benlliure等<sup>[1]</sup>的工作:

$$C_{\text{mac}} = \frac{8}{N_{\text{cn}}^2} 10^{7.16993 - 0.26602 \frac{Z_{\text{cn}}^2}{A_{\text{cn}}} + 0.00283 \left( \frac{Z_{\text{cn}}^2}{A_{\text{cn}}} \right)^2}. \quad (7)$$

式(6)中:  $\delta U_i$ 为壳修正的势阱深度, 在壳 $N_i = 82$ 和88附近按抛物线展开;  $\exp(-\gamma \epsilon)$ 为壳修正随温度减弱因子,  $\epsilon$ 为修正前的系统能量,  $\gamma$ 为待定参数。

由于裂变断开时形变的复杂性和碎片所处为高激发态, 能级密度参数 $a$ 需要修正, 本工作采用复合核与碎片基态能级密度的组合, 表达为

$$a = \frac{A_{\text{cn}}}{10} + c_a \left[ a_0(A_{\text{frag}}) - \frac{A_{\text{frag}}}{10} \right], \quad (8)$$

其中:  $a_0$ 为从实验数据得到的碎片能级密度参数, 反映出核的壳效应,  $c_a$ 为待定参数。

当入射中子能量足够高时 ( $E_n > 6 \text{ MeV}$ )，复合核在裂变之前可能会先发射一个或几个中子，即  $(n, nf)$ ,  $(n, 2nf)$  和  $(n, 3nf)$  等裂变道会打开。本工作主要计算能量  $E_n < 20 \text{ MeV}$  中子诱发裂变碎片的质量分布，故最多考虑 4 个裂变道。实验中所测总的产额是各裂变道产额的截面权重之和：

$$Y_{\text{tot}}(E^*, N) = \sum_{i=1, 4} w_i Y_i(E_{0i}^*, N) \quad (9)$$

这里， $w_i = \frac{\sigma_{fi}}{\sigma_F}$  为各裂变道产额的权重，即各裂变道的分裂变截面与裂变总截面的比值。

综上所述，模型包含的参数有  $E_0^*$  复合核的激发能， $a$  裂变碎片能级密度参数， $C_{\text{mac}}$  描述宏观液滴能的系数， $N_3$  对称裂变质量分布最大几率点  $\frac{N_{\text{cn}} - \bar{v}_n}{2}$ 。需要实验数据来拟合确定的参数共 11 个：壳效应能的系数  $C_4$ ,  $C_5$  及相应的势阱深度  $\delta U_4$ ,  $\delta U_5$ ；归一化常数  $C_0$ ；可微调的壳效应位置  $N_4$ ,  $N_5$  ( $N_1 = N_{\text{cn}} - N_5 - \bar{v}_n$ ,  $N_2 = N_{\text{cn}} - N_4 - \bar{v}_n$ )；壳效应引起非对称裂变分布宽度参数  $\sigma_4$  和  $\sigma_5$ ；描述壳效应随激发能衰减的因子  $\gamma$  和能级密度参数的调节因子  $c_a$ 。

对于不同裂变道，相应的裂变核的  $A_{\text{cn}}$  和  $N_{\text{cn}}$  不同，激发能  $E_0^*$  也不同，需要分别处理。

## 4 结果

### 4.1 模型参数和势能曲线

本工作对实验数据进行了修正评价，根据测量方法进行分组：(1) 放射法测量数据；(2) 双动能法测量数据；(3) 全部测量数据。分别对这 3 组数据进行拟合调参，得到 3 组参数及约化  $\chi^2$  如表 1 所列。

表 1 拟合实验数据所得的 3 组模型参数

参数	放射法	双动能法	全部
$\delta U_5$	-5.402	-5.366	-5.468
$\delta U_4$	-3.901	-3.985	-3.692
$C_5$	0.051	0.078	0.039
$C_4$	0.084	0.227	0.026
$\sigma_5$	1.251	2.223	1.289
$\sigma_4$	0.819	4.673	0.213
$N_5$	87.85	88.05	88.39
$N_4$	81.50	82.03	81.28
$C_0$	1.233	1.221	1.223
$C_a$	$6.61 \times 10^{-4}$	-0.016	$-8.44 \times 10^{-3}$
$\gamma$	0.057	0.016	0.045
$\chi^2$	13	4.9	9.96

根据参数组 3，计算得到系统势能曲线如图 1 所示。

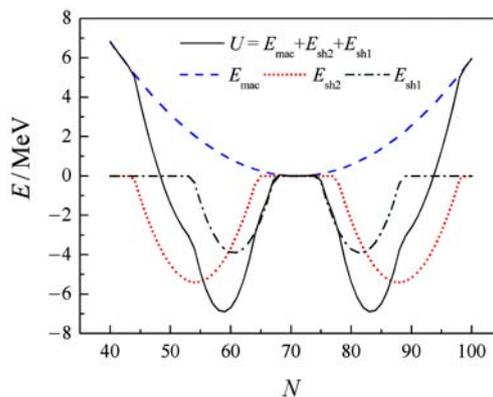


图 1 (在线彩图)  $n+^{233}\text{U}$  形变至断点时系统的势能曲线  $U$

### 4.2 质量分布

利用 3 组参数，分别计算了中子入射能量从热能点到 16 MeV 的质量分布。结果发现，中子入射能量较低时，3 组参数计算得到的质量分布较接近，如图 2 和 3 所示，热能点和 1 MeV 质量分布与实验数据符合较好。

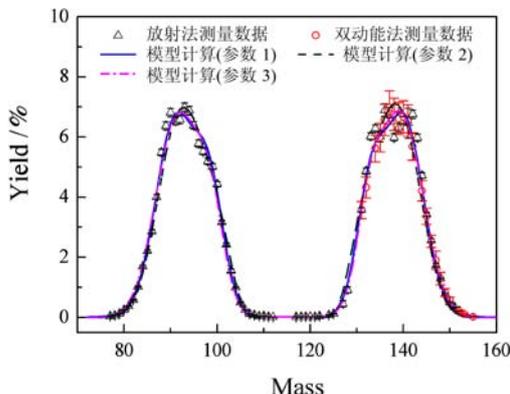


图 2 (在线彩图)  $n+^{233}\text{U}$  裂变热能点产额质量分布

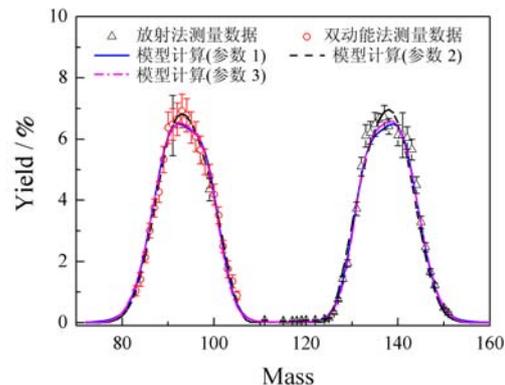


图 3 (在线彩图)  $n+^{233}\text{U}$  1 MeV 产额质量分布

14 MeV 附近, 如图4所示, 由放化法实验数据得到的模型参数, 其计算结果与实验数据符合较好, 而动能法参数的计算结果与实验数据符合较差, 在峰顶产额偏高, 谷底产额偏低, 这主要由于动能法数据中缺乏 14 MeV 附近的实验数据, 相应的参数不能很好地再现实验数据。

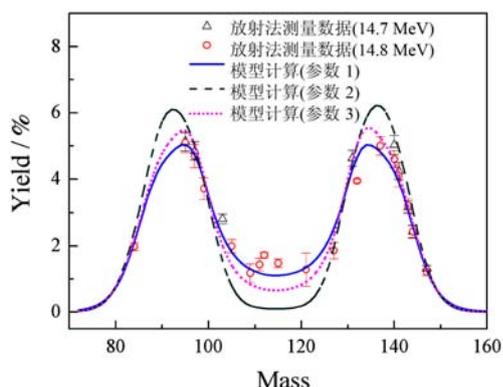


图4 (在线彩图)  $n+^{233}\text{U}$  14 MeV 质量分布

### 4.3 质量分布的交叉点分析

根据上述分析发现由放化法数据拟合参数得到的计算结果在 0~16 MeV 内较为准确, 图5显示了由放化法拟合参数计算的热能点到 16 MeV 质量分布随入射中子能量变化的关系图。从图中可以看出, 随着入射中子能量的升高, 产额增大和减小出现 4 个主要交叉点: 86, 101, 132 和 148。值得注意的是, 两外侧交叉点之和 (86 + 148) 为 234, 两内侧交叉点之和 (101 + 132) 为 233, 在误差范围内两组交叉点的和与裂变复合核质量  $A = 234$  相等, 交叉点位置的确定对于判断产额能量关系基本趋势有着极其重要的意义。综合以前的研究结果  $n+^{235}\text{U}$  [2],  $n+^{239}\text{Pu}$  [3] 裂变质量分布的第 3 交叉点分别为 133 和 132, 可以认为类

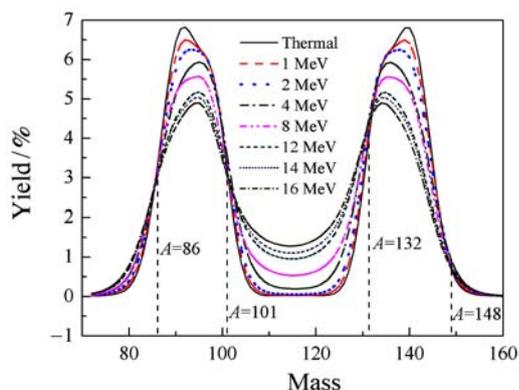


图5 (在线彩图) 模型计算的质量分布随能量的变化

似的裂变系统的第三交叉点在  $A = 132 \pm 1$  位置基本保持不变, 这可能与产物核的双满壳结构 ( $Z = 50$ ,  $N = 82$ ) 有关, 在低能 ( $< 20$  MeV) 时,  $A \sim 132$  的产物核具有很强的壳效应, 该裂变途径受激发能影响相对较小。

## 5 结论和讨论

本工作建立了研究  $n+^{233}\text{U}$  裂变的唯象模型, 其模型参数由拟合实验数据得到。计算结果表明, 由放化法数据拟合得到的参数所计算的各能点质量分布与实验数据符合较好, 各入射能量的质量分布有 4 个交叉点: 86, 101, 132 和 148, 内侧(外侧)两个交叉点之和近似等于裂变复合核的质量, 不同裂变系统的第 3 个交叉点保持在  $\sim 132$ , 这些对于以后研究产额能量关系的规律有重要意义。

由于模型拟合计算结果极大地依赖于实验数据及相应误差, 若实验上可测量更多更准确的数据将会得到更加可靠的结果。

此唯象模型已考虑了多模式裂变、多道裂变及能级密度、壳效应的影响, 用 11 个参数拟合实验数据取得较为满意的结果, 若在此模型中引入对效应, 可能会得到更准确的结果。

### 参考文献(References):

- [1] BENLLIURE J, GREWE A, JONG M de, *et al.* Nucl Phys A, 1998, **628**: 458.
- [2] SHU Nengchuan, CHEN Yongjing, LIU Tingjin, *et al.* J KPS, 2011, **59**: 1353.
- [3] CHEN Xiaosong. Study on Mass Distribution and Yield Energy Dependence for  $n+^{239}\text{Pu}$  Fission with Phenomenological Method[D]. Beijing: China Institute of Atomic Energy, 2012.(in Chinese)  
(陈笑松.  $^{239}\text{Pu}(n,f)$  裂变碎片的质量分布产额能量关系的唯象模型研究[D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2012.)
- [4] EXFOR: Experimental Nuclear Reaction Data [EB/OL]. [2011-09-21]. <http://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm>.
- [5] CINDA: Computer Index of Nuclear Reaction Data [EB/OL]. [2011-09-21]. <http://www-nds.iaea.org/exfor/cinda.htm>.
- [6] WEHRING B W, LEE S, SWIFT G. *et al.* Trans Ameri Nuc Soc, 1980, **35**: 551.
- [7] LISMAN F L, ABERNATHEY R M, MAECK W J. *et al.* Nuc Sci & Eng, 1970, **42**: 191.
- [8] BIDINOSTI D R, IRISH D E, TOMLINSON R H. Cana Chem, 1961, **39**: 628(13208).

- [9] MAECK W J. Conf on Nuclear Cross Sections and Technology, Washington, D. C., 1975, **1**: 378(13327).
- [10] MAECK W J, ERIKSON A L, TROMP R L. R, ENICO-1028, 1980.
- [11] KOCH L. Radiochimica Acta, 1981, **29**: 61(21155).
- [12] LAUREC J, ADAM A, DEBRUYNE T. R, CEA-R-5147, 1981(in French).
- [13] BORDEN K D, KURODA P K. Inorg Nucl Chem, 1969, **31**: 2623.
- [14] NETHAWAY D R, MENDOZA B. Phys Rev C, 1972, **6**: 1827.
- [15] SERGACHEV A I, DJACHENKO N P, KOVALEV A M, *et al.* J YF, 1972, **16**(3): 475.
- [16] SURIN V M, SERGACHEV A I, REZCHIKOV N I, *et al.* J YF, 1971, **14**(5): 935.
- [17] CHEN Yongjing, LIU Tingjin, SUN Zhengjun, *et al.* Nuclear Physics Review, 2012, **29**(2): 208.(in chinese)  
(陈永静, 刘廷进, 孙正军, 等. 原子核物理评论, 2012, **29**(2): 208.)
- [18] BROSA U, GROSSMAN S, MÖLLER A. Phys Rep, 1990, **197**: 167.

## Study on Mass Distribution of $n + {}^{233}\text{U}$ Fission with Phenomenological Model

LIU Lile, SHU Nengchuan, LIU Tingjin, SUN Zhengjun, WU Xizhen, CHEN Yongjing, QIAN Jing  
(China Nuclear Data Center, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

**Abstract:** Present model was based upon Brosa model, where macro energy, shell effect energy and its decreasing with system temperature were considered and parameterized. 3 sets of model parameters were obtained by fitting to 3 groups of evaluated experimental data, respectively, where the groups were classified by measured method: radiochemistry (RA) method, double kinetic energy (KE) method, and both (ALL). All the 3 sets of parameters could well reproduce the measured mass distributions on different energies, except the KE set on 14 MeV. The result shows the mass distributions mainly had 4 trend turning points, above which the yield decreasing and below which the yield increasing with energy. The sum of the 1st and 4th (or 2nd and 3rd) point positions was equal to the compound nuclei mass approximately. And the 3rd point was kept at  $\sim 132$  constantly for different fission systems  $n + {}^{233}\text{U}$ ,  $n + {}^{235}\text{U}$ ,  $n + {}^{233}\text{Pu}$ .

**Key words:**  ${}^{233}\text{U}$ ; fission yield; mass distribution; Th/U fuel cycle

**Received date:** 18 Dec. 2012; **Revised date:** 3 Apr. 2013

**Foundation item:** National Natural Science Foundation of China (91126010, U1230127, 91226102); Defense Industrial Technology Development Program (B0120110034)

**Corresponding author:** SHU Nengchuan, E-mail: nshu@ciae.ac.cn

<http://www.npr.ac.cn>