

文章编号: 1007-4627(2013)03-0379-05

^{232}Th 中子诱发裂变产额数据比对评价

舒能川, 刘丽乐, 刘廷进, 吴海成, 陈永静, 钱晶, 孙正军

(中国原子能科学研究院中国核数据中心, 北京 102413)

摘要: ^{232}Th 中子诱发裂变产额在 Th/U 燃料循环的核能开发中具有重要的意义, 在现有国际评价产额数据库基础上, 结合最新的实验数据, 对产物核的质量分布和反应堆计算所需的重点产物核进行了比对。这些产物核包括 ^{95}Mo , ^{99}Tc , ^{101}Ru , ^{103}Rh , ^{109}Ag , ^{133}Cs , ^{147}Sm , ^{149}Sm , ^{150}Sm , ^{151}Sm , ^{152}Sm , ^{143}Nd , ^{145}Nd 和 ^{153}Eu 等, 对有分歧的 ^{133}Cs , ^{152}Sm 和 ^{153}Eu 累积产额数据进行了评价调整。最后推荐给出了 n+ ^{232}Th 裂变的产额数据库, 作为 CENDL 库的组成部分。

关键词: ^{232}Th ; 裂变产额; Th/U 燃料循环

中图分类号: O571.4 **文献标志码:** A **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.30.03.379

1 引言

在国际上, Th 被认为是一种潜在的核能资源, 随着核能领域的发展和开发, 利用 Th 资源进入了科学家们的视野。相应地, Th/U 转换, 燃料核的增殖与嬗变成了首要研究的课题, 其目的是如何有效地把 ^{232}Th 转换成可利用的 ^{233}U 。在这些研究活动中, 裂变产额是其中重要的基础数据。目前, 中子诱发 ^{232}Th 裂变的产额数据主要有我国的 CENDL/FY^[1]、欧洲的 JEFF-3.1.1/FPY^[2]、美国的 ENDF/B-VII.1 /FPY^[3] 和日本的 JENDL-3.3/FPY^[4] 等产额数据库。2006 年, IAEA 组织了国际合作研究项目 (CRP), 对 Th/U 循环的核数据进行了评价^[5], 推荐了 JEFF 评价数据^[2]。本工作在 CRP 工作的基础上, 对 ^{232}Th 的重点产物核进行比对, 对有分歧的数据进行重点评价。这些产物核包括 ^{95}Mo , ^{99}Tc , ^{101}Ru , ^{103}Rh , ^{109}Ag , ^{133}Cs , ^{147}Sm , ^{149}Sm , ^{150}Sm , ^{151}Sm , ^{152}Sm , ^{143}Nd , ^{145}Nd 和 ^{153}Eu 等, 是反应堆计算感兴趣的产物核。

2 评价方法

本工作利用比对评价方法对产额数据进行评价。如式 (1) 和式 (2) 所示, 其中约化 χ_i^2 是第 i 个产物核

评价值 Y_i 与实验值 Y_{Exp} 之间的偏差平方和 (以实验误差平方倒数做权重), 再求平均。 $\bar{\chi}^2$ 是对所有产物核的 χ_i^2 求平均。对现有评价数据与实验数据进行 $\bar{\chi}^2$ 检验, 对接近 1 的数据被认为更合理。

$$\chi_i^2 = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \frac{(Y_i - Y_{\text{Exp}, ik})^2}{\Delta Y_{\text{Exp}, ik}^2}, \quad (1)$$

$$\bar{\chi}^2 = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M \chi_i^2. \quad (2)$$

在 2006 年 IAEA 组织的 Th/U CRP 项目的裂变产额比对中, 应用了该方法。

3 评价结果

比较 JEFF-3.1.1 与 ENDF/B-VII.0, JENDL-3.3 重点产物核 ^{95}Mo , ^{99}Tc , ^{101}Ru , ^{103}Rh , ^{109}Ag , ^{133}Cs , ^{147}Sm , ^{149}Sm , ^{150}Sm , ^{151}Sm , ^{152}Sm , ^{143}Nd , ^{145}Nd 和 ^{153}Eu 的产额, 除了 ^{133}Cs , ^{152}Sm 和 ^{153}Eu 在误差范围内不一致以外, 其它数据都在误差范围内符合, 其中 ^{152}Sm 和 ^{153}Eu 无实验数据。

3.1 ^{133}Cs 的评价推荐

图 1 给出了 ^{133}Cs 的评价数据与实验数据, JEFF-

收稿日期: 2012-10-25; 修改日期: 2013-04-27

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: 舒能川(1969-), 男, 浙江宁海人, 研究员, 从事核数据和核天体物理研究; E-mail: nshu@ciae.ac.cn.

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

3.1.1 与 ENDF/B-VII.0 的评价数据在裂变谱能点和 14 MeV 能点均有分歧。裂变谱能点范围 (100 keV~3 MeV) 的产额有 3 个测量数据 (见表 1), JEFF 采用了平均值, 而 ENDF 的产额与 2 MeV 的测量值一致。由于 $n+^{232}\text{Th}$ 的裂变截面在 2 MeV 远远大于 1 MeV 的截面, 所以采用 2 MeV 的产额值比较合理。14 MeV 附近有 4 个测量值, 其中 Broom 的测量值偏小, ENDF 的评价值与其他 3 家一致, 因此本工作推荐 ENDF/B-VII.0 的 ^{133}Cs 产额评价值。

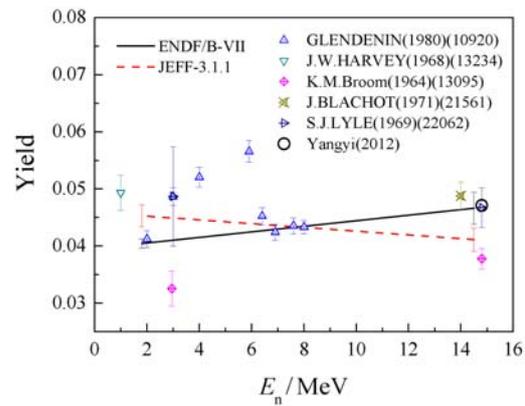


图 1 (在线彩图) $n+^{232}\text{Th}$ 裂变 ^{133}Cs 的累积产额

表 1 ^{133}Cs 的实验数据

| 能点/MeV | 累积产额(修正) | 误差 | 文献和注释 |
|--------|----------|-----------|--|
| 2.0 | 0.041 24 | 0.001 505 | [6] |
| 3 | 0.048 67 | 0.001 505 | |
| 4 | 0.052 08 | 0.001 706 | |
| 5.9 | 0.056 59 | 0.001 907 | |
| 6.4 | 0.045 26 | 0.001 505 | |
| 6.9 | 0.042 45 | 0.001 405 | |
| 7.6 | 0.043 55 | 0.001 405 | |
| 8 | 0.043 35 | 0.001 204 | |
| 1 | 0.049 33 | 0.003 070 | [7]。本文献给出的是与 ^{137}Cs 的比值 0.813(0.005), 根据 ENDF 和 JEFF 的评价值, 选用其平均值为 6.07×10^{-2} (3.8×10^{-3}) |
| 2.95 | 0.032 6 | 0.003 1 | [8]。Monitor ^{99}Mo 与现有评价值一致, 不做修正 |
| 14.8 | 0.037 8 | 0.001 8 | |
| 14 | 0.048 8 | 0.002 44 | [9]。Monitor $Y(^{140}\text{La})=6.43$ 修正为 5.69, 根据当时的实验设备, 误差估计为 5% |
| 3 | 0.048 72 | 0.008 67 | [10]。初始值为 0.046 2, Monitor(^{99}Mo) 2.78 修正为 2.93 |
| 14.8 | 0.046 75 | 0.003 44 | [10]。初始值为 4.58, Monitor(^{99}Mo)1.92 修正为 2.009 315 |
| 14.8 | 0.047 1 | 0.001 | [11] |

3.2 ^{152}Sm 和 ^{153}Eu 的评价推荐

^{152}Sm 和 ^{153}Eu 没有实验数据, 评价库的裂变谱产额数据中, JEFF-3.1.1 的数据比 ENDF/B-VII.0 的高 (图 2 和图 3)。通过对质量分布 (图 4 和图 5) 的分析, 在裂变谱的右侧峰腰处, JEFF 的数据比 ENDF 的高, 而对称轻峰的左侧峰腰处是一致的。根据对称原理, 认为 ENDF 的数据比较合理, 因此本工作推荐 ENDF ^{152}Sm , ^{153}Eu 产额数据, 整条链的产额数据 (包括独立产额) 作相应的调整, 具体数据调整如表 2 所列。14 MeV 的质量分布, 两者一致, 因此仍推荐 JEFF 库。

图 6、图 7 和图 8 分别给出了 $A=133, 152$ 和 153 衰变链。

以上工作调整了 ^{133}Cs , ^{152}Sm 和 ^{153}Eu 的产额值, 其它数据采用 JEFF 的产额数据。裂变谱能点 ^{133}Cs 由 4.53240×10^{-2} 调整为 4.04455×10^{-2} , ^{152}Sm 由 2.99790×10^{-3} 调整为 7.55433×10^{-4} , ^{153}Eu 由 2.01760×10^{-3} 调整为 3.10083×10^{-4} , 调整后产额总和为 1.991 17, 因此所有裂变谱能点的产额需乘以调整因子 $f_F = 1.00443$ 。高能点 (14 MeV) 的 ^{133}Cs 由 4.11580×10^{-2} 调整为 4.66264×10^{-2} , 调整因子为 $f_H = 0.997273$ 。

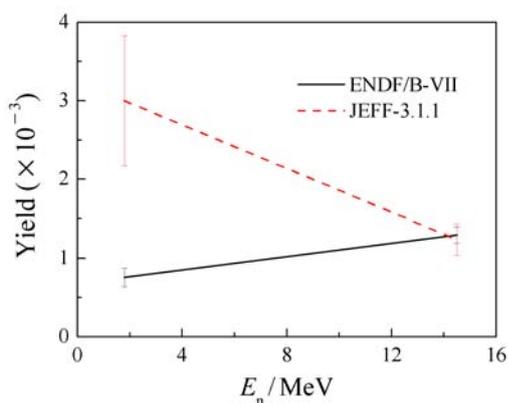


图 2 (在线彩图) $n+^{232}\text{Th}$ 裂变 ^{152}Sm 的累积产额(本工作推荐 ENDF 库数据)

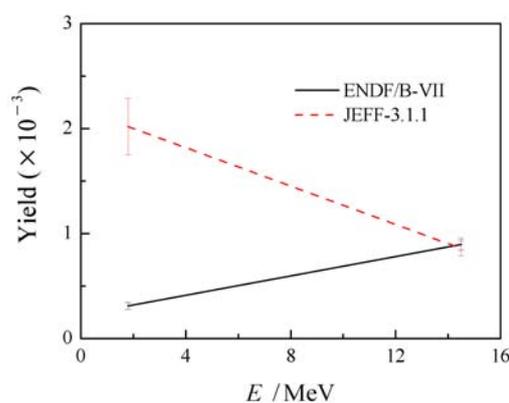


图 3 (在线彩图) $n+^{232}\text{Th}$ 裂变 ^{153}Eu 的累积产额(本工作推荐 ENDF 库数据)

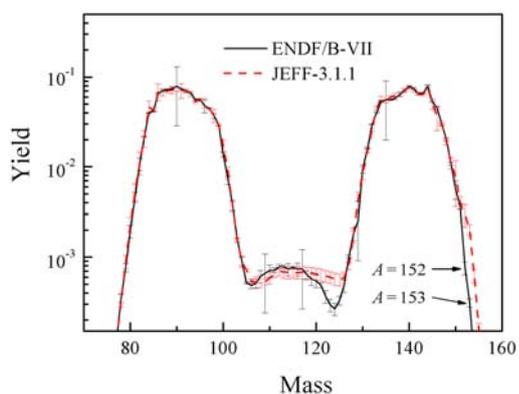


图 4 (在线彩图) $n+^{232}\text{Th}$ (裂变谱) 裂变碎片的质量分布 $A = 152$ 和 153 采用 ENDF 的数据, 其余的采用 JEFF 库数据。

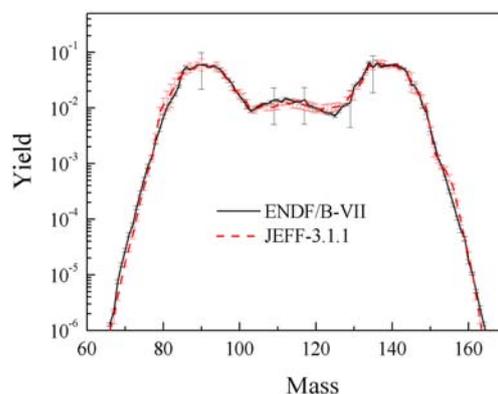


图 5 (在线彩图) $n+^{232}\text{Th}(14.8 \text{ MeV})$ 裂变碎片的质量分布(本工作推荐 JEFF-3.1.1 的数据)

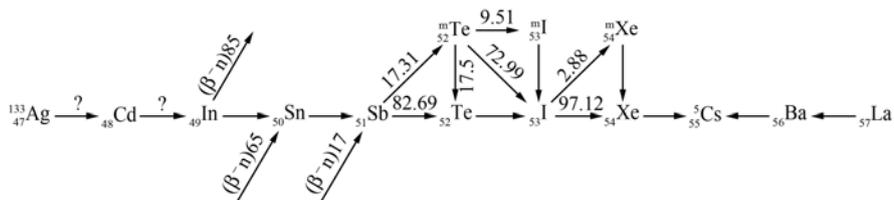


图 6 $A = 133$ 的质量(衰变)链
? 为目前尚未确定的 β^- 衰变。在图 7 和图 8 中均相同。

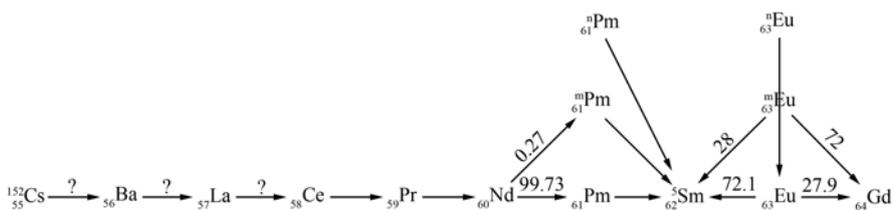


图 7 $A = 152$ 的质量(衰变)链

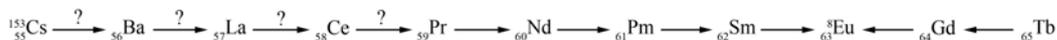


图 8 $A = 153$ 的质量(衰变)链

表 2 $n+^{232}\text{Th}$ 裂变累积 (Y_c) 和独立产额 (Y_i) 推荐值*。其它产额采用 JEFF-3.1.1 库, 并乘以调整因子 $f_F = 1.00443$, $f_H = 0.997273$

| | Z | Element | Isomer | $Y_c(\text{fission})$ | Error | $Y_i(\text{fission})$ | Error |
|---------|---------|---------|--------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|
| $E_n=F$ | 56 | Ba | | 1.38608×10^{-8} | 8.87092×10^{-9} | 1.38607×10^{-8} | 8.87084×10^{-9} |
| $A=152$ | 57 | La | | 7.58328×10^{-6} | 4.85330×10^{-6} | 7.57323×10^{-6} | 4.84687×10^{-6} |
| | 58 | Ce | | 3.31113×10^{-4} | 2.11913×10^{-4} | 3.23530×10^{-4} | 2.07059×10^{-4} |
| | 59 | Pr | | 7.03256×10^{-4} | 4.50084×10^{-4} | 3.72153×10^{-4} | 2.38177×10^{-4} |
| | 60 | Nd | | 7.58609×10^{-4} | 3.41374×10^{-4} | 5.53529×10^{-5} | 3.54258×10^{-5} |
| | 61 | Pm | n | 5.71842×10^{-8} | 3.65979×10^{-8} | 5.71842×10^{-8} | 3.65979×10^{-8} |
| | 61 | Pm | m | 5.71842×10^{-8} | 3.65979×10^{-8} | 5.71842×10^{-8} | 3.65979×10^{-8} |
| | 61 | Pm | g | 7.58670×10^{-4} | 2.42775×10^{-4} | 5.71842×10^{-8} | 3.65979×10^{-8} |
| 62 | Sm | | 7.58780×10^{-4} | 1.21404×10^{-4} | 3.59578×10^{-11} | 2.30130×10^{-11} | |
| $E_n=F$ | 56 | Ba | | 1.90113×10^{-10} | 1.21673×10^{-10} | 1.90111×10^{-10} | 1.21672×10^{-10} |
| $A=153$ | 57 | La | | 3.56565×10^{-7} | 2.28201×10^{-7} | 3.56375×10^{-7} | 2.28080×10^{-7} |
| | 58 | Ce | | 4.65041×10^{-5} | 2.97626×10^{-5} | 4.61526×10^{-5} | 2.95376×10^{-5} |
| | 59 | Pr | | 2.35755×10^{-4} | 1.50882×10^{-4} | 1.89241×10^{-4} | 1.21114×10^{-4} |
| | 60 | Nd | | 3.10452×10^{-4} | 1.39703×10^{-4} | 7.46978×10^{-5} | 4.78065×10^{-5} |
| | 61 | Pm | | 3.11457×10^{-4} | 9.96662×10^{-5} | 1.00441×10^{-6} | 6.42821×10^{-7} |
| | 62 | Sm | | 3.11457×10^{-4} | 4.98331×10^{-5} | 7.16143×10^{-10} | 4.58331×10^{-10} |
| | $E_n=F$ | 47 | Ag | | 2.56401×10^{-13} | 1.64097×10^{-13} | 2.56401×10^{-13} |
| $A=133$ | 48 | Cd | | 2.39490×10^{-8} | 1.53274×10^{-8} | 2.39487×10^{-8} | 1.53272×10^{-8} |
| | 49 | In | | 4.49171×10^{-5} | 2.87470×10^{-5} | 4.48931×10^{-5} | 2.87316×10^{-5} |
| | 50 | Sn | | 6.24844×10^{-3} | 2.81180×10^{-3} | 6.20352×10^{-3} | 3.97025×10^{-3} |
| | 51 | Sb | | 2.90002×10^{-2} | 6.67006×10^{-3} | 2.25111×10^{-2} | 7.20353×10^{-3} |
| | 52 | Te | g | 2.24781×10^{-2} | 5.16996×10^{-3} | 2.97046×10^{-3} | 1.90109×10^{-3} |
| | 52 | Te | m | 2.06731×10^{-2} | 6.61538×10^{-3} | 8.49295×10^{-3} | 5.43548×10^{-3} |
| | 53 | I | g | 4.06246×10^{-2} | 2.59998×10^{-2} | 8.04631×10^{-5} | 5.14963×10^{-5} |
| | 53 | I | m | 8.04631×10^{-5} | 5.14963×10^{-5} | 8.04631×10^{-5} | 5.14963×10^{-5} |
| | 54 | Xe | g | 4.06247×10^{-2} | 2.59998×10^{-2} | 3.14380×10^{-8} | 2.01202×10^{-8} |
| | 54 | Xe | m | 1.17008×10^{-3} | 7.48850×10^{-4} | 8.94927×10^{-8} | 5.72753×10^{-8} |
| | 55 | Cs | | 4.06247×10^{-2} | 8.12494×10^{-4} | 1.83807×10^{-12} | 1.17636×10^{-12} |
| $E_n=H$ | 47 | Ag | | 1.28716×10^{-11} | 8.23785×10^{-12} | 1.28716×10^{-11} | 8.23785×10^{-12} |
| $A=133$ | 48 | Cd | | 8.94969×10^{-8} | 5.72780×10^{-8} | 8.94840×10^{-8} | 5.72697×10^{-8} |
| | 49 | In | | 2.94395×10^{-5} | 1.88413×10^{-5} | 2.93500×10^{-5} | 1.87840×10^{-5} |
| | 50 | Sn | | 2.77340×10^{-3} | 1.77498×10^{-3} | 2.74396×10^{-3} | 1.75613×10^{-3} |
| | 51 | Sb | | 2.52533×10^{-2} | 1.13640×10^{-2} | 2.23705×10^{-2} | 7.15858×10^{-3} |
| | 52 | Te | g | 2.15479×10^{-2} | 6.89532×10^{-3} | 3.46820×10^{-3} | 2.21965×10^{-3} |
| | 52 | Te | m | 2.64055×10^{-2} | 8.44977×10^{-3} | 1.57991×10^{-2} | 5.05573×10^{-3} |
| | 53 | I | g | 4.64927×10^{-2} | 2.97552×10^{-2} | 9.85984×10^{-4} | 6.31029×10^{-4} |
| | 53 | I | m | 9.85984×10^{-4} | 6.31029×10^{-4} | 9.85984×10^{-4} | 6.31029×10^{-4} |
| | 54 | Xe | g | 4.64992×10^{-2} | 2.97595×10^{-2} | 1.18675×10^{-6} | 7.59523×10^{-7} |
| | 54 | Xe | m | 1.34438×10^{-3} | 8.60405×10^{-4} | 5.39525×10^{-6} | 3.45296×10^{-6} |
| | 55 | Cs | | 4.64992×10^{-2} | 2.78995×10^{-3} | 3.65002×10^{-9} | 2.33601×10^{-9} |

* F 为裂变谱中子能量, H 为 14 MeV 中子能量。

4 结论

本工作依据实验数据,对JEFF-3.1.1与ENDF/B-VII.0中的 $n+^{232}\text{Th}$ 裂变反应堆计算用的重点产物核及质量分布进行比对推荐。通过比对发现,除了 ^{133}Cs , ^{152}Sm 和 ^{153}Eu 外,JEFF-3.1.1和ENDF/B-VII.0对其他产物核的评价在误差范围内一致。 ^{133}Cs , ^{152}Sm 和 ^{153}Eu 及其所在的产额链采用了ENDF/B-VII.0的数据。其他数据采用JEFF-3.1.1库。调整之后裂变谱的链产额的总发生了变化,调整因子分别为 $f_F = 1.00443$, $f_H = 0.997273$ 。本工作推荐的 $n+^{232}\text{Th}$ 裂变产额数据库及其更新将在新版的CENDL库中发布。

参考文献(References):

- [1] GE Z G, ZHUANG Y X, LIU T J, *et al.* J of the Korean Phy So, 2011, **59**(2): 1052.
- [2] KONING A, FORREST R, KELLETT M, *et al.* The JEFF-3.1 Nuclear Data Library. Nuclear Energy Agency Report, JEFF Report 21, 2006.
- [3] CHADWICK M B, OBLOZINSKY P, HERMAN M, *et al.* Nuclear Data Sheets, 2009, **107**(12): 2931.
- [4] SHIBATA K, KAWANO T, NAKAGAWA T, *et al.* Nucl Sci Technol, 2002, **11**: 1125.
- [5] CAPOTE R, LEAL L, LIU PING, *et al.* International Atomic Energy Agency Report, STI/PUB/1435, 2010.
- [6] GLENDENIN L E, GINDLER J E, AHMAD I, *et al.* Phys Rev C, 1980, **22**: 152.
- [7] HARVEY J W, CLARKE W B, GORMAN D J, *et al.* Cana J of Chem, 1968, **46**: 2911.
- [8] BROOM K M. J de Phys B, 1968, **874**: 133.
- [9] BLACHOT J, CARRAZ L.C, CAVALLINI P, *et al.* J Radioanalytical Chem, 1971, **7**: 309.
- [10] LYLE S J, SELLARS J. Radiochimica Acta, 1969, **12**: 43.
- [11] LIU S L, YANG Y, FENG J, *et al.* Atomic Energy Sci and Tech, 2013, **46**(6): 901.

Comparison Evaluation for Yields of $n+^{232}\text{Th}$ Fission

SHU Nengchuan¹⁾, LIU Lile, LIU Tingjin, WU Haicheng, CHEN Yongjing, QIAN Jing, SUN Zhengjun

(China Nuclear Data Center, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: The yields of $n+^{232}\text{Th}$ fission are important in study of the Th/U fuel cycle. Based upon the evaluated nuclear data libraries and recent experimental data, comparison and evaluation for yield mass distribution and cumulative yield were performed for those products are needed and important in reactor calculations, including ^{95}Mo , ^{99}Tc , ^{101}Ru , ^{103}Rh , ^{109}Ag , ^{133}Cs , ^{147}Sm , ^{149}Sm , ^{150}Sm , ^{151}Sm , ^{152}Sm , ^{143}Nd , ^{145}Nd and ^{153}Eu etc. Adjustments were made for ^{133}Cs , ^{152}Sm and ^{153}Eu which have discrepancies among the libraries. Database for $n+^{232}\text{Th}$ fission yield is recommended as a part of CENDL update.

Key words: ^{232}Th ; fission yield; Th/U fuel cycle

Received date: 25 Oct. 2012; Revised date: 27 Apr. 2013

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

1) E-mail: nshu@ciae.ac.cn

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