

利用缓发中子法测量 ^{235}U 裂变数的实验研究

鲍杰¹, 于国梁^{1,2}, 聂阳波¹, 冯晶¹, 张奇玮¹, 杨毅¹, 黄翰雄¹,
阮锡超¹, 辛标¹, 侯龙¹, 周祖英¹, 唐洪庆¹

(1. 中国原子能科学研究院核物理研究所, 北京 102413; 2. 华北电力大学数理学院, 河北保定 071003)

摘要: 缓发中子伴随核裂变产生, 通过对它的测量估算核裂变数是一需实验检验的新方法。在中国原子能科学研究院微堆辐照 ^{235}U 样品, 采用 ^3He 正比计数器测量缓发中子, 并通过缓发中子数反推得到铀样品的总裂变数。利用高纯锗 γ 谱仪测量被辐照样品发射的缓发 γ 射线, 通过缓发 γ 射线数得到样品总裂变数。对两种测量方法得到的结果进行了对比和分析, 结果表明, 用缓发中子法和缓发 γ 法对同一样品测量的结果一致, 缓发中子法可作为一种辅助诊断方法。

关键词: 裂变; 缓发中子; 缓发 γ

中图分类号: O571.53

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2013)09-1479-04

doi: 10.7538/yzk.2013.47.09.1479

Experimental Study on Determination of ^{235}U Fission Number With Delayed Neutron Detection Method

BAO Jie¹, YU Guo-liang^{1,2}, NIE Yang-bo¹, FENG Jing¹, ZHANG Qi-wei¹,
YANG Yi¹, HUANG Han-xiong¹, RUAN Xi-chao¹, XIN Biao¹, HOU Long¹,
ZHOU Zu-ying¹, TANG Hong-qing¹

(1. China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275-46, Beijing 102413, China;

2. Mathematics & Physics College, North China Electric Power University (Baoding), Baoding 071003, China)

Abstract: The delayed neutron is emitted after one fission product generated. A new method evaluating fission number by the measurement of delayed neutron number is needed to be verified by experiment. ^{235}U samples were irradiated with MNPR at CIAE, the delayed neutrons were measured with ^3He proportional detector and the fission number was determined. The result was verified by delayed γ method. The delayed neutron method is a supplementary way for delayed γ method.

Key words: fission; delayed neutron; delayed γ

燃料裂变数是核装置运行的重要指标, 通过测量裂变数可得到系统释放能等重要信息。本文以 ^{235}U 样品为例, 介绍通过测量缓发中子数来计算裂变数的方法, 并与缓发 γ 法的测量

结果进行比较。

1 测量原理

原子核发生裂变后产生的碎片通常具有较

高的激发能,通过释放瞬发中子和瞬发 γ 射线的方式退激,这一过程通常在裂变后小于 10^{-15} s和 10^{-11} s的短时间内完成。次级裂变产物仍为丰中子核,一般又经过一系列 β 衰变和发射 γ 退激, β 衰变的半衰期为 10^{-2} s或更长,退激的 γ 称为缓发 γ 。某些子核激发态能量可能会超过中子结合能,以发射中子的方式退激,这种在 β 衰变过程中发射的中子称为缓发中子,缓发中子的半衰期决定于它的先驱核 β 衰变半衰期,只占裂变中子很少的部分。

核裂变产生的缓发粒子数同裂变数对应,所以既可通过缓发 γ 数和裂变产额反推裂变数,也可通过准确测量缓发中子数确定总裂变数。这两种方法均可应用到诊断测量中,可互相校验。其中,利用缓发 γ 测量的方法准确性较高,但需选取合适的裂变产物核进行测量,半衰期可能较长,需长时间测量才能得到好的统计效果。缓发中子一般分6组,其中半衰期最短的两组的半衰期不足1 s,半衰期最长的1组的半衰期接近1 min,各组的半衰期和所占份额不同,因此,这种测量方法具有迅速、准确表征核装置运行状态的能力^[1-5]。

2 实验方法

将 ^{235}U 实验样品通过气动跑兔装置传送到微型反应堆的辐照位置进行多次照射,再经气动跑兔装置传出反应堆,直接到达测量位置,用刻度过的 ^3He 探测器阵列测量裂变后的缓发中子。根据辐照时间与缓发中子数推算辐照引起的裂变数。另外一组实验是将样品放置在经刻度的HPGe谱仪上,测量其中某裂变产物核的 γ 射线数,通过裂变产额得到裂变数,并比较两组实验结果。

2.1 ^3He 探测器的刻度

首先对探测系统作效率刻度。根据测量距离等条件用模拟和实验结合的方式得到 ^3He 探测器的传输探测效率(与立体角、长度相关),这需用中子源刻度探测器。由于无法得到缓发中子源,用替代源的方式。热中子诱发 ^{235}U 裂变缓发中子能谱^[6]和Am-Li源中子能谱^[7]基本一致(图1),因此,使用Am-Li源进行传输探测效率的刻度^[8],同时用MCNP模拟相同实验条件下Am-Li源刻度的探测器效率。

表1列出通过测量不同距离探测器的计数计算出的Am-Li源刻度的传输探测效率与模拟值的比较。实验和模拟结果的相对偏差的绝对值小于5%,表明模拟结果可信,由于两个中子能谱基本一致,可将模拟得到的缓发中子探测效率用于后续的数据处理,其相对偏差的绝对值可认为是5%。

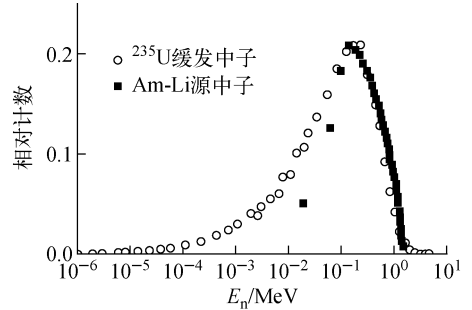


图1 ^{235}U 裂变缓发中子能谱和Am-Li源中子能谱
Fig. 1 Delayed neutron spectra of ^{235}U and Am-Li source

表1 传输探测效率模拟值和实验值比较
Table 1 Comparison of detection efficiency between simulative and experimental results

探测器与源距离/m	实验探测效率	模拟探测效率	相对偏差的绝对值/%
2.5	1.055×10^{-4}	1.106×10^{-4}	4.8
3.0	8.9×10^{-5}	9.28×10^{-5}	4.3
3.5	7.58×10^{-5}	7.39×10^{-5}	2.5
4.0	6.71×10^{-5}	6.91×10^{-5}	3.0

2.2 实验测量

^{235}U 样品通过气动跑兔装置传送到微型反应堆的反射层辐照位置,反应堆运行功率为30 kW,相应中子注量率为 $10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。样品在反应堆中辐照一定时间后,经气动跑兔装置传出反应堆,直接到达测量位置(约需2~3 s)。

考虑到6组缓发中子的半衰期差别,对 ^{235}U 样品进行10、20、30、40和60 s 5次不同时间的辐照。测量时间均为330 s,这样可测量每次辐照产生的绝大多数缓发中子。再测量空盒计数用来扣除本底。采用加权最小二乘法对数据进行处理。图2为不同辐照时间的缓发中子计数。

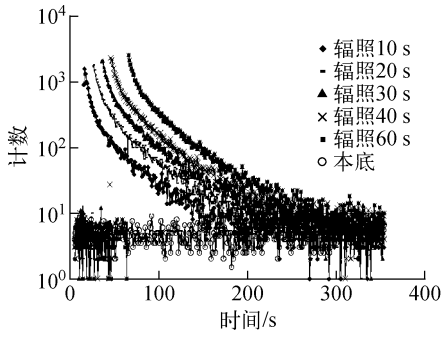


图2 不同辐照时间缓发中子的计数
Fig.2 Counts of delayed neutrons with different irradiation time

单次辐照得到的裂变数的计算式为:

$$N_{th} = \epsilon n_f \sum_{i=1}^6 \nu_i \lambda_i \int_{t_1}^{t_2} e^{-\lambda_i t} dt \quad (1)$$

其中: N_{th} 为实验测得的缓发中子数; i 为缓发中子组数, $i=1,2,\dots,6$; ν_i 为缓发中子份额, λ_i 为半衰期,它们为已知推荐数据^[8](表2); ϵ 为探测器效率,使用MCNP模拟值; t_1 为冷却结束时刻,即多路定标器开始记录的起始时刻; t_2 为记录的停止时刻; n_f 为样品裂变数,是唯一未知量,通过测量缓发中子数可计算样品单次辐照引起的裂变数,再累加5次辐照的结果,便可得到样品辐照产生的总裂变数。

表2 ²³⁵U缓发中子6组模型参数

Table 2 Six groups of parameters of ²³⁵U delayed neutron

组别	平均中子能量/MeV	半衰期/s	份额
1	0.25	55	0.033
2	0.56	22	0.219
3	0.43	6	0.196
4	0.62	2.2	0.395
5	0.42	0.5	0.115
6	0.43	0.2	0.042

缓发中子测量结束后,用HPGe谱仪离线测量辐照样品的缓发 γ ^[9],这是裂变产物放出的 γ ,因此通过缓发 γ 法也可给出裂变数。假设样品核总裂变数为 N_f ,生成某核的累积产额为 Y ,探测器效率为 ϵ ,由缓发 γ 法测量得到的某核特征 γ 峰计数为 A ,有如下的关系式:

$$\sum_{j=1}^5 N_{fj} Y e^{-\lambda_j} (1 - e^{-\lambda_j t}) = A/\epsilon \quad (2)$$

其中, j 为辐照轮次。 Y 可通过评价数据得到, A 和 ϵ 由实验测量得到,考虑 γ 自吸收修正、探测效率修正、统计误差等因素,可给出辐照引起的总裂变数。

本次实验选用的待测裂变产物核为¹³⁸Cs和⁹²Sr,它们的半衰期分别为33.41 min和2.71 h, γ 射线能量分别为1 435.795、1 383.93 keV, γ 射线分支比分别为76.3%、90%。选这两个核素主要是因为其半衰期合适、产额较大,特征 γ 峰的周围无大的干扰(实验结果统计误差小于5%)。图3为测得的 γ 射线能谱。

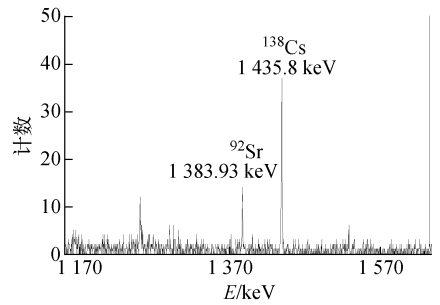


图3 高纯锗探测器测量到的¹³⁸Cs和⁹²Sr特征能谱
Fig.3 ¹³⁸Cs and ⁹²Sr γ spectra measured with HPGe detector

3 结果和讨论

按式(2)计算得到缓发中子法辐照5次的裂变数分别为 1.16×10^8 、 1.74×10^8 、 2.13×10^8 、 2.62×10^8 、 2.89×10^8 。缓发中子法测量得到的总裂变数为 1.05×10^9 ,缓发 γ 法离线测量得到的裂变数为 1.00×10^9 ,两者的相对偏差为5.0%。

缓发中子法的测量不确定度主要包括: 1) 本底计数导致的统计不确定度,约2%; 2) 探测效率的不确定度,5%; 3) 裂变平均缓发中子发射率系数带来的不确定度,10%。计算裂变数需根据评估值,而决定裂变缓发中子发射率误差的因素主要有先驱核的独立产额、寿命和分支比。而这些因素主要来自6组中后4组的贡献,前两组半衰期短,贡献可忽略不计。其中,⁸⁸Br、¹³⁶Te、¹³⁸I、⁸⁷Br、¹³⁷I等主要缓发中子先驱核的独立产额和发射率不确定度大于10%^[10]。因此,缓发中子法测量结果的总不确定度合计11.5%。

图4为微堆辐照位置的中子能谱,不同中子能量对应的裂变产额也有变化,产额受中子能谱的影响较大。

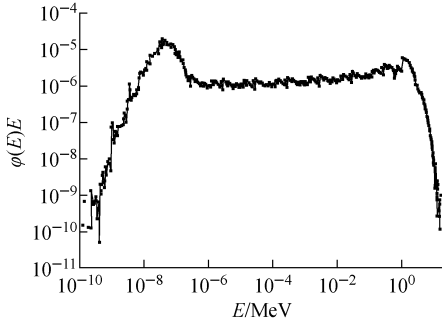


图4 微堆中子能谱

Fig. 4 Neutron spectrum of MNPR

对裂变产额进行修正的方法是:通过热中子引起的裂变产额和其他能量入射中子引起的产额拟合出1条曲线,从而得到初始的裂变产额随中子能量变化的曲线,与中子能谱及裂变截面曲线结合计算加权平均产额。加权平均产额 Y_{mean} 计算式如下:

$$Y_{\text{mean}} = \frac{\int \varphi(E)\sigma(E)Y(E)dE}{\int \varphi(E)\sigma(E)dE} \quad (3)$$

式中, $\varphi(E)$ 、 $\sigma(E)$ 、 $Y(E)$ 分别为入射中子能量为 E 的中子注量率、裂变截面和裂变产额。核素 ^{92}Sr 和 ^{138}Cs 的峰区产额误差分别为小于 3% 和小于 1%。按式(3)计算得到的加权平均产额 $Y_{\text{Sr}}=6.662$ 、 $Y_{\text{Cs}}=5.975$, 分别是热中子引起累积产额的 99.3% 和 99.9%。缓发 γ 法测量的不确定度主要来源于实验结果的统计不确定度, 小于 5%。另外还有测量方法带来的不确定度: 几何修正不确定度, 0.3%; γ 自吸收修正的不确定度, 0.3%; γ 效率刻度不确定度, 2%。对 ^{92}Sr , 总不确定度为 6.2%; 对 ^{138}Cs , 总不确定度为 5.6%。

4 结论

通过模拟和实验相结合的方式利用缓发中子法和缓发 γ 法测量了同一被辐照样品的裂变数, 两种实验方法得到的裂变数的相对偏差为 5%。缓发 γ 法测量精度高, 缓发中子法测量速

度快。在缓发中子法和缓发 γ 法的不确定度范围内测量结果一致, 缓发中子法可作为缓发 γ 法的辅助诊断方法。

感谢西北核技术研究所常永福研究员和中国原子能科学研究院卢涵林研究员对实验给予的指导, 感谢中国原子能科学研究院微堆提供的优质运行。

参考文献:

- [1] BOHR N, WHEELER J. The mechanism of nuclear fission [J]. *Physical Review*, 1939, 56: 426-450.
- [2] KEEPIN G, WIMETE T, ZEIGLER R. Delayed neutrons from fissionable isotopes of uranium, plutonium, and thorium [J]. *Physical Review*, 1957, 107: 1 044-1 049.
- [3] 欧阳晓平. 脉冲辐射探测技术 [J]. *中国工程科学*, 2008, 10(4): 44-55.
OUYANG Xiaoping. Development of pulsed radiation detection technology [J]. *Engineering Sciences*, 2008, 10(4): 44-55 (in Chinese).
- [4] 刘庆兆. 脉冲辐射场诊断技术 [M]. 北京: 科学出版社, 1994.
- [5] 张建福. 薄膜塑料闪烁探测器中子灵敏度标定方法研究 [D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2008.
- [6] PULLEN D. Delayed neutron equilibrium spectra for ^{235}U , ^{238}U and ^{239}Pu [C] // *Proceedings of Conference on Nuclear Data for Science and Technology*. Mito: [s. n.], 1988: 905-907.
- [7] TAGZIRIA H, ROBERTS N, THOMAS D. Measurement of the $^{241}\text{Am-Li}$ radionuclide neutron source spectrum [J]. *Nuclear Instruments and Methods A*, 2003, 510: 346-356.
- [8] CHEN Y. Delayed neutron emission measurements for ^{235}U and ^{239}Pu [D]. US: Texas A&M University, 2006.
- [9] 杨毅. 中子诱发 ^{235}U 裂变产额能量关系研究 [D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2005.
- [10] LOAIZA D, BRUNSON G, SANCHEZ R, et al. Measurement of absolute delayed neutron yield and group constants in the fast fission of ^{235}U and ^{237}Np , LA-UR-97-1858-DRAFT [R]. US: LANL, 1997.