

镓样品泄漏中子谱的测量与分析

韩 瑞^{1,2}, 陈志强², 聂阳波¹, 田国玉^{2,3}, 罗 飞^{2,3}, 孙 琪^{2,3}, 石福栋²,
张苏雅拉吐⁴, 宋 林^{2,3}, 张 鑫^{2,3}, 阮锡超¹, 任 杰¹

(1. 中国原子能科学研究院 核物理研究所, 北京 102413;

2. 中国科学院 近代物理研究所, 甘肃 兰州 730000;

3. 中国科学院大学, 北京 100049;

4. 内蒙古民族大学 物理与电子信息学院, 内蒙古 通辽 028000)

摘要: 基于中国原子能科学研究院的中子学积分实验装置, 利用 BC501A 液体闪烁体探测器, 结合飞行时间法(TOF)测量了镓样品的泄漏中子谱。采用 MCNP 4C 程序进行了模拟并与实验泄漏中子谱进行了比较, 对 ENDF/B-VII. 1、JEFF-3. 2、TENDL-2015 数据库中铀核中子评价数据进行了宏观基准检验分析, 并与 TALYS 程序计算结果作对比。研究结果显示: 在 9 MeV 以下能区, TENDL-2015 库与实验结果符合很好; 在弹性散射能区, JEFF-3. 2 和 TENDL-2015 库与实验结果符合较好; 对于 12 MeV 左右的非弹性散射峰, JEFF-3. 2 库与实验结果符合较好, TALYS 计算结果显示该部分主要来自镓核分离能级的贡献。

关键词: 镓; 泄漏中子谱; 中子评价数据; 非弹性散射

中图分类号: O571. 5; TL812. 2

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2018)07-1200-06

doi: 10. 7538/yzk. 2017. youxian. 0786

Measurement and Analysis of Leakage Neutron Spectrum from Gallium Sample

HAN Rui^{1,2}, CHEN Zhiqiang², NIE Yangbo¹, TIAN Guoyu^{2,3}, LUO Fei^{2,3}, SUN Qi^{2,3},
SHI Fudong², ZHANG Suyalatu⁴, SONG Lin^{2,3}, ZHANG Xin^{2,3}, RUAN Xichao¹, REN Jie¹

(1. *Department of Nuclear Physics, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China;*

2. *Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;*

3. *University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;*

4. *College of Physics and Electronics Information, Inner Mongolia University for the Nationalities, Tongliao 028000, China)*

Abstract: Based on the neutronics integral experimental setup at China Institute of Atomic Energy, the leakage neutron spectra from gallium samples were measured by time-of-flight technique with a BC501A scintillation detector. For the benchmark analy-

收稿日期: 2017-12-14; 修回日期: 2018-01-25

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11605257); 中国科学院“西部之光”人才培养引进计划资助项目(Y725030XB0); 中国科学院战略性先导科技专项资助项目(XDA03030200)

作者简介: 韩 瑞(1985—), 女, 甘肃靖远人, 助理研究员, 博士, 粒子物理与原子核物理专业

网络出版时间: 2018-04-13; 网络出版地址: <http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.2044.TL.20180412.1646.012.html>

sis of the neutron evaluated nuclear data of gallium, the leakage neutron spectra were simulated by MCNP 4C code with the ENDF/B-VII.1, JEFF-3.2 and TENDL-2015 evaluated nuclear data libraries and compared with experimental data and TALYS code calculated results. The results show that the measured data are well reproduced by simulation with the TENDL-2015 library below the 9 MeV. The calculation results of JEFF-3.2 and TENDL-2015 libraries give better agreement with the measured data in the elastic scattering energy region. For the inelastic scattering peak around 12 MeV, JEFF-3.2 library shows a better agreement with the measured data, and TALYS results indicate that the contribution of discrete levels is dominated contribution.

Key words: gallium; leakage neutron spectrum; neutron evaluated nuclear data; inelastic scattering

镓(Ga)是一种常见的靶材料,在核能工程、国防及核天体物理研究中有重要应用。自然Ga由60.11%的 ^{69}Ga 和39.89%的 ^{71}Ga 组成,在空气中很稳定,熔点(29.8℃)很低,沸点(2229℃)很高,为金属元素中熔点和沸点之差最大的核素,合金Ga同样具有低熔点的特性,因此Ga被列为重要的液态金属冷却剂候选材料。液态金属Ga材料具有好的热传导性能,低熔点、高沸点特性使其具有大的热容量、低的蒸气压,可避免像水一样因沸腾而引起对冷却能力的限制。尽管Ga的中子吸收截面较大,但由于近年来纳米颗粒技术的发展使得液态Ga纳米流体有足够小的吸收截面^[1],从而使Ga成为一种很好的冷却材料。Ga也被作为重要的掺杂剂使用,如反应堆和核武器装置中,对Pu元素掺杂Ga元素后进行安装等。此外,由于 ^{71}Ga 对太阳中基本的p-p(质子-质子)反应非常敏感,因此在核天体物理中被作为太阳中微子探测器的材料成分^[2]。

Ga核也是核反应堆中重要的裂变产物之一,其全套中子数据对反应堆工程等核装置的设计具有重要的应用价值。然而,评价数据库中Ga核的相关核数据却很少,且大部分数据是在1980年前完成的^[3-4],各家数据库中的数据存在较大分歧。目前,国际上还没有其他Ga核积分实验的相关报道。针对Ga核的重要应用及其实验数据匮乏,对评价数据库中Ga核的中子评价数据进行宏观检验具有重要的意义。本文基于中国原子能科学研究院300 kV高压倍加器上的中子学积分实验装置,开展Ga样品泄漏中子谱的积分实验测量,并利用MCNP 4C程

序模拟检验 ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2、TENDL-2015 数据库中 Ga 核的中子评价数据。

1 实验

基于中国原子能科学研究院300 kV高压倍加器上的D-T(Ti)中子源,氘束能量为300 keV,通过 $\text{T}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ 反应产生14.8 MeV的单能脉冲中子与Ga样品相互作用,测量两种不同尺寸的样品($\phi 13\text{ cm} \times 3.2\text{ cm}$ 、 $\phi 13\text{ cm} \times 6.4\text{ cm}$)分别在 60° 和 120° 方向的泄漏中子谱。束流平均流强约 $30\ \mu\text{A}$,脉冲频率1.5 MHz,脉宽(FWHM)约3 ns,束斑大小约 $\phi 5\text{ mm}$ 。图1为实验测量装置图。实验中利用金硅面垒半导体探测器测量 $\text{T}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ 反应在反方向产生的 α 粒子来监测中子数,用于实验数据归一化处理,同时在出射中子 0° 方向上放置 $\phi 5.08\text{ cm} \times 5.08\text{ cm}$ 的BC501A液体闪烁体探测器监测加速器束流获得加速器脉冲形状谱。靶样品放置在准直系统中心轴线上,通过左右移动靶在准直系统中心轴线上的位置可改变泄漏中子谱的测量角度。Ga样品泄漏中子谱的测量角度为 60° 和 120° ,对应中子源的中子出射角度分别为 30° 和 -30° ,它们具有相同的源中子能谱和角分布,源中子能谱呈高斯分布,中心值约14.75 MeV。实验屏蔽系统由阴影锥、前级准直系统和嵌在2 m厚水泥墙内的准直器组成。实验采用中子飞行时间法,利用放置在水泥墙后测量大厅内的 $\phi 5.08\text{ cm} \times 2.54\text{ cm}$ 的BC501A液体闪烁体探测器测量靶样品的泄漏中子谱。实验装置详细情况见文献[5-7]。

实验采用CAMAC总线的多参数获取系

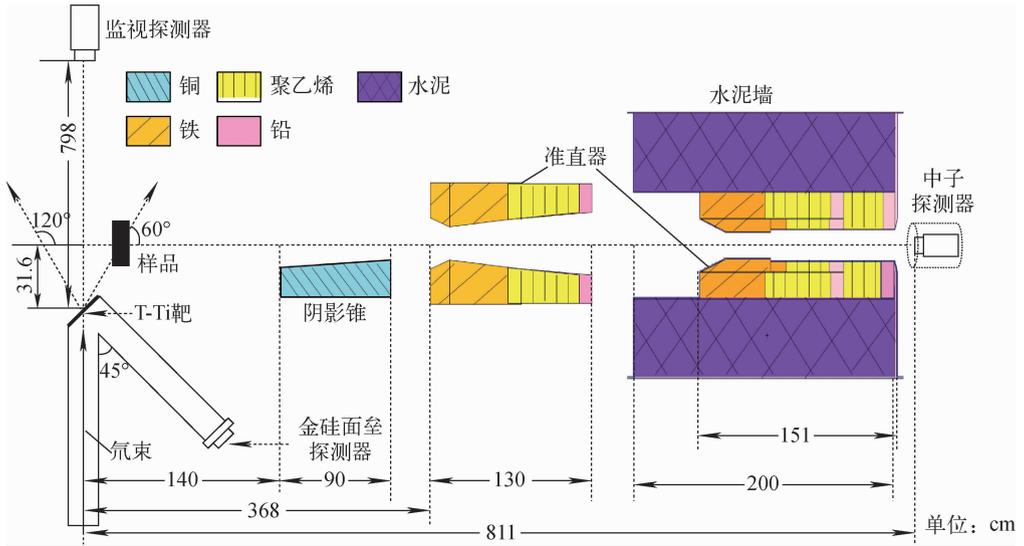


图1 实验测量装置图

Fig.1 Schematic diagram of experimental arrangement

统,使用Kmax软件进行效应本底(有样测量)和本底谱(无样测量)的在线或离线分析。图2为实验电子学线路框图,共获取5路信号,分别是:中子探测器打拿极直接引出的脉冲高度谱,用来确定探测器的阈值;脉冲形状甄别谱,通过2160A电子学插件获得来完成n-γ甄别;中子飞行时间谱,以中子探测器的阳极信号引出作为起始信号,加速器脉冲拾取信号引出,经过适当的时间延迟,作为停止信号;监视器的飞行时间谱,主要用来监视加速器的中子束流脉冲情况,包括脉冲形状的对称性和脉宽等;α粒子计

数,该信号是由金硅面垒半导体探测器完成,绝对效率达100%,通过计算可得到中子源的强度,用于实验数据的归一化处理。

2 MCNP 模拟

蒙特卡罗模拟采用MCNP 4C程序,模拟计算中详细考虑了实验装置的几何结构、源中子能谱和角分布、中子探测器的效率及响应函数等。通过将MCNP模拟结果与实验测量结果比较,对ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2、TENDL-2015数据库中的中子评价数据进行宏观基准

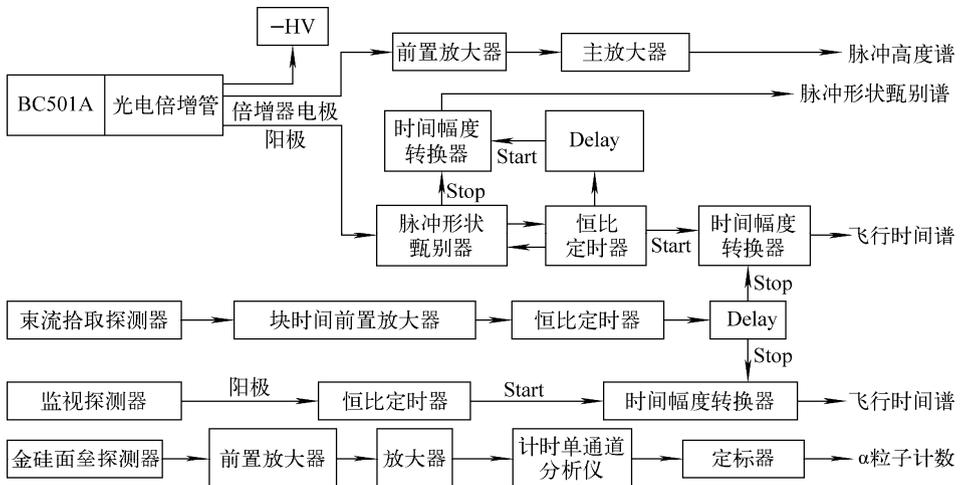


图2 实验电子学线路框图

Fig.2 Block diagram of electronic circuit for experiment

检验。模拟中,源中子能谱和角分布采用 TARGET 程序计算的结果^[8],中子探测器效率采用 NEFF 程序的计算结果^[9],其响应函数通过中国原子能科学研究院 2×1.7 MV 小型串联加速器上的 $^9\text{Be}(d, n)^{10}\text{B}$ 白光中子源^[10] 的探测器标定实验确定。

3 结果讨论与分析

3.1 实验不确定度

实验不确定度主要来自统计误差和系统误差。统计误差在 5% 左右,包括:1) 中子计数统计误差,约 5%;2) 相对归一系数误差,包括 MCNP 计算每个源中子产生 n-p 散射中子的统计误差以及实验测量的 n-p 散射中子的统计误差,一般均小于 0.5%;3) α 粒子计数统计误差,包括标准聚乙烯样品和 Ga 样品测量中 α 粒子计数的统计误差,一般均小于 0.5%。系统误差包括相对中子探测效率误差($\leq 3\%$)以及泄漏中子出射角度测量误差($\leq 1\%$)。实验数据处理中使用相对归一系数(即标准样品 n-p 散射峰面积的实验测量结果与模拟结果的比值)可削减大部分系统误差,包括绝对探测效率以及 α 粒子和中子的立体角测量误差,因此,实验中总的不确定度一般在 10% 以内。

3.2 标准样品系统检验

实验测量了聚乙烯标准样品($\phi 13 \text{ cm} \times 6 \text{ cm}$)在 60° 的泄漏中子谱,并采用 MCNP 程序进行了相应的模拟。标准样品的测量结果可检验实验系统的可靠性,同时依据 n-p 散射峰面积的实验测量结果与模拟结果的比值,可得到一个相对归一系数用于 Ga 样品的数据处理。图 3 为聚乙烯样品 60° 中子泄漏谱实验测量结果和 MCNP 模拟结果的对比,图 3 显示标准样品的实验测量结果与 MCNP 采用 ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 和 TENDL-2015 数据库的模拟结果在整个能区范围内均符合很好,说明该实验系统和测量方法可靠。

3.3 Ga 样品检验结果

Ga 样品采用自然 Ga 核同位素,纯度可达 99.99%。实验采用飞行时间法测量了两个不同厚度的 Ga 样品($\phi 13 \text{ cm} \times 3.2 \text{ cm}$ 、 $\phi 13 \text{ cm} \times 6.4 \text{ cm}$)分别在 60° 和 120° 方向的泄漏中子谱,同时利用 MCNP 程序,对 ENDF/B-VII.1、

JEFF-3.2 和 TENDL-2015 数据库中的中子评价数据进行了检验。为进一步确定非弹性散射对泄漏中子谱的贡献,本文将积分实验的检验结果与 TALYS 程序的计算结果进行了对比, TALYS 计算中的参数采用默认值,未考虑实验中的实际能量分辨率。图 4 为 Ga 样品的中子泄漏谱,图 4a、b 给出了 60° 和 120° 方向对应的 TALYS 计算结果,图 4c、d、e 和 f 分别给出了两个角度的实验测量谱与 MCNP 模拟计算结果的对比。从图可看出,除能量约为 12 MeV 左右(虚线之间)的非弹性散射峰外,模拟结果可较好地符合实验测量值。ENDF/B-VII.1 库的模拟结果完全没有给出 12 MeV 非弹性散射

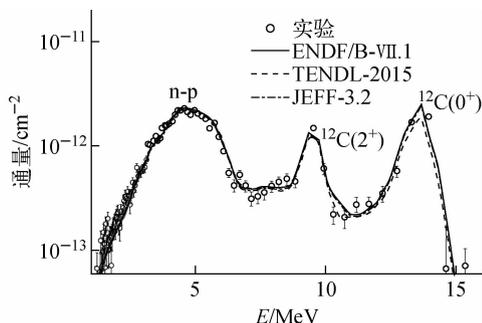


图 3 聚乙烯样品中子泄漏谱实验测量结果和 MCNP 模拟结果的对比

Fig. 3 Measured neutron leakage spectrum for polyethylene sample compared with MCNP simulated results

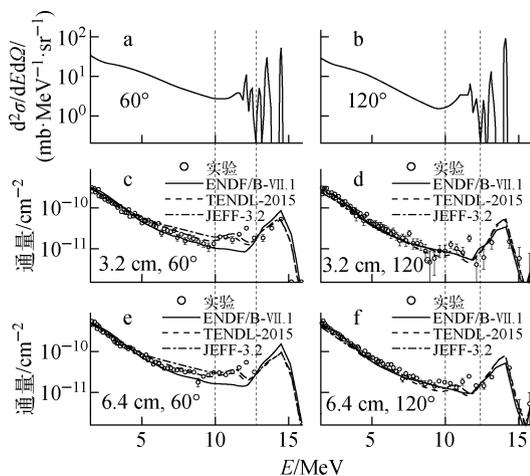


图 4 Ga 样品的中子泄漏谱

Fig. 4 Neutron leakage spectrum from Ga sample

峰的贡献,这与文献[7]中对 ENDF/B-VII.0、JENDL-4.0 及 CENDL-3.1 库的检验结果类似,而 TENDL-2015 和 JEFF-3.2 库能给出 12 MeV 左右非弹性散射峰的部分贡献,60° 的结果更明显。对图 4a 和 b 的 TALYS 的计算结果,由于未考虑实验测量的能量分辨率,因此可清晰看出 12 MeV 左右非弹性散射包含多个分离能级的贡献,而靠近弹性散射峰的两个分离能级的非弹性散射峰由于能量分辨率不够,在实验上被包含在弹性散射峰中。

图 5a、b、c 和 d 分别给出了图 4c、d、e 和 f 对应的 Ga 样品中子泄漏谱 MCNP 模拟计算结果和实验测量结果的比值 C/E。C/E 依据弹性散射峰、非弹性散射峰以及 MCNP 计算和实验测量结果的差异大小分为 5 个能量组。C/E 越接近于 1,数据库的评价数据越好。从图 5 可看出,低能段($E < 9$ MeV)TENDL-2015 库的结果较好;对于 10 MeV 以上包含分离能级贡献的部分,JEFF-3.2 库的结果较好。

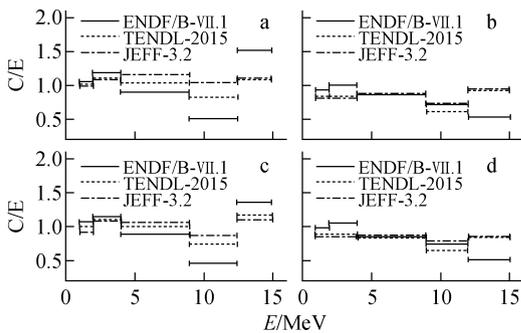


图 5 Ga 样品中子泄漏谱的 MCNP 模拟计算结果和实验测量结果的比值

Fig. 5 Ratio of MCNP simulated results and experiment data for neutron leakage spectra of Ga samples

图 6 为 ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 和 TENDL-2015 数据库及 TALYS 程序计算的 ^{69}Ga 核中子连续态非弹性散射和分离能级的贡献,因 ENDF/B-VII.1 和 TENDL-2015 数据库仅给出 (n, n') 反应道的能量分布,而 JEFF-3.2 数据库仅给出能量角分布的结果,因此文中分两部分讨论。图 6a 给出了 ENDF/B-VII.1 和 TENDL-2015 数据库中 $^{69}\text{Ga}(n, n')$ 反应道的能量分布,并与 TALYS 计算结果及总的出射中子能

量分布进行了比较,可看出 ENDF/B-VII.1 库在 11 MeV 处严重低估了非弹性散射的贡献。图 6b 给出了 JEFF-3.2 数据库中 $^{69}\text{Ga}(n, n')$ 反应道的能量角分布(60°)和 TALYS 计算结果的比较,从图可看到 12 MeV 处的非弹性散射主要来自分离能级贡献,而 ENDF/B-VII.1 库的分离能级贡献主要集中在 13 MeV 左右,该贡献在实验上被包含在弹性散射峰中,因此 ENDF/B-VII.1 库完全没有给出 12 MeV 左右的非弹性散射部分的贡献。 ^{71}Ga 的结果与 ^{69}Ga 的情况类似,本文不对 ^{71}Ga 另作讨论分析。

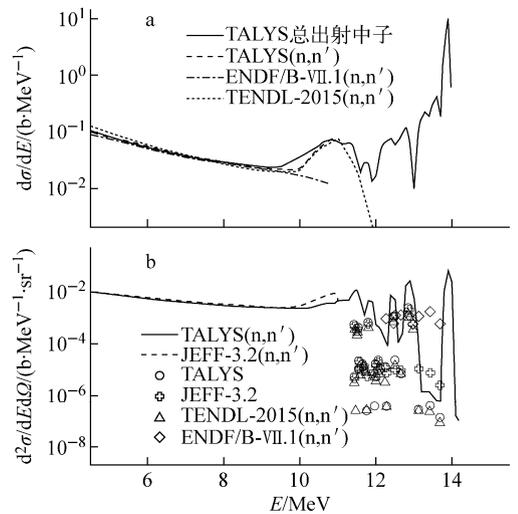


图 6 ^{69}Ga 核中子连续态非弹性散射和分离能级的贡献

Fig. 6 Contributions of inelastic scattering in continuum states and discrete levels for ^{69}Ga

4 结论

本工作基于中国原子能科学研究院 300 kV 高压倍加器上的 D-T(Ti) 中子源,对 Ga 样品开展了中子学积分实验测量,利用 MCNP 4C 程序模拟检验了 ENDF/B-VII.1、JEFF-3.2 和 TENDL-2015 数据库中的 Ga 核中子评价数据,并与 TALYS 程序计算结果作对比。研究结果显示:1) $E < 9$ MeV 时贡献主要来自 (n, n') 、 $(n, 2n)$ 、 (n, np) 和 $(n, n\alpha)$ 反应道,总体上 TENDL-2015 库与实验结果符合较好;2) $9 \text{ MeV} \leq E < 12.5 \text{ MeV}$ 时,可清楚观察到 1 个非弹性散射峰,JEFF-3.2 库与实验结果符合较好,而 ENDF/B-VII.1 库完全没有给出该部分的贡献,

TALYS 的计算结果可清楚看出这个非弹性散射峰主要来自 Ga 核分离能级的贡献;3) $E \geq 12.5$ MeV 时,主要是弹性散射的贡献,JEFF-3.2 和 TENDL-2015 库结果一致,与实验结果符合较好,ENDF/B-VII.1 库的结果在 60° 时高于实验值, 120° 时低于实验值。因此,各评价数据库还需进一步改善 Ga 核中子评价数据。

参考文献:

- [1] LEE S W, PARK S D, KANG S, et al. Feasibility study on molten gallium with suspended nanoparticles for nuclear coolant applications[J]. Nuclear Engineering and Design, 2012, 247(6): 147-159.
- [2] COLLABORATION S, ABDURASHITOV J N, GAVRIN V N, et al. Measurement of the solar neutrino capture rate with gallium metal III [J]. Physical Review C, 2009, 60(5): 375-389.
- [3] 蒲忠胜,杨景康,孔祥忠. 13.5-14.6 MeV 中子能区镓的同位素反应截面的测量[J]. 高能物理与核物理, 2003, 27(7): 581-584.
PU Zhongsheng, YANG Jingkang, KONG Xiangzhong. Cross section measurements for (n, 2n), (n, p) and (n, n' α) reactions on gallium isotopes at the neutron energies of 13.5, 14.1 and 14.6 MeV [J]. High Energy Physics and Nuclear Physics, 2003, 27(7): 581-584(in Chinese).
- [4] 姚立山,周恩臣,蔡敦九. 14 MeV 中子的(n,2n)反应截面系统学研究[J]. 高能物理与核物理, 1987, 11(4): 533-542.
YAO Lishan, ZHOU Encheng, CAI Dunjiu. A systematic study of (n, 2n) cross section at 14 MeV[J]. High Energy Physics and Nuclear Physics, 1987, 11(4): 533-542(in Chinese).
- [5] NIE Y B, BAO J, RUAN X C, et al. Benchmarking of evaluated nuclear data for uranium by a 14.8 MeV neutron leakage spectra experiment with slab sample[J]. Ann Nucl Energy, 2010, 37(11): 1456-1460.
- [6] NIE Y B, REN J, RUAN X C, et al. The benchmark experiment on slab beryllium with D-T neutrons for validation of evaluated nuclear data[J]. Fusion Engineering and Design, 2016, 105: 8-14.
- [7] HAN R, WADA R, CHEN Z, et al. Fast neutron scattering on gallium target at 14.8 MeV [J]. Nuclear Physics A, 2015, 936: 17-28.
- [8] SCHLEGEL D. TARGET user's manual, laborbericht PTB-6. 42-05-2 [J]. Braunschweig, Germany: [s. n.], 2005.
- [9] DIETZE G, KLEIN H. NRESP4 and NEFF4 Monte Carlo code for the calculation of neutron response functions and detection efficiencies for NE213 scintillation detectors, PTB-ND-22 [R]. Braunschweig, Germany: Physikalisch-Technische Bundesanstalt, 1982.
- [10] HUANG H X, RUAN X C, CHEN G C, et al. Measurement of the response function and the detection efficiency of an organic liquid scintillator for neutrons between 1 and 30 MeV [J]. Chin Phys C, 2009, 33(8): 677-681.