

hsj-77063 (bp)

内 部

科学技术成果报告

快中子引起 ^{240}Pu 裂变截面编评

叶 宗 垣

核 数 据 编 辑 组

一九七八年五月

快中子引起 ^{240}Pu 裂变截面编评

一、国外测量编评情况

^{239}Pu 与 ^{235}U 一样, 是重要的核燃料, 在生产 ^{239}Pu 同时, 必然有相当成份 (2—10% 甚至更多) 的 ^{240}Pu 同位素混杂在一起。因此 ^{240}Pu 的有关裂变参数 (σ_f 、 σ_c 、 $\bar{\nu}$ 等) 也引起人们的重视。特别是裂变截面的数值直接关系到钚作为核燃料的价值。另一方面, ^{240}Pu 是偶偶核, 它与中子的裂变反应是有阈的, 测量阈能附近的裂变截面, 对于研究裂变位垒理论是有意义的。

^{240}Pu 裂变截面的测量, 最早是 Henkel (Los Alamos, 1957) 的工作, 中子能量范围是 0.2—8 MeV。文章未公开发表, 资料[1]报导测量方法和测量结果。其后苏联的 B. Г. Нестеров 等^[2] (1960) 测量了中子能量为 0.04—4 MeV 的截面。他们得到的结果在 高能范围内与 Henkel 的结果大体一致, 而在低能阈值以下得到较高的 σ_f 值 (接近 0.1 靶), 较通常的阈下裂变截面值高。英国原子能局 P. Ruddick, P. H. White (1964)^[3] 着重测量 60—500 keV 能区的截面, 实验结果与 B. Г. Нестеров 一致, 证明 ^{240}Pu 阈下截面值确实比较高。其后, 在同一实验室又以较高精度测量^[4] (1.0; 2.25; 5.4; 14.1 MeV) 结果与以上工作一致。此后, 到 1970 年, 苏联 Савин 等^[5] 在电子直线加速器上用飞行时间法测量了 0.5—3.7 MeV 中子能区的 σ_f 值。得出结果实验点之间涨落大, 而且与其他人实验值的偏离也大。1976 年 Behrens^[18] 给出在 Lawrence 实验室的 100 MeV 电子直线加速器上测量 0.02—30 MeV 的初步结果。

^{240}Pu 裂变截面的测量方法与其他核类似。一般分为相对测量和绝对测量两类。相对测量大都以 $\sigma_f(^{235}\text{U})$ 为标准, [也有以 $\sigma_f(^{239}\text{Pu})$ 为标准的]。从测出的 $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ 再推算出 $\sigma_f(^{240}\text{Pu})$ 值。这虽然避开了中子通量绝对测量的困难, 但依赖于 $\sigma_f(^{235}\text{U})$ 的准确度。绝对测量则需要用其他方法定出中子通量。对于 ^{240}Pu , 绝大多数工作是相对测量, 仅在 14 MeV 处有用伴随粒子法作绝对测量的。

探测裂变事件的方法有以下几种: (1) 用裂变电离室探测裂变碎片。这是最经典的技术。由于测量方便, 在相对测量时大都用背靠背式双裂变室, 即一边是 ^{240}Pu 样品, 另一边是标准 (如 ^{235}U) 样品。这种探测技术, 一般说来, α 堆垒影响较大, 因而 ^{240}Pu 的载量受到限制。(2) 用气体闪烁计数器记录裂变碎片。由于时间分辨较好, 所以对于克服 α 堆垒较为有利, 也可以做成背对背进行相对测量。(3) 使用大体积闪烁液体探测器记录裂变 γ 及中子, 这种方法的特点是可以使用厚样品, 大都用在飞行时间方法上, 一般采用瞬时 γ 脉冲及随后的中子脉冲来鉴别出裂变事件。(4) 用固体径迹探测器记录裂变碎片。

由于高丰度的 ^{240}Pu 样品很难得到, 加上它具有很高的 α 放射性 (堆垒影响较难消除), 自发裂变率又强 (本底裂变计数率高), 这些困难都使 ^{240}Pu σ_f 值的实验测量较难进

行。测量精度也受到影响。早期的数据实验精度在 $E_n < 1\text{MeV}$ 区为 8—20%； $E_n > 1\text{MeV}$ 处为 5—8%，各家结果在 $E_n < 1\text{MeV}$ 区差别较大，在 8—14MeV 之间缺乏实验数据。最近 Behrens^[18] 的工作扩大了实验能区的范围，精确度也有所提高。

国外的编评工作情况：早期有 P. Herle (1968)^[6] 专门对 ^{240}Pu 的有关参数进行过编评，给出 $\sigma_f^{240}/\sigma_f^{235}$ 比值和 σ_f^{240} 绝对值在 $E_n > 10\text{MeV}$ 能区的曲线。W. Hart^[17] (英国原子能局) 评价给出了 σ_f^{240} 的数值。此外以色列的 S. Yiftah^[8] 和 Los Alamos 的 R. E. Hunter^[9] 都在 1970 年前后和 1973 年前后两次对 ^{240}Pu 的有关核参数进行过编评。所有这些编评，都存在实验资料不全的问题，编评结果彼此差别也很大。因此，我们有必要对这一数据重新进行编评。

二、本编评中采用数据的情况：

1) J. W. Behrens^[18] 等在 Lawrence 实验室 100MeV 电子直线加速器上，用飞行时间法测量 ^{240}Pu 与 ^{235}U 裂变截面的比值。在工作中采用阈截面法^[10] 进行测量，测量的能量范围为 0.001 到 30 MeV。资料^[18] 给出初步实验结果。

该工作的特点是能区范围广，有些能区如 8—14 MeV 和 $E_n > 15\text{MeV}$ ，在这以前还没有数据。测量精确度高：由于样品避开直接称量，在该实验室用相同的实验技术已经对一系列元素进行过裂变截面的测量，技术已经比较成熟；从所得结果看实验点之间的涨落也不像早期 Савин^[5] 用飞行时间测量结果那么大。所以该工作作为本编评中采用的基本数据。对于所给出的初步数据作如下处理：对于能区 0.1—20MeV 所得到的比值数据，用资料^[10] 的 σ_f^{235} 值换算成 σ_f^{240} 截面绝对值。截面误差由作者给出的统计误差，加上归一误差 2.19% 和系统误差 0.75%，加上 σ_f^{235} 绝对值的误差，再取平方根作为最后 σ_f^{240} 绝对值的误差。

2. Henkel^[11] 等人的工作，他们测量了中子能量为 270keV—8.12MeV 区域 $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ 裂变截面的比值，使用背对背裂变电离室。对本底中子，样品中的 ^{238}Pu ， ^{241}Pu 成份以及 ^{240}Pu 自发裂变率作了校正。资料中给出 σ_f^{240} 的绝对值和误差。误差主要来源于所取用 $\sigma_f(^{235}\text{U})$ 和 $\sigma_f(^{238}\text{Pu})$ 的绝对值。在 $E_n < 1\text{MeV}$ 误差 ~10%；的 $E_n > 1\text{MeV}$ ，误差 ~6—8%。在本编评中使用新推荐^[10] 的 $^{235}\text{U}\sigma_f$ 数值对绝对值进行重新计算。误差采用原作者给出的误差值。

3. 苏联 B. Г. Нечепов^[12] 的工作。这一实验的能区是 $E_n = 0.04—4\text{MeV}$ ，在静电加速器 ($K_{\text{pmax}} = 5\text{MeV}$) 上用 $T(p, n)^3\text{He}$ 反应的中子和背对背双裂变电离室，测量 $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{239}\text{Pu})$ 截面比值。作者很据样品定量， ^{238}Pu 和 ^{240}Pu 成份比以及记数的统计误差，得到：在 $E_n = (1—4)\text{MeV}$ 能区截面比值误差 ~4%； $E_n = (0.3—1)\text{MeV}$ 能区，误差为 5—10%； $E_n < 0.3\text{MeV}$ 能区误差为 ~ (10—20)%。实验结果计算成 σ_f^{240} 的绝对值，在图上给出。图上一些点画出误差范围。从文章叙述看来，工作比较细致，考虑还算周到，早期工作曾在 1958 年^[2] 发表，工作总共进行大约四年左右。

本次编评中这些数据从图上实验点读出，按原引 σ_f^{239} 用数据算回比值 $\sigma_f^{240}/\sigma_f^{239}$ ，再用新编评^[11] 推荐的 σ_f^{239} 值换算到 σ_f^{240} 绝对值，将误差由原给出的相对测量误差加进 σ_f^{240} 的绝对值误差 (~4%) 作为评价误差。

4. 苏联 M. B. Савин^[15] 的工作。这一家是在电子直线加速器上用飞行时间方法测量²³⁹Pu 和 ²⁴⁰Pu 相对于²³⁵U 裂变截面的比值, 用闪烁液体探测器记录裂变瞬时 γ 线作为裂变事件的探测, 仪器分辨时间为 35 ns。实验结果对于 γ 本底; 自发裂变本底; 裂变探测效率; 样品中的非²⁴⁰Pu 成份进行了校正。实验结果以图形给出比值 $\sigma_f^{240}/\sigma_f^{235} \sim E_n$ 。每个实验点都标出误差〔从 LA-5172^[6] 编评上看, 这个工作更详细(更多的实验点)的情况给在 INDC(CCP)---8 中, 但这份资料我们未能找到〕。

我们编评时, 从给出的图上读下每个能量点的 $\sigma_f^{240}/\sigma_f^{235}$ 比值及其相应的误差。再由相应的 σ_f^{235} 推荐值〔10〕计算得出 σ_f^{240} 绝对值。误差由读出的比值误差, 再加上 σ_f^{235} 绝对值误差算出。个别偏离较大的实验点加大误差。

5. 英国 P. Ruddick 在 1965 年^[3] 的工作。 $E_n = 60-500$ keV, ²⁴⁰Pu 相对²³⁵U 进行测量。裂变事件用充氙的气体闪烁计数器记录。²⁴⁰Pu 和²³⁵U 样品背对背放在闪烁室中, 实验结果给出绝对值和误差。实验中, 散射中子本底引起误差很小, 略去不计。裂变计数中, 对 α 堆垒效应, 自发裂变效应, 在样品中的自吸收等作了校正。同一实验室, 1969 年 P. H. White^[4] 在 $E_n = 1.0; 2.25; 5.4; 14.1$ MeV 的结果, 其相对值误差 2%; 绝对值误差 3.5%。

在采用他们的数据时, 低能部份绝对值用 σ_f^{235} 推荐值〔10〕, 重新进行计算, 误差使用原误差。高能部份, 用他们给出的比值再用资料〔10〕的 σ_f^{235} 绝对值算出 ²⁴⁰Pu 绝对值。误差由作者给出的比值误差加上 σ_f^{235} 值的误差定出。

6. 美国 Los Alamos 利用地爆测量 1 MeV 以下能区的裂变截面值, 这个工作的出处很多, 但数据集中在 1966 年的报告上^[12]。²⁴⁰Pu 裂变截面, 相对于²³⁵U 进行测量。得到的²⁴⁰Pu 裂变截面值, 系统误差是 8.7%; 加上统计误差, 达到约 20% 以上。

在数据取用中, 用了 100 keV 到 1 MeV 的部份数据, 并用资料〔10〕的 σ_f^{235} 值, 对²⁴⁰Pu 的 σ_f 值进行重新计算。误差用作者给出的百分误差值, 换算成绝对误差值。

7. 苏联 M. И. Казаринова 的工作^[13]。测量了 $E_n = 2.5$ MeV 和 14.6 MeV 两个能量点 ²⁴⁰Pu 的 σ_f 值, 在 14.6 MeV 用 T(d, n)⁴He 伴随 α 粒子测量裂变截面绝对值, 在 2.5 MeV 处相对于 14.6 MeV 进行测量, 结果误差接近百分之十五。

取用原作者给出的截面绝对值和误差。

8. 苏联 Г. А. Дорофеев^[14] 的工作。工作者用光中子源及 Po- α -Be 源测量 $E_n \sim 30$ keV; 250 keV; 900 keV; 5 MeV 的裂变截面绝对值。误差 $\sim 10\%$ 。

取用 900 keV 和 5 keV 处作者给出的截面值和误差值。

9. 其他。M. De. Vroey^[15] 测量了 $E_n = 0.03-2.0$ MeV 的 $\sigma_f^{240}/\sigma_f^{235}$, 结果给在图上, 但图上无座标, 数据无法利用, 故舍去不用。

W. B. Gilboy^[15] 测量了 $E_n = 5-150$ keV 的 $\sigma_f^{240}/\sigma_f^{235}$ 值, 由 ⁷Li(p, n)⁷Be 产生白光中子, 用氙闪烁气体测裂变事件, 中子能量由飞行时间测定。因中子能量在裂变阈能以下, 资料也缺, 未使用。

苏联 Э. Ф. Фомушкин 等^[17] 利用地下核爆炸, 使用固体径迹探测器记录裂变碎片, 测得 $E_n = 2-200$ keV 能区的 ²⁴⁰Pu 裂变截面值, 由于在阈能以下, 精度也差, 未使用。

三、数据拟合和结果

对于上述各家经处理后的实验数据(描在图一上),用正交多项式函数程序进行分段拟合,得到 $\sigma_{f^{240}}$ 随中子能量变化的曲线。由于Behrens^[18]的实验点数目多,精度高,在2—6MeV, 0.7—1MeV能区截面有系统偏高的趋势,若按原误差值,以误差平方倒数作权,则拟合的结果是曲线随着Behrens^[18]的实验点走,偏离其他实验点太多。为了使得其他实验数据也占有一定的权重,这就要减小[18]的权重。为了计算上的方便,在作数据拟合时将[18]在0.7—6MeV能区的误差加大一倍,仍以误差平方倒数作权进行拟合。这样拟合得到0.1—8MeV的截面值,误差则由该能量处实验点的最小误差给出。对于8—20MeV则因为能区大,实验点数少,由实验点连线给出的曲线形状,可以反映出裂变截面变化的机制。在8, 14, 20MeV处由于(n, nf) (n, 2nf) (n, 3nf)反应使得裂变截面有上升的趋势。而在其他地方则稍为有所下降,或保持不变,是由于有其他反应道的竞争。若用函数关系式去拟合,则会使得原有的结构现象变得平滑,而失掉其物理意义。因此对这一段能区数据的处理,采用实验点连线的方法,给出所要求能量点的截面值,误差则以相邻点的实验误差给出。

按上述方法得到的推荐结果给在表一并描绘在图上。

由于本编评中果用了新的实验数据,资料完整得多,近期的国外编评没有见到,与早期编评比较则没有意义,所以不再与别人编评结果进行比较。可以认为现在为止,对 ^{240}Pu 裂变截面的编评,本工作是比较全面的和完整的。

表一

对实验数据拟合结果

$E_n(\text{MeV})$	$\sigma_t(\text{b})$	$\Delta\sigma_t(\text{b})$	$E_n(\text{MeV})$	$\sigma_t(\text{b})$	$\Delta\sigma_t(\text{b})$	$E_n(\text{MeV})$	$\sigma_t(\text{b})$	$\Delta\sigma_t(\text{b})$
0.100	.068	.009	0.92	1.34	.05	5.00	1.50	.09
0.120	.065	.007	0.94	1.36	.05	5.20	1.49	.09
0.140	.072	.006	0.96	1.39	.05	5.40	1.50	.10
0.160	.079	.006	0.98	1.41	.05	5.60	1.52	.10
0.18	.085	.006	1.00	1.42	.05	5.80	1.55	.10
0.20	.091	.005	1.05	1.47	.05	6.00	1.60	.10
0.22	.095	.005	1.10	1.50	.05	6.20	1.66	.10
0.24	.101	.005	1.15	1.53	.05	6.40	1.74	.10
0.26	.109	.005	1.20	1.55	.05	6.60	1.84	.10
0.28	.117	.005	1.25	1.57	.05	6.80	1.94	.10
0.30	.128	.005	1.30	1.59	.05	7.00	2.04	.10
0.32	.141	.006	1.35	1.60	.05	7.20	2.14	.10
0.34	.158	.006	1.40	1.61	.05	7.40	2.26	.10
0.36	.178	.007	1.45	1.62	.05	7.60	2.29	.10
0.38	.201	.008	1.50	1.63	.05	7.80	2.30	.10
0.40	.227	.008	1.55	1.63	.05	8.00	2.30	.10
0.42	.257	.008	1.60	1.64	.05	8.20	2.30	.10
0.44	.290	.009	1.65	1.64	.05	8.40	2.29	.10
0.46	.326	.011	1.70	1.64	.05	8.60	2.29	.10
0.48	.366	.011	1.75	1.64	.05	8.80	2.29	.10
0.50	.408	.012	1.80	1.64	.05	9.00	2.30	.10
0.52	.454	.012	1.85	1.65	.05	9.20	2.30	.10
0.54	.503	.014	1.90	1.65	.05	9.40	2.30	.10
0.56	.555	0.015	1.95	1.65	.06	9.60	2.31	.10
0.58	.609	0.017	2.00	1.64	.06	9.80	2.33	.10
0.60	.667	0.019	2.10	1.64	.06	10.0	2.35	.10
0.62	0.727	0.023	2.20	1.64	.06	10.5	2.32	.10
0.64	.789	0.026	2.30	1.64	.06	11.0	2.23	.10
0.66	.855	0.03	2.40	1.64	.06	11.5	2.21	.10
0.68	.922	0.035	2.60	1.64	.06	12.0	2.20	.10
0.70	.97	0.035	2.80	1.64	.06	13.0	2.21	.10
0.72	1.01	0.036	3.00	1.64	.06	14.0	2.23	.10
0.74	1.06	0.04	3.20	1.63	.07	14.5	2.38	.10
0.76	1.10	0.04	3.40	1.62	.08	15.0	2.50	.11
0.78	1.13	0.04	3.60	1.59	.08	15.5	2.44	.11
0.80	1.17	0.04	3.80	1.57	.08	16.0	2.39	.12
0.82	1.20	0.04	4.00	1.56	.08	17.0	2.30	.12
0.84	1.23	0.04	4.20	1.55	.09	18.0	2.32	.13
0.86	1.26	0.04	4.40	1.54	.09	19.0	2.37	.14
0.88	1.29	0.05	4.60	1.52	.09	20.0	2.52	.17
0.90	1.32	0.05	4.80	1.51	.09			

参 考 文 献

- [1] R.L. Henkel AEC-D-4256 (1957)
- [2] В.Г. Нестеров, Г. Н. Смирнов А. Э. 9, 16 (1960); J. N. E. A/B16, 51, (1962); Ж. Э. Т. Ф 35 532 (1958)
- [3] P. Ruddick, P. H. White, J. N. E. A/B 18 561 (1964)
- [4] P. H. White and Warner, J. N. E. 21 671-679 (1967)
- [5] М. В. Савиц, Ю. А. Хохлов, Ю. С. Замятин А. Э. 29 3 (1970) 218-220; INDC-8/u (1970)
- [6] P. Herle, T. A. Yamamoto, APDA-218 (1968)
- [7] W. Hart, AHSB(S) R169 (1969)
- [8] N. Caner and S. Yiftah IA-1262 (1972)
- [9] R. E. Hunter LA-5172 (1973)
- [10] 刘继才: ^{235}U 裂变截面编评 (1976)
- [11] 刘继才: ^{239}Pu 裂变截面编评 (1974)
- [12] D. H. Byers, B. C. Diven LA-3586 (1966) 59 66 Paris Y. 2 (1966) 219-232
- [13] М. И. Казаринова А. Э. 8 Ио 2 (1960) 139
- [14] Г. А. Дорофеев, А. Э. 2 10 (1957) J. N. E. 11 217 (1957)
- [15] M. De. Vroey, 65 Salzburg V. 1, 281
- [16] W. B. Cilboy 66 Paris 1, 295
- [17] Э. Ф. Фомушкин А. Э. 39 No 4 295 (1975)
- [18] J. W. Behrens, UCID-170 47 11-12
- [19] 关于阈截面法参看 (1976)

其他裂变截面编评工作中的叙述见严武光对 Np^{237} 裂变截面的编评报告, 此处不再详述。