文章编号: 1007-4627(2017) 03-0351-06

# 替代反应法测量锕系核(n,f)和(n,xn)截面

马南茹,林承键<sup>†</sup>,贾会明,徐新星,杨峰,杨磊,孙立杰,王东玺,刘祖华,张焕乔

(中国原子能科学研究院,北京 102413)

**摘要:** 对于某些中子反应截面,在直接测量上存在困难。为了获得那些对核能发展极其重要的核数据,人 们提出替代反应法,即利用带电粒子代替中子进行反应,从而实现中子反应截面间接测量的方法。现有替代 反应一般采用非弹激发、转移等周边反应,涉及的角动量远比中子反应的大,需要理论修正,这造成了一定 的困难。有鉴于此,提出利用轻带电离子的俘获反应作为替代反应,其复合核自旋与中子反应的相当,有效 避免了自旋修正的困难。根据这个思路,采用<sup>236</sup>U的(α,f)和(α,2n)反应作为替代反应,成功提取了<sup>239</sup>Pu 的(n,f)和(n,2n)反应截面,与ENDFB7评价库数据在误差范围内符合较好,表明了替代反应法的优越性, 可以在核数据测量中推广应用。

关键词: 中子反应; 替代反应; 俘获反应; (n,f) 截面; (n,2n) 截面 中图分类号: O571.1 文献标志码: A DOI: 10.11804/NuclPhysRev.34.03.351

## 1 引言

目前,我国核能事业蓬勃发展,对于一些关键核数 据,特别是中子反应数据需求迫切。但是一些中子反应 核数据的测量十分困难,例如:(1)对于激发函数的测 量,能量连续可调的(准)单能中子束流难以获得,通常 仅有少数能量点,如D+T反应的14 MeV 中子;(2)对 于短寿命核素,特别是核能感兴趣的锕系元素中的短寿 命核素,往往具有强放射性,难以制成实验用的核靶; (3)对于中子增殖的(n,2n)反应,受散射中子、裂变中 子等强本底的干扰,直接测量的难度大,难以得到精确 的截面。总言之,对于锕系核区中子反应的截面测量, 特别是激发函数的直接测量,仍存在诸多现实的困难。 替代反应法(Surrogate Reaction Method)的出现,有 效地克服了中子反应截面直接测量的困难。

#### 1.1 替代法

替代反应法是指利用带电粒子替代中子进行反应, 从而实现中子反应截面测量一种间接方法,基本原理如 图1所示<sup>[1]</sup>。通过选择合适的替代反应,可以形成和目 标反应相同的复合核,复合核的形成阶段和衰变阶段独 立无关,经两种不同途径形成的复合核拥有相同的衰变 形式。测量替代反应截面,结合复合核形成截面理论计 算值,可以间接实现对目标反应截面的测量。



图 1 (在线彩图) 替代反应法原理示意图

替代法出现于20世纪70年代初。Cramer和Britt 利用(t,pf) 双中子转移反应做替代反应,测量 了一系列锕系核的(n,f)截面<sup>[2]</sup>。例如: <sup>231,233</sup>Th, <sup>235,237,239</sup>U, <sup>241,243</sup>Pu(n, f)分别用<sup>230,232</sup>Th, <sup>234,236,238</sup>U, <sup>240,242</sup>Pu(t,pf)来替代,通过简单公式:

$$\sigma_{\rm nf}(E_{\rm n}) = \sigma_{\rm c}(E_{\rm n}) p^{\rm exp}_{\rm (t,pf)}(E_{\rm n}) \quad , \qquad (1)$$

导出了入射中子能量为 $E_n$ 时的裂变截面 $\sigma_{nf}(E_n)$ 数据, 实验测量的裂变几率:

$$p_{(t,pf)}^{exp}(E_n) = N_f/N_p$$
 , (2)

收稿日期: 2016-11-20; 修改日期: 2017-03-30

**基金项目:** 国家重点基础研究计划资助项目 (2013CB834404); 国家自然科学基金资助项目 (11375268, 11475263, U1432127, U1432246, 11505293, 11635015)

作者简介:马南茹(1989–),男,山东聊城人,助研,博士,从事粒子物理与原子核物理研究; E-mail: mnr209@163.com

<sup>†</sup>通信作者:林承键, E-mail: cjlin@ciae.ac.cn.

 $N_{\rm f}$ 和 $N_{\rm p}$ 分别是裂变计数和出射质子计数。 $E_{\rm n} = E_{\rm x} - B_{\rm n}$ ,  $E_{\rm x}$ 和 $B_{\rm n}$ 分别代表复合核激发能和中子结合能。

以现在的测量技术来看,当年受测量条件限制,数据具有相当大的不确定性。但作为替代法在实验中的首次应用,具有重要意义。经过几十年的发展,特别是2000年后,替代反应法出现了井喷式的发展<sup>[3-5]</sup>,由最初简单的替代反应法发展出替代比值法(Surrogate Ratio Method)<sup>[3]</sup>、替代俘获反应法等多种测量形式。

### 1.2 替代比值法

替代比值法通过测量目标反应道与已知反应道的截 面比值,从而得到目标反应道截面。选择数据精度较好 的反应道做参考,可以提高待测数据的精度。根据参考 反应道的选取,可以分为内部替代比值法 (Internal Surrogate Ratio Method)<sup>[3]</sup>和外部替代比值法 (External Surrogate Ratio Method)<sup>[4]</sup>两种。

内部替代比值法是测量同一个复合核的不同出射道 的衰变概率比值,利用已知的出射道的截面来求目标反 应道的截面,比如测量复合核裂变截面  $\sigma_f$  与 $\gamma$  衰变截 面  $\sigma_\gamma$  的比值  $\sigma_f/\sigma_\gamma$ ,由已知的  $\sigma_\gamma$  求  $\sigma_f$ 。

外部替代比值法则是通过测量不同复合核之间同一 种出射道的反应截面比值,由其中一种已知的复合核的 反应截面来求出另一种复合核的同一出射道的反应截 面。

对于在实验和理论中都受大家关注的中子诱导核 反应,特别是一些中子裂变截面,很多研究人员选择 用外部替代比值法来进行测量。Burke 等<sup>[4]</sup>采用替代 比值法,通过与已有的<sup>235</sup>U(n,f)反应截面对比,进 行<sup>237</sup>U(n,f)反应截面的测量。实验选择<sup>238</sup>U(α,α'f) 和<sup>236</sup>U(α,α'f)作为替代反应,以带电粒子α诱导的核 反应测量出<sup>237</sup>U(n,f)和<sup>235</sup>U(n,f)反应截面比值,并通 过已有完美数据的<sup>235</sup>U(n,f)反应截面计算出<sup>237</sup>U(n,f) 反应截面值。这极大地减小了直接替代法<sup>[5,6]</sup>中存在的 系统学及理论计算误差。

#### 1.3 替代俘获反应法

目前,国际上的替代反应都是采用非弹性散射或 转移反应等周边反应<sup>[1]</sup>,如(α,α'f),(d,pf),(<sup>3</sup>He,tf) 和(<sup>18</sup>O,<sup>16</sup>Of)等。从反应机制上看:周边反应带入体系 的角动量很大,一般有几十个*ħ*。而中子俘获反应属于 中心反应,处在低角动量区域,复合核的角动量一般仅 有几个*ħ*。因此替代法需要做角动量的理论修正,造成 数据分析上的困难。在某些情况下,替代比值法可以消 除一部分自旋的影响,但效果随能量、体系的不同而不 同。可以说,角动量的修正,是替代反应法所面临的最 大的困难。

有鉴于此,我们选择用轻带电粒子的俘获反应作为 替代反应,以复合核做桥梁,测量并计算目标体系的 中子反应截面,即替代俘获反应法。从反应机制上看, 俘获反应形成的复合核角动量很低,与中子反应形成 的复合核自旋相当,减小自旋修正带来的偏差。例如: 用<sup>236</sup>U(α,2n)反应替代<sup>239</sup>Pu(n,2n)反应,生成同一复 合核<sup>240</sup>Pu。激发能相同时,两种途径形成的复合核自 旋差别很小。如图2所示,α+<sup>236</sup>U和n+<sup>239</sup>Pu两种不 同途径形成的复合核,在感兴趣的激发能区,自旋差别 仅±2 ħ,自旋引起的修正较小(可以不必做修正)。



图 2 (在线彩图)中子和α俘获产生复合核的平均自旋 分布及其差别随激发能的变化

以<sup>236</sup>U(α,2n) 替代<sup>239</sup>Pu(n,2n) 为例, 替代俘获法 总体思路如图3所示。



图 3 (在线彩图) 替代俘获反应法原理图

在复合核形成阶段,通过α能量的选择,可以 使α+<sup>236</sup>U熔合反应形成的复合核激发能,与目标 中子n+<sup>239</sup>Pu熔合反应所形成的复合核激发能相同。 复合核在衰变阶段蒸发两个中子剩余<sup>238</sup>Pu,然后通 过测量<sup>238</sup>Pu的α放射性活度,可以知道替代反应 中2n蒸发的截面<sup>236</sup>U(α,2n),并通过计算进一步得 到<sup>239</sup>Pu(n,2n),即

$$\sigma_{(n,2n)} = \sigma_{(\alpha,2n)} \sigma_n^{\rm cap} / \sigma_\alpha^{\rm cap} \quad , \tag{3}$$

其中:中子俘获截面  $\sigma_n^{cap}$  基本上就是几何截面,而且随能量变化缓慢,可利用 ECIS 程序<sup>[7,8]</sup>精确计算;  $\alpha$  俘获截面  $\sigma_\alpha^{cap}$  可以用完全耦合道程序CCFULL<sup>[9]</sup>精确计算,并且与实验测量的裂变截面做比较,进一步约束理论计算的精度。

另外,利用替代俘获反应法还可以提取(n,f),(n, 1n)和(n,3n)等截面,这些是(n,2n)截面研究的副产 物。如果某一反应道,比如(n,f)反应截面已知并且精 度较好,可以作为参考反应道,利用内部比值法进一步 提高目标反应道的数据精度。

## 2 替代俘获法的应用——<sup>236</sup>U(α,2n)替 代<sup>239</sup>Pu(n,2n)

替代俘获法的应用广泛,特别适合用于(n, 2n)反应 截面的研究。我们依托中国原子能科学研究的HI-13串 列加速器开展了替代俘获反应法的研究。以<sup>236</sup>U( $\alpha$ ,2n) 反应替代<sup>239</sup>Pu(n,2n)反应为例,实验共分为三部分: (1)  $\alpha$ +<sup>236</sup>U的在束实验,测量弹性散射和熔合裂变碎 片角分布,可以得到光学势信息和裂变激发函数,约 束  $\alpha$  俘获截面的计算,提高精度;(2)在束<sup>236</sup>U靶辐 照,对18 块<sup>236</sup>U靶进行  $\alpha$ 束流的辐照,能点与在束实 验相同;(3)离线  $\alpha$ 放射性活度测量,长期跟踪<sup>238</sup>Pu 的  $\alpha$ 放射性活度,从而推知 2n 蒸发余核的产额。 通过中国同位素公司购买了5 μg的放射性纯度 为99.99%的<sup>236</sup>U靶材,以硝酸铀溶液的形式存在。 利用电镀法成功制成2块5 μg/cm<sup>2</sup>的厚靶用于在束实 验,18块1 μg/cm<sup>2</sup>的薄靶用于在束辐照和离线测量, 底衬均为2 μm厚的铝膜,靶点直径为φ 5 mm。用离 线测量装置对靶样品进行检测,证明<sup>236</sup>U的纯度极高, 没有其它放射性杂质的干扰。

## **2.1** 在束 α+<sup>236</sup>U 实验设置

在束实验中共放置了 8 个 φ 8 mm 的金硅面垒探测 器来进行弹性散射及裂变碎片角分布的测量。4 个布 置在前角,间隔 20°;另外4 个布置在与前角对应的折 叠角位置。前角和后角的8个探测器通过支架安装在活 动的靶室底座上,实验中每个能量转动靶室底座三次, 每次 5°,探测器角度随之改变,总共可以得到 15° ~ 162.8°之间 32 个角度的弹散和裂变数据。此外,在前 角 25°处放置了 4 个金硅面垒探测器作为监视器,用于 束流的归一和方向修正等。α 束的流强约在 100 ~ 200 enA。

图4显示了前角(a)和后角(b)探测器的能谱。前 角能谱上主要为铝底衬和铀靶的两个弹性散射峰;后角 能谱中,除铀靶弹性散射峰外,在高能处可见明显的双 峰裂变成分。由于底衬较厚,并且背向束流,故前角探 测器难以探测到裂变产物。



图 4 在束 α+<sup>236</sup>U 实验前角 (a) 和后角 (b) 探测器的能谱

### 2.2 在束<sup>236</sup>U靶辐照

在束铀靶辐照采用叠层靶技术,即18块铀靶分为 低能、中能和高能三组进行辐照,每组6块,所有18 块靶对应α粒子能量由高到低分别为{36.00,32.01, 30.11,28.12,27.13,26.12},{26.11,25.08,24.02, 23.52, 23.03, 22.54} 和 {22.55, 22.05, 21.05, 20.01, 18.98, 17.90} MeV。注意到每组之间有相同能点重 复(差别在10 keV 以内), 共有16个有效能点。每组间 的能点重复可以用来相互检验, 保证结果更加平滑。

在束辐照时, α 束的流强约为1 enA,利用水冷法 拉第筒测量束流。另外,在最后一块铀靶后放置薄的金 靶 (约70 μg/cm<sup>2</sup>),利用前角监视器的卢瑟福散射来相 对归一束流,提高束流的标定精度。

### 2.3 离线α放射性活度测量

在离线测量中,我们设计了16套靶-探测器测量系统,测量靶-探测器不同距离情况下计数率的变化,利 用距离法对每套探测器系统的绝对效率进行刻度,提高 实验精度。

通过离线测量,主要确定经2n蒸发反应生成的

<sup>238</sup>Pu 的量。我们的目标核素 <sup>238</sup>Pu 半衰期 87.7 a, 衰 变产生的 α 粒子能量为 5.456 MeV (28.98 %)和 5.499 MeV (70.91 %)。相比之下, 靶中 <sup>236</sup>U 核素的衰变 α 粒 子能量只有 4.445 MeV (26 %)和 4.494 MeV (74 %), 是明显低于目标核 <sup>238</sup>Pu 的。离线测量能谱呈两个明显 的峰,分别对应 <sup>236</sup>U和 <sup>238</sup>Pu 衰变 α 粒子。如图 5 中所 示,低能、中能和高能点离线能谱中可以明显看出两峰 比例发生变化。



### 3 数据处理和分析

### 3.1 裂变数据分析

图6显示了实验测量的17.93 ~ 36.00 MeV间的 共16个能量点的裂变碎片角分布实验值和鞍点过渡态 理论<sup>[10]</sup>的拟合值。通过对角分布的积分可以得到裂变 截面的激发函数。注意到复合核90%以上的概率通过 裂变退激,因此裂变截面可以用来验证完全耦合道程 序CCFULL的计算,提高精度。

#### 3.2 α+<sup>236</sup>U数据分析

从离线测量结果得到单位时间内发生衰变的<sup>238</sup>Pu 核数目,再由放射性物质指数式衰减的规律计算 出<sup>236</sup>U靶中经(α,2n)反应生成的总<sup>238</sup>Pu核数目:

$$N(^{238}\text{Pu}) = -\frac{\mathrm{d}N(^{238}\text{Pu})}{\mathrm{d}t}\frac{1}{\lambda} = -\frac{\mathrm{d}N(^{238}\text{Pu})}{\mathrm{d}t}\frac{\ln 2}{T_{1/2}} , \qquad (4)$$

其中,<sup>238</sup>Pu半衰期相对较长,达到87.7a,在离线测量的时间里我们认为目标核数量 N(<sup>238</sup>Pu)不随时间改变。结合<sup>236</sup>U 靶厚和监测到的入射 α 粒子数,计算得到 2n 蒸发截面:

$$\sigma(^{4}\text{He},2n) = \frac{N(^{238}\text{Pu})}{N(^{236}\text{U})\cdot N(^{4}\text{He})} \quad , \tag{5}$$

其中 $N(^{236}U)$ 为靶厚,即单位面积靶中的 $^{236}U$ 核数目;  $N(^{4}He)$ 为总的入射 $\alpha$ 粒子数。





图 7 显示了  $\alpha$ +<sup>236</sup>U 体系裂变和 2n 蒸发的激发 函数,圆点代表( $\alpha$ ,f)反应截面的实验测量值,实 线代表 CCFULL 的熔合反应截面计算值;菱形点是 测量的( $\alpha$ ,*x*n)截面,高能处混有 3n 的蒸发的成分, 在  $E_{\alpha} = 22 \sim 27$  MeV 范围内,与虚线代表的( $\alpha$ ,2n) 反应截面 PACE4<sup>[11]</sup> 的理论值符合较好。



图 7 (在线彩图) α+<sup>236</sup>U 裂变激发函数和复合核 2n 蒸发 截面

虚线是用统计模型的 PACE4 程序计算的 <sup>236</sup>U(α, 2n) 的结果, 在 2n 峰值区域 ~ 25 MeV 处,理论和实验符合得非常好。

## 3.3 替代俘获法抽取 <sup>239</sup>Pu(n, f) 和 <sup>239</sup>Pu(n, 2n) 截面

作为n+<sup>239</sup>Pu体系的替代反应, $\alpha$ +<sup>236</sup>U体系发 生熔合反应同样生成<sup>240</sup>Pu。以<sup>240</sup>Pu复合核为桥梁, 根据替代反应原理计算<sup>239</sup>Pu(n, f)和<sup>239</sup>Pu(n, 2n)反 应截面,并与评价库ENDFB7数据<sup>[12, 13, 15]</sup>进行对 比。如图8所示,圆点和菱形点分别代表替代俘获法 得到的(n, f)和(n, 2n)反应截面,与评价库数据以 及Lougheed等<sup>[14]</sup>测量的结果在误差范围内相符合。



图 8 (在线彩图) <sup>239</sup>Pu(n, f) 和 <sup>239</sup>Pu(n, 2n) 截面的替 代反应计算值与评价核数据以及 Lougheed 等<sup>[14]</sup>测 量结果的对比

由于ENDF评价库数据在不同版本之间分歧较 大,为此我们进行了B5,B6和B7库,以及相关实 验<sup>239</sup>Pu(n,2n)数据<sup>[12,15]</sup>的比较,如图9所示。其中, Lougheed等<sup>[14]</sup>用14 MeV中子进行<sup>239</sup>Pu(n,2n)的测 量,经过三十多年的跟踪测量残余核的α活度,得到较 为精确的<sup>238</sup>Pu产生截面,即(n,2n)截面。可以看到, 我们的数据与B7库符合较好,而且与Lougheed等<sup>[14]</sup> 在 14 MeV 附近较为精确的 (n, 2n) 截面数据符合很好。 在 (n, 2n) 截面峰值处,即  $E_n$  约 11 ~ 12 MeV 范围内, 我们的数据精度好于 25%;在低能处 ( $E_n < 8$  MeV), 由于统计误差大,数据精度较差。



图 9 (在线彩图) 替代俘获法得到的<sup>239</sup>Pu(n, 2n) 截面与 其它实验数据<sup>[8-11]</sup> 以及 ENDF 评价库数据的比较

4 总结

我们提出轻带电粒子的俘获反应作为替代反应的替 代俘获法,通过<sup>236</sup>U( $\alpha$ ,f)和<sup>236</sup>U( $\alpha$ ,2n)的测量,分别 得到了<sup>239</sup>Pu( $\alpha$ ,f)和<sup>239</sup>Pu(n,2n)反应截面在 $E_n = 5 \sim$ 20 MeV 能区的激发函数。通过与评价核数据库结果进 行对比可以看出,利用替代反应间接提取的<sup>239</sup>Pu(n,f) 和 (n, 2n)反应截面,在误差范围内与数据库的数据相 符合,证明替代俘获法用于测量超铀核中子反应数据是 一个强有力的方法。

对于直接测量较容易的反应,替代反应法提供一种 有效补充和交叉检验;对于直接测量存在困难的反应, 替代反应法是一个切实可行的方法。

替代反应法需要关注和发展。在未来工作中,我们 将会推动替代反应方法在研究实验上难以直接测量的核 数据方面中的应用,特别是锕系核区中子诱导核反应相 关核数据的测量,这将在核能源、核武器、核技术应用 方面发挥实际作用。

#### 参考文献:

- ESCHER J, BURKE J T, DIETRICH F S, et al. Rev Mod Phys, 2012, 84: 353.
- [2] CRAMER J D, BRITT H C. Phys Rev C, 1970, **2**: 2350.
- [3] PLETTNER C, AI H, BEAUSANG C W, et al. Phys Rev C, 2005, **71**: 051602(R).
- [4] BURKE J T, BERNSTEIN L A, ESCHER J, et al. Phys Rev C, 2006, 73: 054604.
- [5] ESCHER J, DIETRICH F S. LLNL Tech Rep, 2005 no: UCRL-TR-212509-Draft (unpublished).

- [6] ESCHER J, DIETRICH F S. Second Argonne/MSU/JINA/ INTRIA Workshop: Reaction Mechanisms for Rare Isotope Beams (Michigan State University, East Lansing, March 9 - 12, 2005), AIP Conf Proc No 791, 2005: 93.
- [7] RAYNAL J. Technical Report No. SMR-9/8, IAEA.
- [8] RAYNAL J. ICTP International Seminar Course (IAEA, ICTP, Trieste, Italy), 1972: 281
- [9] HAGINOA K, ROWLEYB N, KRUPPAC A T. Computer Physics Communications, 1999, 123(1-3): 143.doi: 10.1016/ S0010-4655(99)00243-X
- [10] BOHR A. Proc Int Conf, Peaceful Uses At Energy, Geneva, United Nations, New York, 1956, 2: 151.

- $[11] \ (fusion-evaporation\ code)\ http://lise.nscl.msu.edu/lise.html.$
- [12] BERNSTEIN L A, BECKER J A, GARRETT P E, et al. Phys Rev C, 2002, 65: 021601(R).
- [13] PRONYAEV V G, BADIKOV S A, CARLSON A D, et al. personal communication, 2005.
- [14] LOUGHEED R W, WEBSTER W, NAMBOODIRI M N, et al. Radiochim Acta, 2002, 90: 833.
- [15] FREHAUT J, BERTIN A, BOIS R, et al. Nucl Sci Eng, 1980,
  74: 29. doi:10.13182/NSE80-A18943
- [16] MATHER D S, BAMPTON P F, COLES R E, *et al.* Nind P
  J: Report AWRE-O-72/,1972:72; Report AWRE-O-47/,1969:
  69.

# Measurement of (n, f) and (n, xn) Cross Sections of Actinides with the Surrogate Reaction Method

MA Nanru, LIN Chengjian<sup> $\dagger$ </sup>, JIA Huiming, XU Xinxing, YANG Feng, YANG Lei, SUN Lijie, WANG Dongxi,

LIU Zuhua, ZHANG Huanqiao

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: There are always difficulties in the direct measurement of reactions induced by neutron, in order to obtain the neutron induced nuclear reaction data which are extremely important for nuclear power development, the surrogate reaction method, which uses charged particles instead of neutron, was proposed. The existing surrogate reaction method generally chooses peripheral reaction as the surrogate reaction, such as inelastic scattering excitation or transfer reaction. As a result, the angular momentum involved is always far larger than the neutron induced reaction, which causes difficulties in the theoretical calculation. Because of this, we proposed to use light-ion capture reaction as the surrogate reaction, the compound nuclei spin is similar with that of the neutron induced reaction, so that the difficulties in spin correction can be effectively avoided. Based on this idea, the  $^{239}$ Pu(n, f) and (n, 2n) reaction cross sections were successfully extracted using  $^{236}$ U( $\alpha$ , f) and ( $\alpha$ , 2n) reactions as the surrogate reaction. The results coincide well with the data of ENDFB7 within the error range, which shows that the surrogate reaction method has its own superiority, and it can be applied in the measurement of nuclear data.

Key words: neutron reaction; surrogate reaction; capture reaction; (n, f) cross section; (n, 2n) cross section

Received date: 20 Nov. 2016; Revised date: 30 Mar. 2017

Foundation item: National Key Basic Research Development Program of China(2013CB834404); National Natural Science Foundation of China(11375268, 11475263, U1432127, U1432246, 11505293, 11635015)

<sup>†</sup> Corresponding author: LIN Cheng jian, E-mail: cjlin@ciae.ac.cn.