

文章编号: 0253-9950(2002)02-0117-05

22 MeV 中子诱发²³⁵U 裂变的质量分布

冯晶¹, 刘永辉¹, 杨毅¹, 鲍杰¹, 李泽², 祁步嘉¹, 周祖英¹,
唐洪庆¹, 阮锡超¹, 崔安智², 孙宏清², 张生栋², 郭景儒²

1. 中国原子能科学研究院核物理研究所, 北京 102413;

2. 中国原子能科学研究院放射化学研究所, 北京 102413

摘要: 用射线能谱法测定了 22 MeV 中子诱发²³⁵U 裂变产额。裂变率用双裂变室测定, 得到了 29 个质量链的产额。

关键词: 裂变产额; 质量分布; ²³⁵U; 能谱法

中图分类号: O614.62 **文献标识码:** A

单能中子诱发²³⁵U 裂变产额在国际上已有很多的探索^[1~4], 而 22 MeV 中子诱发²³⁵U 裂变产物产额目前尚无文献报道, 部分原因是合适的单能中子源难以获得。由于入射中子能量高, 不仅会发生二次机会裂变, 还存在着三次、四次机会裂变, 因此测定此单能点的产额对于研究²³⁵U 裂变产额随中子能量变化很有裨益。而且对于核裂变机制的研究也有一定意义。

本工作应用能谱法测量 22 MeV 中子引起²³⁵U 裂变的质量分布, 以期得到质量数从 84 到 151 共 29 个质量链的产额测量结果。

1 实验部分

1.1 材料和设备

被照厚铀靶是直径为 16 mm, 厚度为 0.6 ~ 0.8 g/cm² 的金属铀片, 同位素成份为: 1.1% ²³⁴U, 90.2% ²³⁵U, 0.3% ²³⁶U, 8.4% ²³⁸U。金属铀片用硝酸洗涤除去氧化层后准确称重并用厚度为 5 mg/cm² 的纯铝箔封包。薄标准靶是用与厚靶

来源相同的浓缩铀²³⁵U 经分子电沉积在 0.10 ~ 0.15 mm 厚的铂金底衬上制成。沉积层的直径为 16 mm, 厚度为 0.3 ~ 0.4 mg/cm²。标准靶用 4 种方法定量^[5]: (1) 分子电沉积法; (2) 微量滴定法; (3) 在热中子束上测定裂变比方法; (4) 小立体角法绝对测定衰变率。为了减少中子散射影响, 双裂变室尽量做到小而轻, 电极为直径 54 mm 的铝片, 高压极厚为 1 mm, 收集极厚为 0.2 mm。裂变室为壁厚 2 mm 的铝筒。电缆接头固定在 8 mm 厚的黄铜法兰盘上, 距电极 205 mm。裂变室外包 1 mm 厚的镉以屏蔽热中子。利用双裂变室可以实现裂变率的绝对测量, 并监测裂变率随时间的变化。

1.2 铀靶的照射和裂变率的监测

在中国原子能科学研究院的 HF-13 串列加速器的右 70 靶站完成铀靶的辐照。利用 T(d, n)⁴He 反应获得单能中子。气体靶室的直径 10 mm, 长 40 mm, 内充 0.22 MPa 氘气^[6]。入射氘束能量为 6.0 MeV, 束流强度 2 μA。在零度方向得到

收稿日期: 2001-03-30; 修订日期: 2001-08-24

作者简介: 冯晶(1974—), 男, 山西平定人, 实习研究员, 应用物理专业。

22 MeV的准单能中子。靶子置于 0°角方向,距气体靶室 5 cm 处。铀靶的裂变率 (\bar{n}_f) 为前后二标准靶裂变率 (n_{fa}, n_{fb}) 的平均值:

$$\bar{n}_f = \frac{1}{2} (n_{fa} + n_{fb}) \quad (1)$$

1.3 探测器效率刻度

用 HPGe 探测器测定裂变产物核素的 γ 射线能谱。P 型同轴 HPGe 探测器的体积为 110 cm³, 对⁶⁰Co 的 1 332.5 keV 的 γ 射线分辨率 (FWHM) 为 1.8 keV。被测的铀靶放在已知效率的样品架上,可根据样品活度选择样品架以调节样品与探测器的距离。由于活度较低,实验中样品放置在距探测器顶壳 1.3 cm 的 0 号位置。8 号位置距探测器顶壳为 31.6 cm。探测器外盖一厚为 1.4 mm 的铜片以屏蔽低能 X 射线。8 号位的探测效率 ϵ_8 用¹⁵²Eu 作相对刻度,用法国家标准源⁵⁴Mn, ⁵⁷Co, ⁶⁵Zn, ¹⁰⁹Cd, ¹³⁷Cs 作绝对刻度。选取一系列没有级联发射的 γ 过渡源:⁹⁵Zr, ¹⁰³Ru, ¹³²Te, ¹³³Ba, ¹⁴⁰Ba, ¹⁴¹Ce, ¹⁴⁴Ce, ¹⁴⁷Nd 等,测定 0 号位效率 ϵ_0 与 8 号位效率 ϵ_8 的比值 R , ϵ_0 可由 R 和 ϵ_8 计算: $\epsilon_0 = R \cdot \epsilon_8$, 绘制 $\epsilon_0 - E$ 曲线,并示于图 1。图 1 曲线由经验公式拟合实验点而成:

$$\ln \epsilon_0 (E) = a_1 E + a_2 + a_3 \ln E / E + a_4 / E + a_5 / E^2 + a_6 / E^3$$

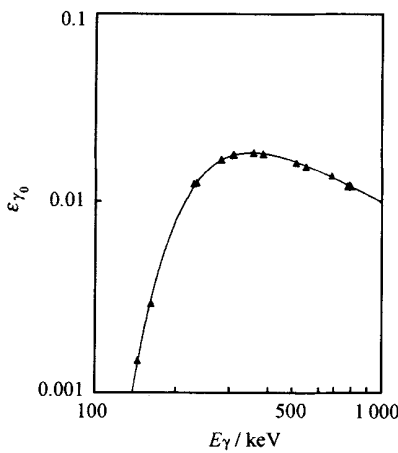


图 1 探测器效率曲线

Fig. 1 Efficiency curve of detector

效率的精确度好于 2%。铀靶厚度与效率刻度源的厚度不同。改变源与探测器之间的距离得几何校正系数为: $g_c = 1 + 0.0323(0.2 + \frac{1}{2})$, 其中 $\frac{1}{2}$ 为铀靶的厚度, mm。

1.4 裂变产物 γ 谱的获取

辐照结束后,利用 HPGe 探测器记录裂变产物的 γ 谱。为了得到较好的统计结果和区分相近能量不同半衰期的 γ 峰,每块样品都经过两个月左右的连续 γ 谱测量。

2 结果与讨论

2.1 裂变产额的计算

得到裂变产物的 γ 谱后,利用程序 SPAN^[7] 解谱可获得产物核素的 γ 峰面积。再利用杨毅编写的程序 FYAUTOLS 处理,即可得到裂变产物级联校正后的累积产额,然后经过独立产额校正,同位素校正,本底中子校正等诸多修正,得到链产额。累积产额用如下方法计算:

对于链 A → B → C,如果核素 A 的所有先导核的半衰期远小于 A,而 B 核可以通过 γ 谱方法测量,C 是稳定核,则 A 核的累积产额 (Y_A) 可以由下式得到:

$$Y_A = R_B \left[I - M \frac{B}{A(B - A)} K_A M_A + \left(\frac{Y_B}{B Y_A} - \frac{A}{B(B - A)} \right) K_B M_B \right]$$

式中:

$$K_A = (1 - e^{-\lambda_A t_1}) e^{-\lambda_A t_1};$$

$$K_B = (1 - e^{-\lambda_B t_1}) e^{-\lambda_B t_1};$$

$$M_A = \sum_{i=1}^n N_i (1 - e^{-\lambda_A T_i}) e^{-\lambda_A t_i};$$

$$M_B = \sum_{i=1}^n N_i (1 - e^{-\lambda_B T_i}) e^{-\lambda_B t_i}.$$

式中, Y_B : B 核的独立产额; R_B : 在测量时间内, B 核分支的计数,即 γ 谱的全能峰面积; λ_A, λ_B : A 核和 B 核的衰变常量; M : 铀靶质量; I : B 核衰变的 γ 射线分支比; ϵ : 探测效率; N_i : T_i 时间内的裂变率; T_i : 辐照的第 i 个时间间隔; t_i 为第 i 个间隔结束到辐照结束之间的时间间隔; t_1 为冷却时间; t 为测量时间。用到的衰变数据列入表 1。产额的计算结果列入表 2。相应的质量分布曲线示于图 2。

表 1 裂变产物核素衰变数据 *

Table 1 Decay data of fission products

A	核素(Nuclide)	E / keV	I / %	T _{1/2} / min	A	核素(Nuclide)	E / keV	I / %	T _{1/2} / min
85	⁸⁵ Kr	304.9	13.70	268.8	115	¹¹⁵ Cd	336.3	50.10	3 208
87	⁸⁷ Kr	402.6	49.60	76.30	127	¹²⁷ Sb	473.2	24.70	5 544
88	⁸⁸ Rb	898.1	14.10	17.80	128	¹²⁸ Sn	482	59.00	59.10
89	⁸⁹ Rb	1 248.1	42.60	15.15	129	¹²⁹ Sb	812.4	43.00	264.0
91	⁹¹ Sr	555.6	61.50	571.2	131	¹³¹ I	364.5	81.70	11 580
92	⁹² Sr	1 384.1	90.00	162.6	132	¹³² I	667.7	98.70	137.7
94	⁹⁴ Y	918.8	56.00	18.70	133	¹³³ I	530.5	86.00	1 248
95	⁹⁵ Zr	756.7	54.50	92 190	135	¹³⁵ Xe	249.8	90.20	546.2
97	⁹⁷ Zr	742.7	92.80	1 014	138	¹³⁸ Cs	1435.8	76.30	32.20
99	⁹⁹ Mo	739.5	12.14	3 957	140	¹⁴⁰ Ba	537.3	24.39	18 350
101	¹⁰¹ Tc	306.5	88.00	14.20	142	¹⁴² La	641.3	47.40	91.10
103	¹⁰³ Ru	497.1	91.01	56 530	143	¹⁴³ Ce	293.3	42.00	1 980
104	¹⁰⁴ Tc	358	79.00	18.30	147	¹⁴⁷ Nd	531	13.10	15 810
105	¹⁰⁵ Ru	724.2	46.70	266.4	151	¹⁵¹ Pm	340.1	22.00	1 704
112	¹¹² Ag	617.5	43.00	188.4					

注(Note) : “ * ”表示数据引自参考文献[8] (The values are quoted from reference [8])

表 2 22 MeV中子诱发²³⁵U 裂变产物产额

Table 2 Fission yields in 22 MeV neutron-induced fission of ²³⁵U

裂变产物 (Fission product)	Y/ %	s/ %	裂变产物 (Fission product)	Y/ %	s/ %
⁸⁵ Kr ^m	0.97	0.08	¹¹⁵ Cd	1.20	0.14
⁸⁷ Kr	2.61	0.11	¹²⁷ Sb	1.49	0.13
⁸⁸ Rb	3.26	0.15	¹²⁸ Sn	2.06	1.45
⁸⁹ Rb	4.22	0.25	¹²⁹ Sb	2.37	0.50
⁹¹ Sr	4.25	0.16	¹³¹ I	3.70	0.83
⁹² Sr	4.93	0.24	¹³² I	4.16	0.15
⁹⁴ Y	4.85	0.22	¹³³ I	5.66	0.25
⁹⁵ Zr	4.67	0.18	¹³⁵ Xe	5.84	0.29
⁹⁷ Zr	5.08	0.19	¹³⁸ Cs	5.85	0.59
⁹⁹ Mo	4.90	0.18	¹⁴⁰ Ba	4.45	0.17
¹⁰¹ Tc	4.14	0.17	¹⁴² La	3.76	0.18
¹⁰³ Ru	2.28	0.11	¹⁴³ Ce	4.25	0.18
¹⁰⁴ Tc	3.10	0.18	¹⁴⁷ Nd	2.10	0.12
¹⁰⁵ Ru	2.47	0.15	¹⁵¹ Pm	0.45	0.02
¹¹² Ag	1.51	0.15			

2.2 产额测量误差来源

应用直接 能谱方法测量中子诱发重核裂变产额的误差主要来自 : (1) 裂变率的绝对测定 ; (2) 中子本底的影响 ; (3) 射线在靶中自吸收校正误差 ; (4) 谱峰面积的统计误差 ; (5) 计算机解 谱的误差 , 特别是解重峰误差 ; (6) 射线级联相加符合校正的误差 ; (7) 计数堆垒损失校正误差 ;

(8) 探测系统绝对效率的刻度。表 2 中给出产额的总误差是上述各项误差的方和根值。但核谱学数据的误差未包括在内。

2.3 射线自吸收的校正

厚靶的一个重要校正量是 射线在靶中的自吸收。如果产物核素 射线是沿靶的厚度方向按 e 指数衰减分布 , 当中子入射面对着探测器方向

所测到的 射线计数率为 A_d 时,自吸收校正系数为 C_d ,活度 $A_0 = A_d / C_d$ 。 C_d 用下式计算:

$$C_d = \frac{\ln T_n}{1 - T_n} \cdot \frac{1 - T_n \cdot T}{\ln T + \ln T_n} \quad (2)$$

式中, T_n , T 分别为中子和 射线在靶中的穿透率。沿相反方向测量时,测得的 射线计数率为 A_u ,自吸收校正系数为 C_u ,活度 $A = A_u / C_u$,而 C_u 可用下式计算:

$$C_u = \frac{\ln T_n}{1 - T_n} \cdot \frac{T - T_n}{\ln T + \ln T_n} \quad (3)$$

本实验对 射线在金属铀靶中的穿透率作了仔细测量,考虑了不同 射线能量、不同靶厚和不同几何位置等因素的影响。对 ^{95}Zr , ^{140}Ba , ^{147}Nd 这 3 个核素的 能量而言, 穿透率的精确度可达到 0.5%,对产额误差的影响小于 0.3%。

2.4 本底中子校正

快中子裂变产额测量中除了上述诸校正量

外,比较重要的是扣除低能中子的影响。用飞行时间(TOF)技术测定中子能谱,并使中子探测器中心对中子源所张立体角与铀靶对中子源所张立体角相同。中子探测器是有机液体闪烁体,中子探测阈在 0.8 MeV。用 TOF 技术测量 0.8 MeV 能量以上的中子能谱,0.8 MeV 以下的中子能谱利用外推得到,从而也得到在靶中产生的裂变数分布。根据这样的裂变数分布,再用已知的产额编评值拟合出产额随诱发中子能量变化的曲线,从测定的总产额 $Y_{f,m}$ 中扣除本底中子的贡献,得到 22 MeV 能量点的产额 $Y_{f,22}$:

$$Y_{f,22} = Y_{f,m} + \left[Y_{f,m} - \frac{\int_{E_t}^{E_s} N_f(E) Y_f(E) dE}{\int_{E_t}^{E_s} N_f(E) dE} \right] \cdot \frac{\int_{E_t}^{E_s} N_f(E) dE}{N_{f,22}} \quad (4)$$

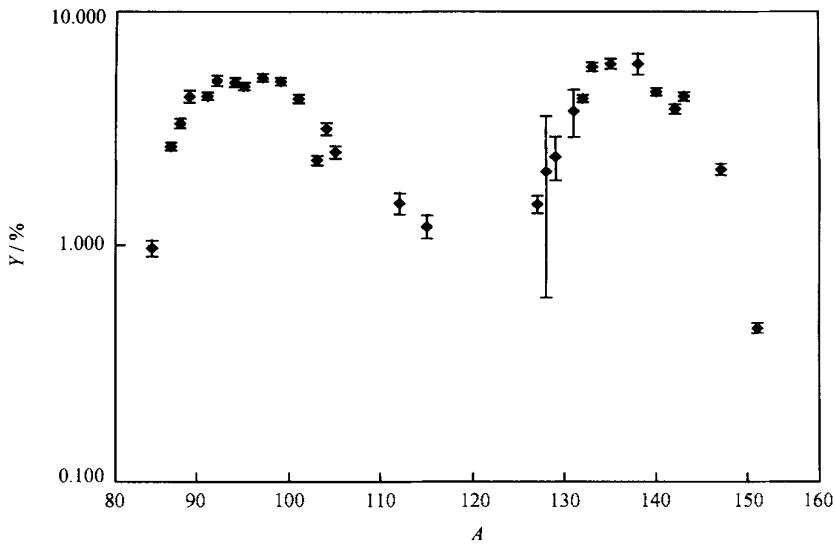


图 2 22 MeV 中子诱发 ^{235}U 裂变质量分布

Fig. 2 Mass yield for 22 MeV neutron-induced fission of ^{235}U

式中: $Y_f(E)$ 和 $N_f(E)$ 分别为能量 E 点的产额和裂变数; E_t 和 E_s 分别为热中子能量和本底与 22 MeV 中子能量界限,这里取 $E_s = 21$ MeV; $N_{f,22}$ 为 22 MeV 的裂变数,从裂变数分布曲线可得 0 至 21 MeV 中子与 22 MeV 中子诱发的裂变数之比为 $\frac{\int_{E_t}^{E_s} N_f(E) d(E)}{N_{f,22}} = 0.38$ 。将测量的 $Y_{f,m}$ 代入式 (4) 并进行多次迭代可得到 $Y_{f,22}$ 。

2.5 裂变产额值

本次实验共辐照了 2 块厚样品,经辐照后的样品采用高纯锗 (HPGe) 谱仪进行裂变产物核素分析和获取 峰面积数据。在 谱数据获取过程中,由于此次实验辐照的样品较少,既要尽可能多地得到更多的裂变产物核素的产额,又要尽量减小 计数的统计误差,测量中根据感兴趣的核素的特点,如 射线能量,探测器的效率,核素之

间 能量的相互干扰的程度以及产物核素的半衰期等因素都给予了适当的考虑。在产物核素鉴别时,对每个核素都绘出了 射线强度随时间变化曲线。这样可以清楚地看出是否存在有相应的干扰核素,如果有干扰核素可以通过分解半衰期方法对其进行分解,或者直接剔除干扰和误差较大部分。为了减少干扰产物核素对感兴趣核素引入的误差,测量过程中对感兴趣核素按半衰期不同而采用不同的冷却时间。为了尽可能多的积累数据,实验中采用了批任务作业数据获取方法,这样可以较少地损失计数积累的机会。

本次实验得到 29 个质量链的产额。测得的轻峰和重峰和分别为 $(53.8 \pm 2.7) \%$ 和 $(49.3 \pm 4.9) \%$ 。考虑用内插和外推得到未测定的产额后,轻峰和重峰的产额之和分别为 101.0% 和 99.0% 。

参考文献:

- [1] CHAPMAN T C, ANGELON C A, SPITALS C C, et al. Fission Product Yields From 6 - 9 MeV Neutron - Induced Fission of ²³⁵U and ²³⁸U [J]. Phys Rev C, 1978, 17: 1 089.
- [2] GLENDENIN L E, GINDLER J E, HENDERSON D J, et al. Mass Distributions for Monoenergetic - Neutron - Induced Fission of ²³⁵U [J]. Phys Rev C, 1981, 24: 2 600.
- [3] CUNINGHAME J G, GOODALL J A B, WILLIS H H. Absolute Yields in the Fission of ²³⁵U By Mono - Energetic Neutrons of Energy 130 ~ 1 700 keV [J]. J Inorg Nucl Chem, 1974, 36: 1 453.
- [4] JAMES M F, MILLS R W, WEAVER D R. A New Evaluation fo Fission Product Yields and the Production of a New Library (U KFYZ) of Independent and Cumulative Yields. Part . Tables of Measured and Recommended Fission Yields [R]: AEA- TRS-1018. UK: Atomic Energy Authority, 1991.
- [5] 李 泽,王连璧,王维国,等. 裂变率的绝对测量[J]. 原子能科学技术,1980,5:600~605.
- [6] 祁步嘉,周祖英,周陈维,等. HF13 串列加速器上的氦气体靶装置[J]. 原子能科学技术,1997,5:385.
- [7] WANG Li-yu. Mutiple Processing in High Resolution Gamma Spectroscopy [J]. Int J Appl Radiat Isot, 1989, 40(7): 575 ~ 579.
- [8] RICHARD B F. Table of Isotopes (8th) [M]. California: Lawrence Berkeley National Laboratroy, University of California, 1996.

MASS DISTRIBUTION IN 22 MeV NEUTRON INDUCED FISSION OF ²³⁵U

FENG Jing¹, LIU Yong-hui¹, YNAG Yi¹, BAO Jie¹, LI Ze², QI Bu-jia¹, ZHOU Zu-ying¹,
TANG Hong-qing¹, RUAN Xi-chao¹, CUI An-zhi², SUN Hong-qing²,
ZHANG Sheng-dong², GUO Jing-ru²

1. China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(46), Beijing 102413, China;
2. China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(26), Beijing 102413, China

Abstract : The chain yields of 29 product nuclides are determined for the fission of ²³⁵U induced by 22 MeV neutrons. Fission rate is monitored with a double-fission chamber. Fission product activities are measured by HPGe ray spectrometry. Time of flight technique is used to measure the neutron spectrum in order to estimate fission events induced by break-up neutrons and scattering neutrons. A mass distribution curve is obtained after correction for background neutrons.

Key words : fission yield; mass distribution; ²³⁵U; ray spectrometry