

## 14.7MeV中子诱发 $^{237}\text{Np}$ 裂变的质量分布

孙彤玉 李文新 傅 民 赵莉莉

(中国科学院近代物理研究所, 兰州)

**关键词**  $^{237}\text{Np}$ , 中子, 裂变产额,  $\gamma$  能谱法.

### 一、引 言

目前, 从14MeV中子诱发裂变的实验数据中, 已对若干锕系核裂变的质量产额作过较为完整的测定。研究过的核素有 $^{232}\text{Th}$ <sup>[1]</sup>,  $^{233-236}\text{U}$ <sup>[2]</sup>,  $^{238}\text{U}$ <sup>[3,4]</sup>,  $^{239}\text{Pu}$ <sup>[5]</sup>,  $^{240}\text{Pu}$ <sup>[6]</sup>,  $^{242}\text{Pu}$ <sup>[7]</sup>和 $^{241}\text{Am}$ <sup>[8]</sup>。但 $^{237}\text{Np}$ 的14MeV中子诱发裂变, 迄今尚无比较完整的裂变产物产额数据。1960年Coleman等<sup>[9]</sup>用放化法测定了从 $^{91}\text{Sr}$ 到 $^{159}\text{Gd}$ 共19个裂变产物的产额。B. Ф. Теплых等<sup>[10]</sup>用质谱法测定了 $^{237}\text{Np}$ 裂变中若干Xe同位素的累积产额, 发现精细结构峰在 $A=134$ 处。本工作用 $\gamma$ 能谱法测定了14.7MeV中子诱发 $^{237}\text{Np}$ 裂变的裂变产物产额。

### 二、实验部分

#### 1. 试剂和仪器

$\text{NpO}_2$ , 国营404厂生产,  $(\text{Th}+\text{U})/\text{Np}=0.03\%$ ,  $\text{Pu}/\text{Np}=0.04\%$ ;  $\gamma$ 标准源, 中国原子能科学研究院产品; Ge(Li)探测器; Multi-20多道分析器; PDP-11/44计算机。

#### 2. 样品辐照

将约100mg $\text{NpO}_2$ 置于有机玻璃圆盒内, 并压成薄片。圆盒四周用1mm厚的金属镉覆盖后, 在600kV高压倍加器上通过 $\text{T}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ 进行辐照, 典型的中子总输出为 $2 \times 10^{11}$ 中子/s。共照了二个样品, 一个样品专门用于测定较短半寿命核素的产额, 辐照时间为14min, 另一个样品用来测定长寿命核素, 辐照时间为5.2h。

#### 3. 裂变产额测定

裂变产物的 $\gamma$ 放射性用60cm<sup>3</sup>的Ge(Li)探测器和Multi-20组成的4096道 $\gamma$ 谱仪测量。谱仪对 $^{60}\text{Co}$ 的1.332MeV  $\gamma$ 线的分辨为2.2keV。 $\gamma$ 探测器的效率用一套 $\gamma$ 标准源刻度。效率误差为3—6%。

为了提高裂变产物 $\gamma$ 放射性测量统计精度, 对两样品均作了连续跟踪测量, 短照射样品

1989年2月22日收到, 1989年4月16日收到修改稿。

测量持续7h, 长照射样品, 测量持续一个月, 共获取46个 $\gamma$ 谱, 在PDP-11/44计算机上用解谱程序GAMAPU分析, 选出感兴趣的裂变产物的特征 $\gamma$ 射线, 由此得到 $\gamma$ 放射性衰变曲线, 并将它在Tektronix-4014图象显示终端上用最小二乘分析程序TAU85分解, 得到所测裂变产物在照射结束时的放射性强度。对 $\gamma$ 射线探测效率, 绝对 $\gamma$ 射线发射强度 $I_\gamma$ , 照射饱和度进行校正后计算产物的裂变产额。用裂变产物 $^{97}\text{Zr}$ 为参考核得到相对产额,  $^{97}\text{Zr}$ 裂变产额取值为 $5.43 \pm 0.49\%$ , 计算产额用的有关核数据列入表1。数据处理方法参见文献[1]。实验误差包括 $\gamma$ 探测效率3—6%, 光电峰面积计算、计数的统计误差和衰变曲线拟合引起的误差以及参考核带来的误差。

表1 裂变产物核数据

核素	半衰期	能量, keV	分支比, %	核素	半衰期	能量, keV	分支比, %		
$^{89}\text{Rb}$	15.4min	1031.9	63.9	$^{130}\text{Sb}$	40.0min	793.4	100.0		
		1248.1	46.7			$^{131}\text{I}$	8.04d	364.5	81.2
$^{91}\text{Sr}$	9.48h	749.8	23.0	$^{132}\text{Te}$	76.2h	552.6**	16.6**		
		1024.3	32.5					667.7**	102.0**
$^{97}\text{Zr}$	17.0h	657.9**	106.0**			772.1**	78.7**		
		743.4**	92.7**	$^{133}\text{I}$	20.8h	529.9	87.0		
$^{99}\text{Mo}$	66.0h			$^{134}\text{Te}$	41.8min				
$^{99\text{m}}\text{Tc}$ ***	6.02h	140.5	87.6	$^{134}\text{I}$ ***	52.6min	847.0	95.4		
$^{103}\text{Ru}$	39.4d	497.1	86.4			884.1	65.3		
$^{105}\text{Ru}$	4.44h	469.4	17.6	$^{135}\text{I}$	6.61h	526.6**	13.8**		
		676.4	15.7					1131.5	22.5
		724.2	47.6					1260.4	28.6
$^{112}\text{Pd}$	21.05h	617.4**	49.9**	$^{138}\text{Xe}$	14.1min				
$^{123\text{m}}\text{Sn}$	40.1min	160.3	85.4	$^{138\text{g}}\text{Cs}$ ***	32.2min	462.8	30.7		
$^{125\text{m}}\text{Sn}$	9.52min	331.9	94.8	$^{138\text{m}}\text{Cs}$	2.90min	191.7	20.0		
$^{127}\text{Sb}$	3.85min	473.0	25.0	$^{140}\text{Ba}$ *	12.79h	537.3	24.0		
		685.7	35.7	$^{142}\text{La}$	1.55h	641.2	53.0		
$^{128\text{g}}\text{Sb}$	9.01h	754.0	100.0	$^{146}\text{Pr}$	24.1min	453.8	48.0		
$^{133}\text{Sb}$	4.32h	812.8	43.5						

\*  $\gamma$ 衰变性质取自文献 [12]; \*\* 平衡子体发射的 $\gamma$ 射线; \*\*\* 与母核平衡的核。

对于母体和子体半衰期相差不很多的核素如 $^{134}\text{Te} \rightarrow ^{134}\text{I}$ ,  $^{138}\text{Xe} \rightarrow ^{138\text{g}}\text{Cs}$ 的质量产额计算, 考虑了照射过程中来自母体的 $\beta$ 衰变影响。

### 三、结果和讨论

实验测定了从 $^{89}\text{Rb}$ 到 $^{146}\text{Pr}$ 共22个裂变产物的产额。得到了18个质量数的链产额, 其中 $^{89}\text{Rb}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{105}\text{Ru}$ ,  $^{129}\text{Sb}$ ,  $^{133}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Te}$  ( $^{134}\text{I}$ ),  $^{135}\text{I}$ ,  $^{138}\text{Xe}$  ( $^{138\text{g}}\text{Cs}$ ,  $^{138\text{m}}\text{Cs}$ ),  $^{142}\text{La}$ 和 $^{146}\text{Pr}$  10个质量数的链产额是我们首次报道的。表2列出了本工作的测量结果以及Coleman等<sup>[9]</sup>的数据, 给出的误差为实验标准偏差。用两种数据描绘出质量分布曲线示于图1, 其中质量分布左翼根据由Coleman等测定的稀土产额的对映点描绘。计算对映点时, 每次裂变中子蒸发数取 $4.5^{[9]}$ 。

表2 14.7MeV中子诱发 $^{237}\text{Np}$ 裂变产额

核素	裂变产额, %		核素	裂变产额, %	
	本文	文献值*		本文	文献值*
$^{89}\text{Rb}$	$1.37 \pm 0.20$		$^{132}\text{Te}$	$4.24 \pm 0.4$	$4.29 \pm 0.74$
$^{91}\text{Sr}$	$3.31 \pm 0.54$	$2.71 \pm 0.25$	$^{133}\text{I}$	$5.85 \pm 0.57$	
$^{93}\text{Y}$		$4.94 \pm 0.25$	$^{134}\text{Te}$	$3.46 \pm 0.54$	
$^{97}\text{Zr}$	$5.43 \pm 0.49$	$5.43 \pm 0.49$	$^{134}\text{I}$	$1.62 \pm 1.34^{***}$	
$^{99}\text{Mo}$	$5.69 \pm 0.88$	4.94	A=134	$4.68 \pm 1.53$	
$^{103}\text{Ru}$	$5.07 \pm 1.0$		$^{136}\text{I}$	$4.69 \pm 0.51$	
$^{105}\text{Ru}$	$3.63 \pm 0.54$		$^{136}\text{Xe}$	$0.864 \pm 0.70$	
$^{105}\text{Rh}$		$3.5 \pm 0.20$	$^{138g}\text{Cs}$	$2.77 \pm 0.87^{***}$	
$^{106}\text{Pd}$		$1.48 \pm 0.25$	$^{138m}\text{Cs}$	$3.65 \pm 0.58$	
$^{112}\text{Pd}$	$1.37 \pm 0.31$	$1.23 \pm 0.05$	A=138	$4.30 \pm 1.35$	
$^{111}\text{Ag}$		$1.23 \pm 0.05$	$^{136}\text{Ba}$		$4.84 \pm 0.35$
$^{116}\text{Cd}$		$1.23 \pm 0.05$	$^{140}\text{Ba}$	$4.97 \pm 0.61$	$4.89 \pm 0.35$
$^{123m}\text{Sn}$	$0.70 \pm 0.1^{**}$		$^{142}\text{La}$	$3.78 \pm 0.47$	
$^{125m}\text{Sn}$	$0.5 \pm 0.28^{**}$		$^{143}\text{Ce}$		$3.60 \pm 0.74$
$^{127}\text{Sb}$	$2.85 \pm 0.37$	$2.52 \pm 0.15$	$^{146}\text{Pr}$	$1.53 \pm 0.58$	
$^{128g}\text{Sb}$	$1.42 \pm 0.41^{**}$		$^{147}\text{Nd}$		$1.73 \pm 0.25$
$^{129}\text{Sb}$	$2.53 \pm 0.48$		$^{153}\text{Sm}$		$0.32 \pm 0.025$
$^{130g}\text{Sb}$	$1.06 \pm 0.19^{**}$		$^{157}\text{Eu}$		$0.094 \pm 0.30$
$^{131}\text{I}$	$3.30 \pm 0.38$	$3.55 \pm 0.59$	$^{159}\text{Eu}$		$0.069 \pm 0.03$

\* R. F. Coleman等<sup>[9]</sup>的实验值; \*\* 只测定了一个同质异能素的产额; \*\*\* 该产额为独立产额。

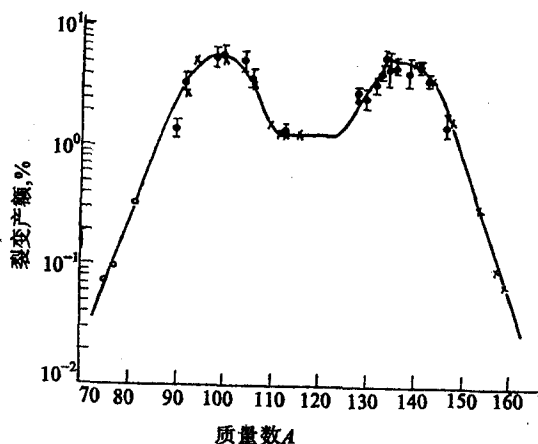


图1 14.7MeV中子诱发 $^{237}\text{Np}$ 裂变的质量分布

□——实验点, ×——文献点, ○——对映点。

的低能部份形成了极强的康普顿本底,以致于某些低产额峰,尤其是能量在400keV以下的峰被掩盖了。因此想要获得更多裂变产额,就必须在照射前采用放射化学方法除去 $^{237}\text{Np}$ 的子体 $^{233}\text{Pa}$ ,或者在照射后进行化学分离。由于我们实验室防护设备的限制,未能进行这样的分离。

中子诱发铀系核裂变的质量分布,重峰峰位几乎保持不变,轻峰峰位随裂变核质量增加而近似线性的增加<sup>[7]</sup>,本文测定结果符合这个趋势并和 $^{238}\text{U}$  14MeV中子裂变结果相当接近<sup>[3,4]</sup>。本文测定重峰精细结构峰在A=133处,与Теплых等测定的在A=134处不相符,这可能与我们的A=134质量链误差较大有关。

我们曾在14.7MeV中子诱发 $^{232}\text{Th}$ 裂变的质量分布研究中,同样使用Ge(Li)  $\gamma$ 射线能谱法测定了53个裂变产物的产额,得到40个质量数的链产额,但本文只测得18个质量链的裂变产额,其原因是靶子 $^{237}\text{Np}$ 及其平衡子体 $^{233}\text{Pa}$ 有非常强的 $\gamma$ 射线,在 $\gamma$ 能谱

作者对本所高压倍加器,Multi-20, PDP11/44运行组全体人员及软件组葛元秀同志给予的协作和帮助表示谢意。

### 参 考 文 献

- [1] 孙彤玉等, 高能物理与核物理, 12, 221 (1988).
- [2] Nethaway, D.R. and Mendoza, B., *Phys. Rev.*, C6, 1827(1972).
- [3] Adams, D.E. et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 37, 419(1975).
- [4] 刘从贵等, 原子核物理, 7, 235(1985).
- [5] Nethaway, D.R. and Barton, G.W. Lawrence, Livermore Lab. Report UCRL-51458, 1973.
- [6] Nethaway, D.R. et al., *Phys. Rev.*, C16, 1907(1977).
- [7] Winkelmann, I. and Aumann, D.C., *Phys. Rev.*, C30, 934(1984).
- [8] Prindle, A.L. et al., *Phys. Rev.*, C20, 1824(1979).
- [9] Coleman, R.F. et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 14, 8(1960).
- [10] Теплых, В.Ф. и др., *Ядер. Физ.*, 29(2), 293(1979).
- [11] Reus, U. et al., *Gamma-ray Catalog GSI-Report 79-2.*
- [12] Giemdenin, L.E. et al., *Phys. Rev.*, C22, 152(1980).

## MASS DISTRIBUTION IN THE 14.7 MeV

## NEUTRON-INDUCED FISSION OF $^{237}\text{Np}$

SUN TONGYU LI WENXIN FU MING ZHAO LILI

(Institute of Modern Physics, Academia Sinica, Lanzhou)

### ABSTRACT

Yields were determined for 22 fission products from  $^{89}\text{Rb}$  to  $^{146}\text{Pr}$  in the 14.7 MeV neutron-induced fission of  $^{237}\text{Np}$  by  $\gamma$ -ray spectrometry. From these data, the total chain yields for 18 mass numbers were obtained. Ten fission yields are presented for the first time.

**Key words**  $^{237}\text{Np}$ , Neutron, Fission yield,  $\gamma$ -ray spectrometry.