



Ge(Li)探测器测定14MeV中子引起²³⁸U裂变中 稀土核素的裂变产额

李文新 孙彤玉 郑蔓荃 董天荣 孙秀华

(中国科学院近代物理研究所)

关键词 ²³⁸U裂变, 14MeV中子, 稀土裂变产额。

引 言

在核化学研究中,对稀土核素生成截面的资料是非常感兴趣的。因为在各种能量的轻粒子引起重核的裂变,或者在重离子引起的核反应中,稀土核素都构成了核反应产物中相当大的一部分。此外,处于大的核形变区的稀土核远离任何满核子壳层,因此测量稀土核的反应截面能够获得不受壳效应影响的核反应信息。

但是,稀土元素的相互分离比较麻烦,即使采用加压离子交换色层法,定量分离仍然是冗长而繁琐的过程。高分辨的 γ 谱仪使直接测量核反应产物的生成截面得以实现,从而取代或简化了一部分放射化学分离程序。本工作在14MeV中子引起²³⁸U裂变中,用Ge(Li) γ 谱仪连续跟踪测量仅经过稀土元素组分离的样品,通过 γ 谱离线计算机分析,确定了14个稀土核素的裂变产额。

实 验

1. 靶子和照射 靶子为天然铀的硝酸盐(硝酸铀酰)。照射时放入四周有1mm厚铅箔屏蔽的有机玻璃盒内。在本所600keV高压倍加器上进行照射。中子平均能量为 14.7 ± 0.4 MeV。典型中子源强为 $(1-2) \times 10^{11}$ n/s。中子通量随时间的变化是通过测量伴随的 α 粒子的方法进行监测。实验共进行四次,第一次为尝试性研究。最后一次专门为测定低活性的¹⁵⁶Eu而进行。

2. 化学分离 稀土元素组分离基本上使用Galiner和Yaffe所使用过的程序^[1]。照射过的靶子溶解于含有已知量Nd和Mo载体的HNO₃溶液中。加入NaOH,沉淀出稀土氢氧化物和重铀酸钠。溶液按以前报道的方法^[2]分离Mo。沉淀被溶解,并制成10NHNO₃溶液,用甲基异丁基酮萃取除去大量铀。水相依次用磷酸锆和硫酸钡各清扫两次。接着用HF沉淀出稀土的氟化物,用0.1NHF洗涤以后,沉淀溶解于浓HNO₃和饱和H₃BO₃中。用NH₄OH沉淀出氢氧化物,沉淀溶于1ml 6NHCl中。稀释到10ml,加入饱和草酸,沉淀出Nd₂(C₂O₄)₃,

1982年3月23日收到。

洗涤, 灼烧成氧化物, 称重得到化学产额后供 γ 计数。

稀土和钡的分离在照射结束后大约100min后进行, 以使 ^{141}Ba 和 ^{142}Ba 有足够时间蜕变成La的同位素。

3. γ 谱的测量 实验使用与4096道分析器相连的140cm³同轴Ge(Li)探测器。能量分辨对 ^{60}Co 的1.332MeV γ 射线为2.8keV。系统的相对探测效率用同时放出若干条 γ 线且它们的强度精确已知的同位素(^{152}Eu , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 和 ^{75}Se) 来确定。效率曲线误差估计为 $\pm 5\%$, 低能部分($<140\text{keV}$) 误差估计达 $\pm 10\%$ 。样品连续跟踪测量近2周。两轮平行试验共获得50多个 γ 谱。为了得到 ^{144}Ce 产额, 样品在3—8个月期间内再测量若干次。

4. γ 谱分析及产额计算 全部 γ 谱分别用GAMAPU^[3]和GAMA81^[4]两个程序在DJS-6计算机上作离线分析。对分析 γ 谱的一些参数预先进行仔细调试。得到的各核素的蜕变曲线用最小二乘法拟合。复杂的多组份蜕变曲线用图解法分解。核素鉴定按照 γ 射线特征能量、半寿命和 γ 射线相对强度进行。裂变产额按以前工作列出的公式计算^[2]。同样, 作为内标的 ^{99}Mo 的产额取作5.60%。

计数的死时间损失按多道平均死时间进行修正。对于某些核素, 也考虑了级联 γ 线的符合所引起的光电峰的损失, 这个修正因子从测量一组标准源得到一定 γ 射线能量的总探测效率来获得。本实验使用了 ^{115}Cd 、 ^{115}In 、 ^{81}Sr 和 ^{65}Zn 共3个标准源。

有关核素的半寿命以及计算产额用的 γ 射线强度列在表1中。这些数据取自文献[5]和[6], 并都和Lederer的同位素表(第七版)^[7]进行了核对。

表1 有关核素的核性质

| 核素 | 能量, keV | γ 射线强度, % | 半寿命 |
|-------------------|---------|------------------|---------|
| ^{99}Y | 266.9 | 6.98 | 10.1h |
| ^{141}Ce | 145.4 | 48.0 | 32.4d |
| ^{142}La | 641.2 | 47.5 | 1.59h |
| | 894.8 | 8.6 | |
| ^{149}Ce | 293.3 | 41.3 | 1.375d |
| ^{144}Ce | 133.5 | 10.8 | 284.3d |
| ^{145}Pr | 675.8 | 0.375 | 5.98h |
| | 748.3 | 0.427 | |
| ^{147}Nd | 319.4 | 2.05 | 11.1d |
| | 531.0 | 13.3 | |
| ^{149}Nd | 211.3 | 27.3 | 1.73h |
| ^{149}Pm | 285.9 | 3.1 | 53.1h |
| ^{151}Pm | 340.1 | 22.4 | 28.4h |
| ^{153}Sm | 103.2 | 28.3 | 46.7h |
| ^{156}Sm | 203.8 | 23.0 | 9.4h |
| ^{156}Eu | 1230.4 | 8.9 | 15.19d |
| ^{157}Eu | 411.0 | 19.0 | 15.149h |

结果和讨论

经数据处理, 最后得到14个稀土核素的裂变产额。为比较起见, 将这些数据和若干近期文献值一起列在表2中。给出的误差系指实验总误差, 它由总的系统误差加上偶然误差所组

成。系统误差主要来自探测效率、 γ 光电峰的最小二乘法拟合、计数的统计误差以及级联 γ 射线的修正。总的系统误差取作这些误差的平方和的平方根。偶然误差主要指蜕变曲线分解可能引起的误差。计算产额时所采用的核数据以及 ^{99}Mo 裂变产额的误差均未包括在内。

表2 实验测定的稀土核素的裂变产额

| 核素 | 本 文 | | Adams ^[8] | Blachot ^[9] | Rajagopalan ^[10] | Crouch ^[11] |
|-------------------|-------------------|-------------------|----------------------|------------------------|-----------------------------|------------------------|
| | GAMAPU | GAMA81 | (1975) | (1974) | (1976) | (1977) |
| ^{99}Y | 4.77 ± 0.40 | 4.53 ± 0.35 | 4.63 ± 0.24 | 4.48 ± 0.39 | 4.36 ± 0.35 | 4.35 ± 0.15 |
| ^{141}Ce | 4.44 ± 0.41 | 4.25 ± 0.36 | 4.58 ± 0.31 | 4.53 ± 0.64 | 4.04 ± 0.22 | 4.42 ± 0.23 |
| ^{142}La | 3.59 ± 0.34 | 3.50 ± 0.33 | 3.81 ± 0.28 | 4.45 ± 0.40 | 3.87 ± 0.21 | 4.00 ± 0.18 |
| ^{143}Ce | 4.32 ± 0.35 | 3.99 ± 0.33 | 4.25 ± 0.10 | 3.83 ± 0.28 | 3.62 ± 0.19 | 3.70 ± 0.14 |
| ^{144}Ce | 4.00 ± 0.53 | 3.64 ± 0.48 | 3.88 ± 0.30 | | | 3.80 ± 0.23 |
| ^{145}Pr | 2.93 ± 0.45 | 2.81 ± 0.56 | 2.84 ± 0.08 | | | 2.98 ± 0.13 |
| ^{147}Nd | 2.44 ± 0.36 | 2.18 ± 0.21 | 1.97 ± 0.09 | 2.11 ± 0.16 | 2.01 ± 0.14 | 2.08 ± 0.07 |
| ^{149}Nd | 1.30 ± 0.13 | 1.44 ± 0.12 | | 1.37 ± 0.18 | 1.36 ± 0.12 | 1.45 ± 0.08 |
| ^{149}Pm | 2.43 ± 0.32 | 1.77 ± 0.23 | 1.65 ± 0.19 | | | |
| ^{151}Pm | 0.80 ± 0.09 | 0.76 ± 0.09 | 0.64 ± 0.10 | 0.62 ± 0.07 | 0.79 ± 0.05 | 0.734 ± 0.043 |
| ^{153}Sm | 0.83 ± 0.21 | 0.77 ± 0.18 | 0.36 ± 0.07 | | | 0.399 ± 0.018 |
| ^{156}Sm | 0.13 ± 0.02 | 0.13 ± 0.02 | | | | 0.111 ± 0.008 |
| ^{156}Eu | 0.12 ± 0.02 | 0.12 ± 0.03 | 0.11 ± 0.02 | | | |
| ^{157}Eu | 0.078 ± 0.010 | 0.077 ± 0.011 | 0.08 ± 0.02 | | | 0.0825 ± 0.021 |

从表2可以看到,我们实验中用GAMAPU和GAMA81两个程序处理得到的实验结果绝大部分是一致的。这表明 γ 谱的分析和数据处理是可靠的。但是GAMA81分解重峰能力比GAMAPU强得多。用GAMA81处理,在一个相关拟合区间,观察到最多可分解出10个重峰,重峰分离度 D 可达 $\sim 0.8\text{FWHM}$ 。仔细比较两个程序所获得的结果可知,用GAMA81得到的裂变产额和文献值符合得更好一些。因此在类似的工作中使用像GAMA81这类有很强解谱功能的程序是必要的。

表2中文献[8]是将稀土元素相互分离后测定的产额。文献[9]和[10]是照射过的铀靶不经化学分离直接用 $\text{Ge}(\text{Li})$ 谱仪测量获得的稀土裂变产额。最后一列数据是裂变产额编评值^[11]。这里的数据代表对应质量链的链产额,误差表示为单次测量的标准偏差。比较这些数据可以看到,除了 ^{153}Sm 外,用GAMA81程序处理得到的裂变产额,在实验误差范围内均和文献值相符合。需要指出,Nd能够作为轻稀土元素的载体是因为这些元素的氟化物和氢氧化物沉淀的溶解度没有多大差别。Galiner的实验表明,Nd的化学产额完全可以代表Pm、Sm、Eu的化学产额。但是当代表Pr的化学产额时,得到的Pr的活性会偏低3%。根据稀土元素氢氧化物溶解度,预计对于Ce和La将偏低更多。但从我们的实验结果看,所有Ce的同位素(包括 ^{99}Y)的产额都和文献值能很好符合,这表明化学产额引起的误差几乎可以忽略。只有 ^{142}La 的产额稍低于文献测量值,偏低原因可能与此有直接关系。从整个实验看,以Nd作为轻稀土元素的稳定载体,经过化学组分离及 $\text{Ge}(\text{Li})\gamma$ 谱仪跟踪测量,用GAMA81程序离线分析 γ 谱来测定稀土裂变产额是可行的。

文献[9]和[10]都测定了7个稀土核素的产额,并且下限均到 ^{151}Pm 为止,而本工作一直测到 ^{157}Eu ,共14个稀土核素的产额。由此可见,稀土元素化学组分离的效果是相当明显的,它除去了大量无关的 γ 活性,使得有可能探测弱放射性核素的裂变产额。但是和经过稀

土元素相互分离的实验相比, 我们实验结果的准确度要差一些, 这反映在实验中拟合得到的半寿命数据上。在本实验得到的 12 个核素的半寿命中, 和文献值符合在 $\pm 5\%$ 之内的仅有 6 个, 和文献值符合在 $\pm 10\%$ 之内的共 10 个。半寿命的差异不可避免地会引起计算产额的不确定性。

最后, 实验得到的 ^{153}Sm 的产额比文献值高得多。尽管考虑了 ^{239}Np 的 106.1keV (^{239}Np 来自 $^{238}\text{U}(n, \gamma)^{239}\text{U}$ 反应, 继之以 β 蜕变而生成) 以及 ^{151}Pm 的 100.0, 101.9 和 104.8keV 的 γ 射线对 ^{153}Sm 的 103.2keV γ 射线的干扰, 修正后的产额仍比文献值高出一倍多。偏高原因至今仍不清楚。

赵欣源编制和移植 GAMAPU 和 GAMA81 两个 γ 谱离线分析程序; 胡松樵, 武梅莲, 武周来在 Ge(Li) γ 谱仪使用中给予热情帮助, 谨表示感谢。

参 考 文 献

- [1] J. L. Galinier and L. Yaffe, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **39**, 1497 (1977).
- [2] 李文新等, 核化学与放射化学, **2**, 8, (1980).
- [3] 赵欣源, 来自高分辨半导体探测器 [Ge (Li) 或 Si (Li)] 的 γ 射线谱离线分析处理程序 GAMAPU, 未发表, 1980.
- [4] 赵欣源等, 一个移植的 γ 谱分析程序 GAMA81, 未发表, 1981.
- [5] I. Binder et al., LBL-6515 (1977).
- [6] U. Reus et al., GSI-Report 79-2 (1979).
- [7] C. M. Lederer et al., Table of Isotopes, Seventh Edition, John Wiley and Sons Inc., New York, 1978.
- [8] D. E. Adams et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **37**, 419 (1975).
- [9] J. Blachot et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **36**, 495 (1974).
- [10] M. Rajagopalan et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **38**, 351 (1976).
- [11] E. A. C. Crouch, At. Data and Nucl. Data Table, **19**, 5, pp. 417-532 (1977).

DETERMINATION OF THE YIELDS FOR THE RARE-EARTH NUCLIDES FROM 14 MeV NEUTRON FISSION OF ^{238}U USING Ge(Li) DETECTOR

LI WENXIN SUN TONGYU ZHEN MANJIAO
DONG TIANRONG SUN XIUHUA

(Institute of Modern Physics Academia Sinica, Lanchou)

ABSTRACT

Through group separation for the rare-earth elements followed by successive measurement with Ge(Li) detector, fission yields of 14 rare-earth nuclides are determined in the fission of ^{238}U by 14 MeV neutrons. The experimental results are in good agreement with reference values except that of ^{153}Sm . Application of this technique to nuclear chemical investigations is discussed. Both off-line computer programs. GAMAPU and GA-

MA81, are checked and compared for analysing gamma spectra.

Key words Fission of ^{238}U , 14 MeV neutrons, Fission yields of rare-earth nuclides.

锂同位素的电渗析分离

沈修俊 江祖荫 赵月民 杜贡生

崔贤民 高玉宾 古端 李琼瑶

(华北第三研究院)

关键词 锂同位素分离, 电渗析, 离子交换膜。

在 T. J. Tayler 和 H. C. Urey^[1] 用离子交换法分离锂同位素之后, 相继有不少用离子交换剂分离锂同位素的研究工作发表。M. Okamoto^[2] 在离子交换膜电迁移浓缩锂同位素的研究中作了不少工作。H. Kakihana^[3] 发表了阳、阴离子交换膜交替组合的多单元电渗装置分离锂同位素的专利报告, 引起了人们的兴趣。

我们采用聚偏氟乙烯磺酸膜 (F_{101}) (由上海有机化学研究所研制) 分别对锂同位素的电渗分离进行了实验。实验采用单级贫化法和全阳膜多级浓缩法。实验条件如表 1 和表 2 所示。

表 1 单级贫化锂-6 实验条件

| 序号 | 阳膜类型* | 原料液 (Li_2SO_4) 浓度, N | 极液 (H_2SO_4) 浓度, N | 载带液 (H_2SO_4) 浓度, N | 锂量, g | | 级数 n | 电流 密度, mA/cm^2 | 流速, ml/min | | 实验时间, h |
|----|---------------------|--|--|---|-------|------|---------|--------------------------------------|------------|----|------------|
| | | | | | 实验前 | 实验后 | | | 原料 | 精料 | |
| 1 | $F_{101} \times 5$ | 3.5 | 0.5 | 0.01 | 326 | 0.60 | 9 | 10 | 100 | 20 | 168 |
| 2 | $F_{101} \times 10$ | 3 | 0.5 | 0.01 | 210 | 0.60 | 8 | 20 | 100 | 20 | 128 |
| 3 | $F_{101} \times 15$ | 3 | 0.5 | 0.01 | 186 | 0.55 | 8 | 20 | 100 | 20 | 55 |
| 4 | $F_{101} \times 30$ | 3 | 0.5 | 0.01 | 167 | 0.40 | 8 | 20 | 100 | 20 | 64 |

* $F_{101} \times 5, \times 10, \times 15$ 和 $\times 30$ 分别为交联度 5%, 10%, 15% 和 30% 的膜。

表 2 全阳膜多级浓缩锂-6 实验条件

| 序号 | 阳膜类型 | 原料液 (Li_2SO_4) 浓度, N | 极液 (H_2SO_4) 浓度, N | 载带液 (H_2SO_4) 浓度, N | 级数 n | 流速, ml/min | | 电流密度, mA/cm^2 | 实验时间, h |
|----|---------------------|--|--|---|---------|------------|---------|----------------------------------|------------|
| | | | | | | 原料 | 精料 | | |
| 1 | $F_{101} \times 5$ | 1.5 | 0.1 | 0.05 | 12 | 6 | 1.5~2.0 | 5.0 | 84 |
| 2 | $F_{101} \times 10$ | 1.0 | 0.1 | 0.05 | 10 | 6 | 1.5 | 5.0 | 96 |

1982 年 8 月 31 日收到。