

Ge(Li) 直接 γ 能谱法测定裂变谱中子 及热中子诱发 ^{235}U 裂变的裂变累计产额

王豫生 唐甫楠 周 玲 唐培家 康静修

(原子能研究所)

本文给出了使用 Ge(Li) 直接 γ 能谱法测定裂变谱中子及热中子引起 ^{235}U 裂变的 ^{95}Zr , ^{97}Zr , ^{99}Mo , ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}I , ^{140}Ba 的裂变谱中子与热中子的产额比 $R = Y_f/Y_{th}$ 及绝对累计产额。简单描述了测量方法和技术,并将测量结果与文献编评值作了比较,对某些数据分歧作了讨论。

一、序 言

到目前为止,已发表了较多的快堆谱中子引起重核裂变的产额测量结果,而对裂变谱中子引起的重核裂变的产额测量研究还比较少,在已有的测量数据中相互偏离也较大。

因此,我们继用放化法^[1]后还利用 Ge(Li) 直接 γ 能谱法测定了裂变谱中子及热中子引起 ^{235}U 裂变的产额。由于这种方法具有许多优点——高精度、不需化学分离、快速、非破坏性,所以它已被广泛地用于产额测量。

由于热中子裂变产额数据具有较高的精确度,所以在实验中也同时进行了测定,以鉴定实验方法的可靠性。并且可由此得到精度较高的裂变谱中子与热中子引起的裂变产额比值。

二、实验原理和方法

1. 实验原理

原理与放化法相同,只是产物核数目在放化法中是在化学分离后对核素逐个进行测定而得,而 Ge(Li) 法则是在直接测定样品的混合 γ 能谱之后,经解谱计算各峰面积而得出产物核数目。

对于一个相继衰变的裂变产物链 $\cdots A \rightarrow B \rightarrow C$, 其中 C 为稳定核素,产物 A 核的绝对累计产额 Y_A 由下式计算:

$$Y_A = \frac{\lambda_A N_A}{\left\{ \sum_{i=1}^n n_{fi} (1 - e^{-\lambda_A T_i}) \cdot e^{-\lambda_A T_{ci}} \right\} [e^{-\lambda_A t_1} - e^{-\lambda_A t_2}]} \quad (1)$$

1980年3月24日收到。

其中 N_A 为 A 核的数目; λ_A 为 A 核衰变常数; n_{fi} 为第 i 段辐照的裂变率 (由于辐照有时不连续或中子通量变化而分段计算裂变率); T_i 为第 i 段照射的时间; T_{ci} 为第 i 段照射结束到最后停照时刻的时间间隔; t_1 为靶样品冷却时间, 即停照时刻到开始测量时刻的时间间隔; t_2 为停照时刻到停测时刻的时间间隔。 (1) 式中 N_A 为:

$$N_A = \frac{n_A}{(E_\gamma \cdot E_p \cdot E_s \cdot E_\infty \cdot E_r)_A (1 - e^{-\lambda_A T_m})} \quad (2)$$

$$T_m = t_2 - t_1$$

其中 n_A 为 A 核 γ 获取总计数即 γ 峰面积; E_γ 为测量 γ 的效率; E_p 为 γ 分支比; E_s 为 γ 自吸收校正因子; E_∞ 为样品几何校正因子; E_r 为脉冲堆积校正因子, 同样由 B 核亦可类似地定出其累计产额, 但本实验是由 A 核放射性推得 Y_A 的。

由 (1), (2) 得:

$$Y_A = \frac{n_A \lambda_A}{\left\{ \sum_{i=1}^n n_{fi} (1 - e^{-\lambda_A T_i}) e^{-\lambda_A T_{ci}} \right\} [e^{-\lambda_A t_1} - e^{-\lambda_A t_2}] (E_\gamma \cdot E_p \cdot E_s \cdot E_\infty \cdot E_r)_A} \quad (3)$$

2. 实验及处理方法

(1) ^{235}U 样品的辐照 将150克浓缩90% 的 ^{235}U 转换靶置于本所重水反应堆水平孔道的热中子束内, 以产生裂变谱中子, 其强度约为 $\phi_{th} \approx 10^9 \text{ n/sec}$, 另外还利用该孔道的热中子束再经石墨散射作为热中子源, 这样, 分别用裂变谱中子及热中子辐照了三对样品。样品纯度、成份同文献[1], 靶量如表1。

表1 辐照样品的同位素成份及靶量

序 号	材 料	裂变谱样品重, mg	热中子样品重, mg	$^{234}\text{U} \%$	$^{235}\text{U} \%$	$^{236}\text{U} \%$	$^{238}\text{U} \%$
1	金属铀	744.15	754.80	1.1	90.2	0.3	8.4
2	金属铀	839.10	812.80	1.1	90.2	0.3	8.4
3	U_3O_8	632.13	630.85	1.1	90.2	0.3	8.4

样品靶封在 2 cm^2 面积的圆形铝盘内, 并置于背对背电离室的两个定量的标准 ^{235}U 薄片之间, 在被中子辐照时测定了绝对裂变率。辐照期间中子通量的变化小于 5%。

(2) γ 射线能谱测定及分析 我们使用的 $\text{Ge}(\text{Li})$ 探测器为 τGC28SD 型同轴型探测器, 其灵敏体积为 145 cm^3 , 能量分辨率对 ^{60}Co 的 1332.5 keV γ 射线为 2.0 keV 。与 $\text{Ge}(\text{Li})$ 探测器相联的是室温 RG11C 型电荷灵敏前置放大器及 PGT-340 型主放大器和 IN-90 在线计算机 ADC。辐照过的 ^{235}U 样品冷却适当时间后分别置于距离探测器表面 1.5 cm , 3.5 cm 处进行测量。为了降低样品中 ^{235}U 材料本身的低能 γ 射线的本底, 在源距探测器表面为 1.5 cm 的位置下, 放置一厚为 1 mm 的铅吸收片在源与探测器之间。这样, 跟踪多次获取谱数据。测得 γ 谱如图1所示。

γ 谱分析和计算是本实验中的一个重要部份, 因为带有靶材料 γ 本底, 未经分离的裂变产物 γ 谱十分复杂, 要在丛生重叠的 γ 峰中精确地分解和计算出所要求的光电峰面积, 就要求有一个强功能的分解重峰的解谱程序。GSAP-840 程序^[2]就是为本工作编制的解谱程序。我们除了用 IN-90 机器上自带的 Golton 程序作在线处理外, 还用 GSAP 程序作离线处

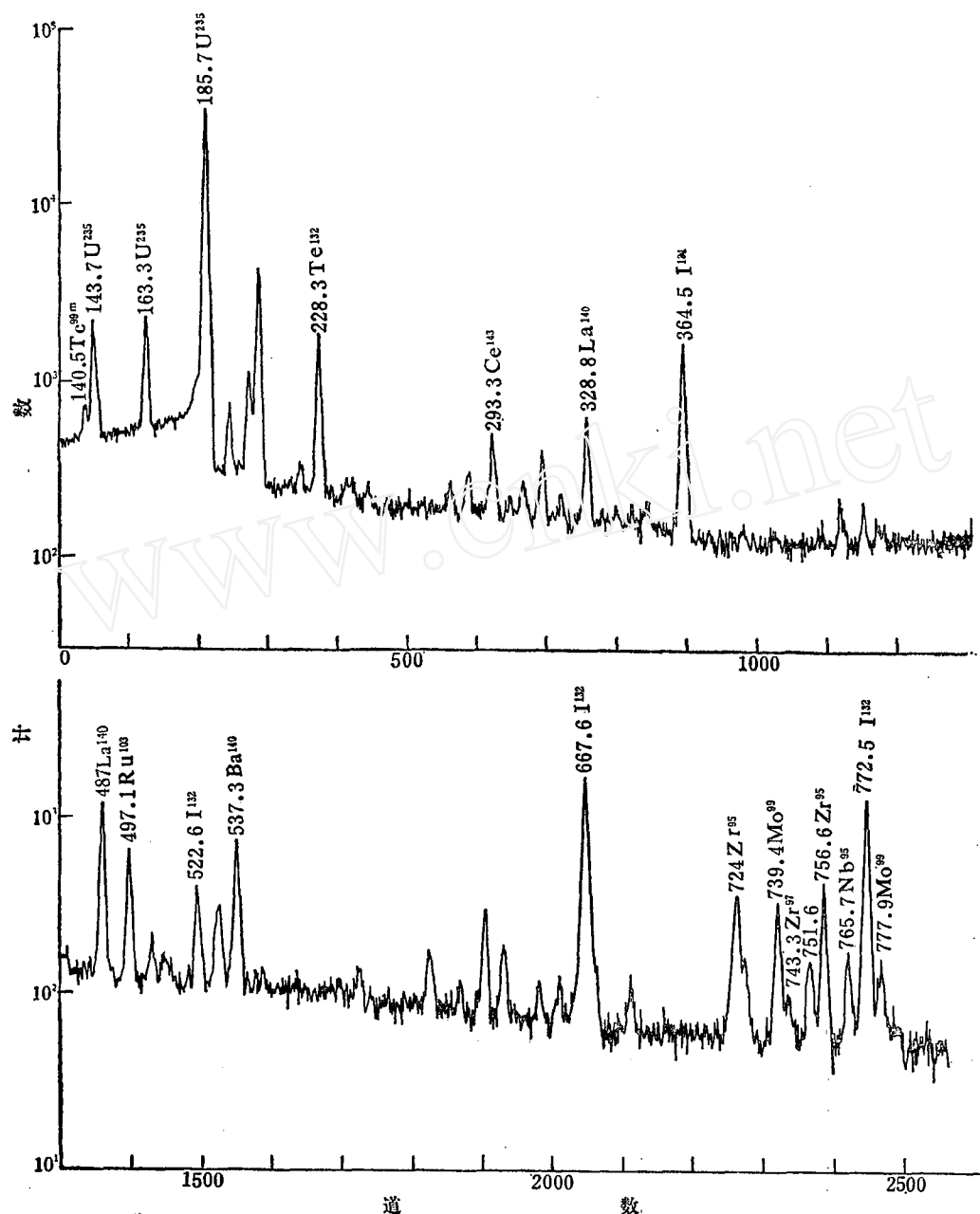


图1 裂变产物的 γ 射线能谱图
辐照过的 ^{235}U 靶冷却5418分钟。

理以作比较。Golton 程序是根据扣除本底后的 γ 峰为高斯曲线,以此为基准来调节其本底曲线,然后按 γ 峰的各道计数求和而得峰面积。GSAP 程序则是用不对称高斯函数作峰形拟合函数,类似于 SAMPO^[3] 程序,用最小二乘法迭代定出各参数,再按函数积分求得峰面积,其中本底函数为简单的二次方程。在 NOVA-840 机器上自动处理全谱,每一拟合区间最多可容纳八重峰220道。在一般情况下,重峰分离度 $D \sim 1\text{FWHM}$, 峰高比 $R \leq 6:1$ 时,重峰的分解误差不超过 1%。

(3) Ge(Li)探测器绝对效率的测定 我们按下式以在线处理方式初次 刻度了在上述测量条件下的绝对效率:

$$E_{\gamma}^i = \frac{I_{\gamma}^i}{I_0^i E_p^i \cdot E_r \cdot \exp(-\lambda_i t)} \quad (4)$$

其中 E_{γ}^i 是能量为 E_{γ}^i 的 γ 线的绝对探测效率; I_{γ}^i 是能量为 E_{γ}^i 的 γ 线的光电峰计数率; I_0^i 为刻度源的绝对衰变率; E_p^i 为 γ 线的分支比; λ_i 为某产物核 i 的衰变常数; E_r 是测量系统的脉冲堆积校正因子; t 为测 I_0^i 与测 I_{γ}^i 之间的时间间距。

用于刻度绝对效率的刻度源是将无载体的标准溶液滴在与 ^{235}U 样品几何相同的铝盘内而制成的。即可认为是无厚度的, 且其它几何都与 ^{235}U 样品相同。这些刻度源是: ^{46}Sc , ^{95}Zr - ^{95}Nb , $^{108\text{m}}\text{Ag}$, ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{140}Ba - ^{140}La , ^{182}Ta 等, 用 $4\pi\beta$ - γ 符合法测定了上述刻度源标准溶液的绝对衰变率。

用以下半经验公式拟合效率曲线^[4]:

$$\log E_{\gamma}^i = A(\log E_{\gamma})^2 + B(\log E_{\gamma}) + C. \quad (5)$$

得到在我们感兴趣的能区范围内(300keV--1000keV)的效率曲线, 如表 2 所示。效率刻度的实验值与计算值之间的偏差以及实验值误差 ΔE_{γ} 都一并列在表 2 中。其中, 实验值误差为

$$\Delta E_{\gamma} = \sqrt{(\Delta I_{\gamma}^i)^2 + \Delta E_p^2 + (\Delta I_0^i)^2}. \quad (6)$$

式中 ΔI_0^i 为绝对测量误差; ΔE_p 为分支比误差; ΔI_{γ}^i 为 γ 峰面积误差 = (Δ 统计涨落 + 程序解谱误差); ΔI_{γ}^i 在刻度源情况下都可以忽略。因此

$$\Delta E_{\gamma} = \sqrt{\Delta E_p^2 + (\Delta I_0^i)^2}.$$

由表 2 可见, 在我们所作初次效率刻度工作中, 拟合效率曲线与实验点之间的符合程度在曲线中段较好而在两端较差, 低能端 328, 343keV 实验效率值涨落大, 故取值难于准确, 而高能端 1MeV 附近, 计算效率值比实验值偏高 6 % 左右, 这至少说明半经验公式与实验值不尽适合。

表 2 探 测 器 效 率 及 误 差
源-探距 $d=1.5$ cm, 加铅片。

源	γ 能 量, keV	效 率 实 验 值 $E_{\gamma\text{实}}(\%) \pm \Delta E_{\gamma\text{实}}$	拟合效率曲线 $E_{\gamma\text{理}}, \%$	计算值与实验值偏差 $(E_{\gamma\text{实}} - E_{\gamma\text{理}})/E_{\gamma\text{实}}, \%$
^{140}La	328	3.427 ± 0.086	3.554	-3.7
$^{108\text{m}}\text{Ag}$	434	3.564 ± 0.072	3.390	+4.8
^{140}Ba	537	3.070 ± 0.160	3.116	-1.3
$^{108\text{m}}\text{Ag}$	614	2.905 ± 0.058	2.894	+0.4
^{137}Cs	661.6	2.848 ± 0.054	2.759	+3.5
$^{108\text{m}}\text{Ag}$	723	2.640 ± 0.053	2.587	+2.0
^{95}Zr	724.2	2.628 ± 0.050	2.584	+1.7
^{95}Zr	756.7	2.569 ± 0.049	2.494	+2.8
^{95}Nb	765.8	2.455 ± 0.047	2.473	+0.7
^{140}La	815.9	2.186 ± 0.103	2.344	-7.2
^{46}Sc	1119.7	1.602 ± 0.027	1.700	-6.1
^{140}La	1596.0	1.104 ± 0.035	1.064	-3.6

注: 效率只用 IN-90 作了在线处理。

(4) 测量系统的脉冲堆积的修正 由于混合裂变产物的 γ 能谱十分复杂, 全谱的总计

数率很高, 所以脉冲堆积现象必须修正。为此, 我们引入脉冲堆积时间 τ_p 或称为 ADC 的分辨时间^[6]。输入到 ADC 之前的脉冲由于探测器、前置、主放大器及上、下甄别器的作用, 使其可能堆积而增加或减少本来的脉冲幅度, 因而从应有的道址中漏失或增加其计数, 如图 2 所示。堆积时间 τ_p 依赖于放大器的成形时间常数和极零补偿调节, 其大小相当于输入到 ADC 的脉冲的底宽加下击和上击时间。

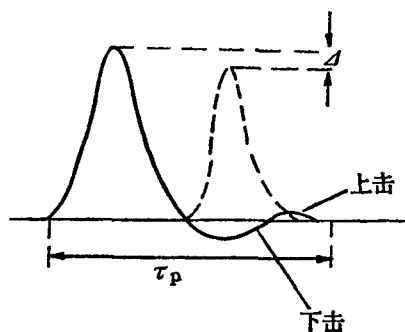


图 2 堆积时间示意图
 Δ —因脉冲堆积的幅度损失。

校正方法为常用的干扰源法, 即置某一能量 γ 源于固定位置, 使获得一固定计数强度的 γ 峰, 将另一不同能量的 γ 源作为干扰源以改变全谱总计数率, 同时测定在有干扰源情况下原来的 γ 峰计数强度, 从而确定堆积时间 τ_p 。

按近似修正公式^[5]:

$$N_R = \frac{N_p}{1 - \tau_p \cdot S_A} \quad (7)$$

其中 N_R 为 γ 峰真计数率; S_A 为全能谱积分计数率; N_p 为 γ 峰测量计数率; τ_p 即脉冲堆积时间。我们用 ^{203}Hg 作干扰源, 改变其与探测器距离以调节全谱总计数 S_A , 测定了 ^{60}Co 1173.3, 1333.2keV 等 γ 峰在不同的 S_A 下的峰计数率 N_p 。从而按 (7) 式得到系统堆积时间 τ_p 。在本实验条件中我们综合选择了能量分辨率足够好、而堆积时间又较小的条件; 主放大器成形时间为 $2\mu\text{s}$, 堆积时间 $\tau_p = 15.0 \pm 0.3\mu\text{s}$, 因而修正因子应为 $E_r = 1 - \tau_p \cdot S_A$ 。

至于在 ADC 分析系统的忙碌时间 (或死时间 T_D) 内丢失的脉冲 (时幅变换, 数码变换时输入门关闭) 已由系统自动补偿。

(5) γ 自吸收效应及样品几何修正 实验中还必须修正 ^{235}U 样品内的自吸收以及由于 ^{235}U 样品与标准刻度源 (无厚度) 分别与探测器之间空间距离的几何校正。

我们以近似方法修正样品自吸收: 放射性通过物质的衰减比例为 $I/I_0 = e^{-\mu D}$, 其中 $\mu(\text{mm}^{-1})$ 为吸收系数, D 为物质层厚度, I 及 I_0 分别为通过物质衰减后的放射性及原始放射性强度。

若样品内放射性密度为均匀分布并忽略样品厚度对样品内各点与探测器立体角的影响, 则对厚度为 D 、吸收系数为 $\mu(\text{mm}^{-1})$ 的圆片形 ^{235}U 样品的自吸收校正推得为^[6]:

$$\left(\frac{I}{I_0}\right)_{\text{自吸收}} = \frac{1 - e^{-\mu D}}{\mu \cdot D} \quad (8)$$

上式适用于能量大于 150keV 的 γ 射线。我们按此式修正量为 2—3%, 引入的误差不大于 0.3%。

样品厚度几何校正是由实验定出的。实验中所用样品厚度为 0.2mm。按校正实验给出的在源-探距分别为 1.5 cm 及 1.652 cm 处的计数强度 I_1 及 I_2 内插得到样品厚度 0.2mm 的计数校正为 $E_D = 0.995$, 由此修正引入的误差可以忽略。

(6) 计算实验产额时选用的核参数 实验所测各核素在计算产额时所采用的参数, 如分支比, 核寿命 $T_{1/2}$ 等列于表 3。所用参数主要按文献 [7] 的数据, 误差按相应的测量值给出。

表3 本文所采用的核参数

核素	能 量, keV	分支比, %	半衰期, $T_{1/2}$	母体半衰期	文 献
^{95}Zr	756.74	54.6 ± 1.2	64.1天	10.7分	[7,8]
^{95}Zr	724.20	44.4 ± 1.2	64.1天	10.7分	[7,8]
^{95}Nb	765.83	99.8 ± 1.2	35.15天	64.1天	[7,8]
^{97}Zr	743.36	94.5 ± 1	17.0小时	1.11秒	[7,9]
^{99}Mo	739.70	11.8 ± 6	66.02小时	2.6分	[7,10]
^{103}Ru	497.08	86.8 ± 3.4	39.35天	50秒	[7,6]
^{131}I	364.47	82.1 ± 5	8.06天	2.5分	[7,11]
^{132}I	954.55	17.7 ± 6	2.38小时	77.7小时	[7,11]
^{140}Ba	537.30	24.0 ± 5	12.81天	1.07分	[7,9]
^{140}La	1596.49	95.5 ± 3	40.22小时	12.81天	[7,11]

此外, 由 ^{238}U , ^{236}U , ^{234}U 等同位素成份对产额值的修正量很小 (约 $<0.3\%$), 修正误差可忽略不计。

综上所述, 由于各修正项误差给各产物核的产额引入的误差列于表4。

表4 裂变产额各项系统误差贡献*

核素	裂变率误差 $\Delta N_f, \%$	堆积时间修正误差 $\Delta E_r, \%$	自吸收修正误差 $\Delta E_s, \%$	分支比误差 $\Delta E_p, \%$	效率误差 $\Delta E_\eta, \%$	寿命贡献的误差 $\Delta \lambda_i, \%$	总系统误差 $\Delta_s, \%$	产额比误差** $\Delta R, \%$
^{95}Zr	1.5	0.2	0.3	1.2	1.5	0.2	2.47	1.556
^{97}Zr	1.5	0.2	0.3	1.0	2.0	0.5	2.76	1.62
^{99}Mo	1.5	0.2	0.3	6	1.9	0.2	6.48	1.556
^{103}Ru	1.5	0.2	0.3	3.4	3.5	0.2	5.12	1.556
^{131}I	1.5	0.2	0.4	5	2.3	0.2	5.72	1.560
^{132}I	1.5	0.2	0.3	6	3.0	0.2	6.89	1.556
^{140}Ba	1.5	0.2	0.3	5	1.2	0.2	5.37	1.556
^{140}La	1.5	0.2	0.3	3	1.2	0.2	3.59	1.556

* 几何及同位素丰度修正忽略不计。

** 产额比误差不计 ΔE_η , ΔE_p 。

表中列出的各项数据, 属于系统误差, 在本实验结果处理中, 我们以总误差 $\Delta Y = \text{统计误差} \Delta Y_{\text{统计}} + \text{系统误差} \Delta Y_{\text{系统}}$ 来计算。即 $\Delta Y = \Delta Y_{\text{统计}} + \Delta Y_{\text{系统}}$ 。其中

a) $\Delta Y_{\text{统计}}$ 为多次测量峰面积平均值的均方根误差, 亦即各次跟踪计数推到零时的 N_0 值平均值 $\bar{N}_0$ 的均方根误差。若跟踪 n 次则

$$\Delta Y_{\text{统计}} = \Delta \bar{N}_0 = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (N_{0i} - \bar{N}_0)^2}{n(n-1)}} \quad (9)$$

b) $\Delta Y_{\text{系统}}$ 为其它各项 (包括修正项、裂变率及使用核参数如分支比等) 的误差贡献之和。因为这些虽为系统偏差, 但亦属随几性误差, 因此按独立变量的误差算法, 总系统误差即为各项误差平方和的开方:

$$\begin{aligned}\Delta Y_{\text{系统}} &= \sqrt{\Delta E_0^2 + \Delta E_D^2 + \Delta E_F^2 + \Delta E_P^2 + \Delta E_T^2 + \Delta N_f^2 + \Delta E_{\lambda_i}^2} \\ &= \sqrt{\sum_j \Delta E_j^2} \\ &= \Delta_s,\end{aligned}\quad (10)$$

亦即表 4 中列出的总系统误差。产额的总误差为:

$$\begin{aligned}\Delta Y &= \Delta Y_{\text{统计}} + \Delta Y_{\text{系统}} \\ &= \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (N_{0i} - \bar{N}_0)^2}{n(n-1)}} + \sqrt{\sum_{j=1}^{n'} \Delta E_j^2}.\end{aligned}\quad (11)$$

对各轮实验所得产额值 $Y \pm \Delta Y$ 加以平均, 即得本工作最后结果。

三、实 验 结 果

在完成三轮实验各跟踪测量 4—8 次之后, 经谱处理, 选择了如表 3 所列核素的相应的 γ 峰, 并经各项修正后分别得到裂、热中子的产额比值 $R = Y_F/Y_{th}$ 及绝对累计产额。

表 5 各产物的裂变谱中子与热中子产额比值 $R = Y_F/Y_{th}$

核 素	本 实 验 结 果		本 实 验 室 放化法结果 ⁽¹⁾	[12]*	[12]**
	Golton 程序	GSAP 程序			
⁹⁵ Zr	0.991±0.028	1.015±0.035	1.027	0.997	0.990
⁹⁷ Zr		1.060±0.032		1.05	1.02
⁹⁹ Mo		1.080±0.041	1.049	0.99	1.02
¹⁰³ Ru	1.189±0.031	1.155±0.031		1.06	1.10
¹³¹ I	1.272±0.032	1.296±0.044		1.15	1.26
¹³² I	1.118±0.036	1.197±0.044		1.26	1.13
¹⁴⁰ Ba	1.023±0.026	0.992±0.026		0.98	0.96

* 为 ²³⁵U 裂变谱中子与热中子产额比值, 与本实验条件相同。

** 为 ²⁵²Cf 裂变谱中子与热中子产额比值。

表 6 裂 变 谱 中 子 绝 对 累 计 产 额

核 素	本实验结果 IN90-Golton	本 实 验 室 放化法结果 ⁽¹⁾	[12]*	[13]	[14]
⁹⁵ Zr	6.31±0.22	6.56±0.28	6.50±0.07	5.85±0.55	7.7±0.5
¹⁰³ Ru	3.66±0.22		3.23±0.04	3.75±0.55	
¹³¹ I	4.04±0.26		3.23±0.06		
¹³² I	3.97±0.34		4.35±0.07	5.35±0.5	
¹⁴⁰ Ba	6.34±0.37		6.22	5.0±0.4	6.5±0.5

* 此列结果给出的是实验精度, 其它皆为实验总误差。

如前所述, 为提高数据处理的可靠性, 我们用 IN-90Golton 程序及 GSAP-840 程序分别处理了所有的谱。得到了两套符合较好的产额比数据(见表 5)。因为只用 Golton 程序初次刻度了效率, 因此只给出了 IN-90Golton 程序处理得出的绝对产额, 见表 6, 7。各表内同时列出了文献 [12—16] 的结果, 以作比较。

以 ^{103}Ru 、 ^{131}I 为例, 表 8 给出了各轮实验测量及处理的产额比值结果。由表可见, 本实验的重复性及谱处理结果相互符合都较好, 证明实验数据是可靠的。

表 7 热 中 子 绝 对 累 计 产 额

核 素	本实验结果 IN90-Golton	本 实 验 室 放化法结果	[12]	[15]	[16]*
^{95}Zr	6.37 ± 0.22	6.39 ± 0.21	6.50	6.41	6.45 ± 0.03
^{103}Ru	3.08 ± 0.19		3.02	3.00	
^{131}I	3.18 ± 0.20		2.89	2.90	2.79 ± 0.04
^{132}I	3.55 ± 0.30		4.29	4.33	4.16 ± 0.06
^{140}Ba	6.20 ± 0.39		6.31	6.34	

* 此列结果给出的是精度, 其它结果皆为总误差。

表 8 ^{103}Ru 、 ^{131}I 各 轮 实 验 处 理 结 果

核 素	实验序号	裂变谱样品 测量次数	热中子样品 测量次数	测量位置- 处理程序	Y_F/Y_{th}	平均 Y_F/Y_{th}
^{103}Ru	1	2	2	2-GSAP	1.221	2-GSAP 1.221
		3	3	2-Golton	1.172	2-Golton 1.172
	2	5	4	2-GSAP	1.145	2-GSAP 1.158
		7	6	2-Golton	1.225	
		7	1	5-Golton	1.168	2-Golton 1.197
		2	4	5-GSAP	1.171	
	3	3	3	2-GSAP	1.152	2-GSAP 1.121
		5	6	2-Golton	1.232	
		3	4	5-GSAP	1.090	2-Golton 1.191
		3	4	5-Golton	1.149	
^{131}I	2	5	6	2-Golton	1.277	2-GSAP 1.288
		3	3	2-GSAP	1.296	
		6	4	5-Golton	1.272	2-Golton 1.275
		3	2	5-GSAP	1.280	
	3	5	3	2-Golton	1.262	2-GSAP 1.303
		1	3	2-GSAP	1.294	
		3	6	5-Golton	1.278	2-Golton 1.270
		3	3	5-GSAP	1.312	

四、讨 论

将我们的结果主要与新近的编评文献 [12] 作了比较。这里着重讨论裂、热中子产额比值。因为产额比值 $R = Y_F/Y_{th}$ 无需引入分支比及效率值, 数据准确度较高。由表 5 可见:

(1) 用两程序处理的结果能很好相符, 并与本实验室放化法结果一致。

(2) 但与文献 [12] 比较, 对 ^{99}Mo 和 ^{131}I , 我们的实验值较 [12] 偏高。

(3) 对于 ^{99}Mo 的产额比数据, 过去传统地认为这些在质量分布曲线峰上的核不随能量变化, 但在本实验室放化法^[1]中已反复测定, 包括改变入射中子能谱指标 (相对于裂变谱中子作适当软化或硬化) 都得到 $R > 1$ (~ 1.05) 的结果。现在, 用独立于放化法的 $\text{Ge}(\text{Li})$ 直接 γ 能谱法也得到同样的 $R > 1$ (~ 1.08) 的结果。实验明显地呈现了其产额值与入射中子能量的依赖性。这种除了谷、翼上的核外, 质量峰上核的产额也会随入射中子能量变化的观点已经在文献 [12] 中提出过。例如, 尤其在精细结构上的核产额, 当高于快堆谱能量时, 随能量的变化迅速增大。而 ^{99}Mo 就是与双幻数核附近的精细结构互补的核。

(4) 本实验所测的几个核 ^{95}Zr , ^{97}Zr 及 ^{99}Mo , ^{103}Ru 属于轻峰区, ^{131}I , ^{132}I 及 ^{140}Ba 属于重峰区; 另一方面, ^{95}Zr , ^{97}Zr , ^{140}Ba 属于两质量峰中心部位的核, ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}I 则属于靠近双翼的产额随能量变化较灵敏的区域, 而 ^{99}Mo 及 $^{131},^{132}\text{I}$ 又相当于双满壳核($A = 132$, $N = 82$, $Z = 50$)附近的成对的互补核, 在这个区域, 由热中子入射 ^{235}U 时形成明显的精细结构 (重峰精细结构在 $A = 134$ 处, 轻峰精细结构峰在 $A = 99-100$ 处)。随着入射中子能量的增加, 壳效应逐渐消失, 在这个区域产额值的变化迅速。因此, 这区域中的 ^{99}Mo 产额随能量而变化 (例如出现 $R > 1$ 的情况) 不应是意外的。

质量曲线虽然难于用裂变位垒驼峰点的状态解释, 因为它是裂变过程中十分后期的信息, 但从它随能量、核素的变化以及从质量分布曲线形状上的结构现象看, 确实明显地反映了在裂变过程后期仍保留着的壳效应和奇、偶效应等。尽管还没有理论上的定量解释, 但这些细微的变化, 在日益精确的实验资料中正在呈现出来。

此外, 热中子及裂变谱中子的绝对产额, 除了 ^{131}I 偏高, ^{132}I 偏低 (与文献 [12—16] 比较超出我们的实验误差) 外, 其它核都在误差范围内相符合。 ^{131}I (364 keV) 及 ^{132}I (954.5 keV) 的偏离数据, 与我们初步刻度的效率曲线上的高、低能两端的误差涨落有关。

最后, 我们感谢李泽、刘从贵等同志为本实验照射铀靶以及三所刘宝秀等同志为本工作提供 $\text{Ge}(\text{Li})$ 谱仪所给予的大力帮助。我们还感谢王德安同志为本工作编制 GSAP 程序所付出的巨大努力。

参 考 文 献

- [1] 原子能研究所, 核化学与放射化学, 2 (1), 1 (1980).
- [2] 王德安等, 高能物理与核物理, 2, 241 (1980).
- [3] J. I. Routt, Nucl. Instrum. Methods, 72, 125 (1969).
- [4] CANBERRA, Scorpion/Spectran, User's Manual, 1977.
- [5] ERI Jay Cohen, Nucl. Instrum. Methods, 121, 25 (1974).
- [6] N. D. Dudoy et al., Nucl. Technol., 25, 294 (1975).
- [7] H. Thierems et al., Nucl. Instrum. Methods, 134, 299 (1976).
- [8] H. H. Hansen et al., EUR 5038 (1973).

- [9] J. Blachot et al., J. Inorg. Nucl. Chem., **36** (3), 495 (1974).
- [10] W. B. Cook et al., Nucl. Phys., A, **139**, 277 (1969).
- [11] M. J. Martin et al., Nucl. Data Table, **A8**, 1—198(1970).
- [12] J. G. Cuninghame, AERE-R8753 (1977).
- [13] E. K. Bonyushkin, J. Nucl. Energy, **10**, 80 (1959).
- [14] K. A. Petrghak, AEC-tr-4696 (1960).
- [15] K. F. Flynn, ANL-7749 (1970).
- [16] F. L. Lismen et al., Nucl. Sci. Eng., **42**, 191 (1970).

THE MEASUREMENT OF CUMULATIVE FISSION YIELDS OF ^{235}U INDUCED BY THERMO-and FISSION SPECTRUM NEUTRONS BY USING Ge (Li) DETECTOR

WANG YUSHENG TANG FUNAN ZHOU LING

TANG PEIJIA KANG JINGXIU

(Institute of Atomic Energy, Beijing, P. O. Box 275)

ABSTRACT

By using Ge (Li) detector γ -spectrum method, the fission yields and fission yield ratios of ^{95}Zr , ^{97}Zr , ^{99}Mo , ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}I and ^{140}Ba of ^{235}U induced by thermo-and fission spectrum neutrons have been measured.

This method has several advantages such as high accuracy, speed, nondistortion and without chemical separation. A Ge (Li) detector with a volume of 145 cm^3 and energy resolution of 2.0 keV for 1332.5 keV of ^{60}Co was used. The powerful γ -spectrum analysis program GSAP^[1] was used off-line to calculate the areas of γ -peaks and compared with the result by the Golton program in on-line analysis.

The calculation of errors of fission ratio, efficiency, nuclear parameters for fission yield and the corrections of dead time of system as well as self-absorption have been made. The experimental results are listed in table 1, 2 and 3.

核放消息 1 过去认为, 铀-钍燃料循环有利于防止核扩散, 因为 ^{232}Th 在照射时形成的 ^{233}U 中, 不可避免地含有少量 ^{232}U , 而 ^{232}U 的 γ 放射性大到使远距离操作成为必需。现在有人认为这种看法不对。理由是, ^{232}U 的强 γ 射线主要来自衰变链中的子体 ^{208}Tl 和 ^{212}Bi , 如果用化学方法将 ^{232}U 衰变链中的 ^{228}Th 移除, 在六天之内生长出来的 γ 放射性是微不足道的, 在手套箱内就能操作。即使衰变60天, 也只含有达到平衡时的 γ 放射性的6%。[见 Atomkernenergie-Kerntechnik, **35**(2), 122(1980)]

核放消息 2 奇数原子量的同位素具有微弱的磁矩, 利用这个性质对自由基反应所产生的影响, 可以用来分离同位素, 这是一种新的分离同位素的方法。例如, 二苄基甲酮在光解时所产生的的一对自由基, 如含有 ^{13}C , 则有利于这对自由基的再结合(重新成为二苄基甲酮)反应。利用这个特点, 已将丰度为1.1%(天然)的 ^{13}C 富集至10%。[见 Science, **206**(4416), 317(1979)]