

## $^{252}\text{Cf}$ 自发裂变中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变 $^{99}\text{Mo}$ 累计产额测量

王炁 唐培家 鞠长新 刘大明 王青

(中国原子能科学研究院, 北京)

关键词 裂变产物, 裂变产物产额,  $\text{Ge}(\text{Li})$ ,  $R$ 值。

### 一、引言

裂变谱中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变 $^{99}\text{Mo}$ 累计产额一直存在较大分歧, 首先, 苏联在五十年代测量的两个结果就相差8%<sup>[1,2]</sup>。以后的测量结果虽然差距减小, 但仍分为两组, 彼此相差5%, 一组接近苏联的高值3.4<sup>[3,4]</sup>, 另一组接近并稍低于热中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变的 $^{99}\text{Mo}$ 累计产额6.14<sup>[5-7]</sup>。在裂变产物产额的测量中,  $^{99}\text{Mo}$ 往往被取作参考核, 其产额数据的上述分歧, 影响其他裂变产物产额的取值。因此, 我们对其进行了测量。

鉴于裂变谱中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变的 $^{95}\text{Zr}$ 累计产额, 以及热中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变的 $^{99}\text{Mo}$ 和 $^{95}\text{Zr}$ 累计产额一般都认为是可靠的, 所以, 我们采用热中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变作为参考反应, 以 $^{95}\text{Zr}$ 作为参考核, 利用 $\text{Ge}(\text{Li})$ 直接 $\gamma$ 能谱法测量 $R$ 值, 最后归一得到 $^{99}\text{Mo}$ 的累计产额。

### 二、实验

#### 1. 原理

用 $\text{Ge}(\text{Li})$ 直接 $\gamma$ 能谱法绝对测量裂变产额, 是通过(1)式进行的。

$$Y = \frac{A}{b\epsilon f F} \cdot \frac{\lambda e^{\lambda\tau}}{(1-e^{-\lambda\tau})(1-e^{-\lambda t'})} \cdot \frac{\delta_1}{\delta_2 \cdot \delta_3 \cdot \delta_4 \cdot \delta_5 \cdot \delta_6} \quad (1)$$

式中 $Y$ 为裂变产额,  $F$ 为裂变率,  $A$ 为峰面积,  $b$ 为 $\gamma$ 射线分支比,  $\epsilon$ 为点源探测效率,  $T$ 为照射时间,  $\tau$ 为冷却时间,  $t$ 为测量时间,  $t'$ 为活时间,  $f=t'/t$ ,  $\lambda$ 为衰变常数,  $\delta_1$ 为几何修正因子,  $\delta_2$ 为母-子体平衡修正因子,  $\delta_3$ 为级联符合修正因子,  $\delta_4$ 为偶然符合修正因子,  $\delta_5$ 为自吸收修正因子,  $\delta_6$ 为外吸收修正因子。

在我们的测量情况下,  $^{99}\text{Mo}$ 的 $R$ 值表示为

$$R(^{99}\text{Mo}) = \frac{[Y(^{99}\text{Mo})/Y(^{95}\text{Zr})]_{\text{裂变谱}}}{[Y(^{99}\text{Mo})/Y(^{95}\text{Zr})]_{\text{热中子}}} \quad (2)$$

从(1)、(2)式可以看出, 如果快靶和热靶的照射、冷却和测量时间彼此相同, 那么, 在快、热靶对 $\gamma$ 射线的平均吸收厚度相同的条件下, (2)式就转化为峰面积之比, 即

1984年8月15日收到。

$$R(^{99}\text{Mo}) = \frac{[A(^{99}\text{Mo})/A(^{95}\text{Zr})]_{\text{热中子}}}{[A(^{99}\text{Mo})/A(^{95}\text{Zr})]_{\text{裂变谱}}} \quad (3)$$

显然这是能够测得很准的。

应该指出,在实际情况中,快、热靶的照射、冷却和测量时间是不同的,而它们对 $\gamma$ 射线的平均吸收厚度也有差异;但我们感兴趣的是 $^{99}\text{Mo}$ 和 $^{95}\text{Zr}$ 两个裂变产物,以及分析 $^{99}\text{Mo}$ 的739.6keV和 $^{95}\text{Zr}$ 的756.4keV两条在能量上很接近的 $\gamma$ 射线,因此,自吸收修正可以忽略,而由衰变修正引入的误差也可以忽略。

本工作所采用的有关裂变产物的产额值为: $^{99}\text{Mo}(^{235}\text{U}, \text{热中子}), 6.14(1 \pm 1.1\%)^{[8]}$ ;  $^{95}\text{Zr}(^{235}\text{U}, \text{热中子}), 6.50(1 \pm 1.2\%)^{[8]}$ ;  $^{95}\text{Zr}(^{235}\text{U}, \text{裂变谱}), 6.35(1 \pm 1.6\%)$ ——专门为本工作所做的评价值,它与目前被普遍采用的评价值一致。

## 2. 靶及其照射

我们使用的铀样品是直径1.6cm、厚度均匀、 $^{235}\text{U}$ 浓缩度大于90%的铀金属片(具有不同的标称厚度)。照射靶为一由微型铝盒严格密封上述铀金属片而成的圆盘状物,其最大外径为2cm、厚约1mm。靶量为1.0—1.5g/cm<sup>2</sup>。微型铝盒是由高纯铝箔制成的。

$^{252}\text{Cf}$ 自发裂变瞬发中子能谱在国际上被取作裂变谱标准。 $^{252}\text{Cf}$ 中子源强度为 $5 \times 10^7$ 中子/ $4\pi \cdot \text{s}$ 。该中子源外部形状为一直径2.5cm、高15cm的不锈钢圆柱。源物质位于离一端约15cm、壁厚1mm、高2cm的中空处。靶几何尺寸很小,是紧贴在中空处的外侧壁上照射的。照射时间为10—12d。照射样品时,中子源距地面约2.5cm,周围空旷。我们曾用包镉和不包镉的靶子进行实验,结果指出: $^{252}\text{Cf}$ 自发裂变中子在空间因多次散射所造成的热中子成分对结果没有可测量到的影响。

热靶照射是在轻水游泳池反应堆和重水反应堆的热柱上进行的。虽然前者的快中子成分较后者高,但从测量结果的比较来看,其贡献可以忽略。

## 3. 测量

靶子照射后经适当时间冷却,用高分辨Ge(Li)探测器进行非破坏测量。使用SCORPIO-3000多道-计算机系统测量裂变产物的 $\gamma$ 射线能谱。该系统方框图如图1所示。Ge(Li)探测器是CANBERRA公司生产的C.I.7229型同轴Ge(Li)晶体,其体积为130cm<sup>3</sup>,效率大于30%,对 $^{60}\text{Co}$ 的1.332MeV $\gamma$ 射线的能量分辨为2.0keV(FWHM),峰/康比为48:1。我们采用了两套SCORPIO-3000系统,其Ge(Li)探测器分别用铅房和铅室屏蔽,前者自然本底达到1个计数/秒,后者为7个计数/秒。

测量时,控制测量系统的环境温度在20℃左右,每轮实验连续运转一星期。系统增益在整个测量时间内保持稳定(0.40keV/道)。

离Ge(Li)晶体表面约2cm处有一个位置固定的圆形有机玻璃平板,在上边挖了一个刚好与靶直径相匹配的同心圆孔,以确保每次测量靶位置的重复。

为了减少铀 $\gamma$ 射线本底强度,从而减少测量系统的死时间,我们在Ge(Li)晶体和测量

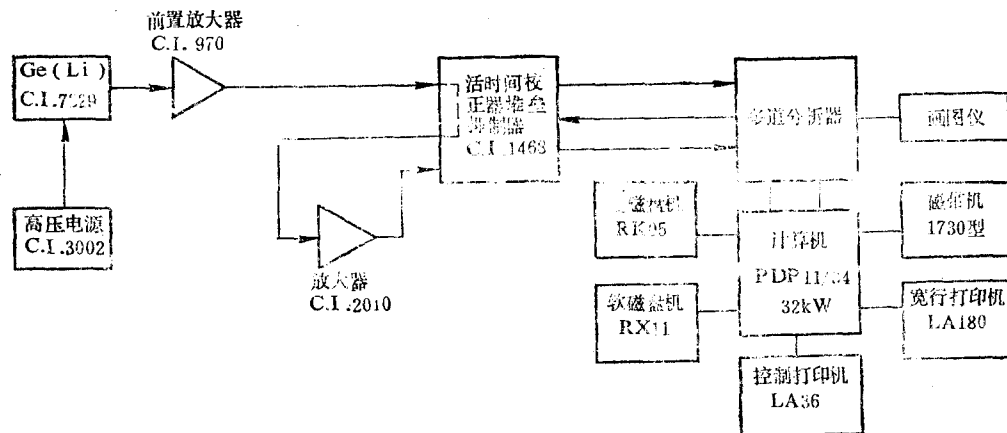


图1 SCORPIO-3000多道-计算机测量系统方框图

靶之间放了一个约1mm厚的铅吸收片。

为了提高裂变产物 $\gamma$ 放射性的测量精度，在最佳测量时间内，我们对同一个靶进行重复跟踪测量，以获得多个 $\gamma$ 射线能谱。

为了检验数据的重复性，我们先后照射了几个靶子，并用两套SCORPIO-3000系统进行独立测量。

我们采用SAPL程序<sup>[9]</sup>解谱，重点分析 $^{99}\text{Mo}$ 的739.6keV和 $^{95}\text{Zr}$ 的756.4keV两条 $\gamma$ 线的全能峰。该程序具有较强的解重峰能力。至于其解谱准确性，我们曾用上述测量系统和该解谱程序，对热中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变的一些裂变产物的产额进行测量作检验，得到的结果与目前评价值的差异一般为1%左右。

### 三、结果和讨论

在本工作中，如果对 $^{99}\text{Mo}$ 和 $^{95}\text{Zr}$ 的峰测量面积进行分支比、效率等各项修正，是可以得到相对产额的。但我们的兴趣在于 $R$ 值。因此，只计算了样品在照射过程中裂变产物的平均产生率之比，我们称之为“准相对产额”。它同样能反映本工作的测量重复性。各号靶的 $^{99}\text{Mo}$ 准相对产额如表1所示。

表1 裂变谱(热)中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变 $^{99}\text{Mo}$ 的准相对产额

| 靶号     | 中子类型  | 准相对产额 ( $^{99}\text{Mo}/^{95}\text{Zr}$ ) |
|--------|-------|---|
| 5      | 热中子   | 0.2161(1±2.04%)                           |
| 13     | 热中子   | 0.2156(1±0.79%)                           |
| 6      | 裂变谱中子 | 0.2201(1±2.94%)                           |
| 9      | 裂变谱中子 | 0.2171(1±2.56%)                           |
| 10     | 裂变谱中子 | 0.2269(1±1.61%)                           |
| 11(包辐) | 裂变谱中子 | 0.2205(1±2.19%)                           |
| 12     | 裂变谱中子 | 0.2212(1±2.13%)                           |

我们对铀样品中 $^{238}\text{U}$ 在裂变谱中子作用下生成的裂变产物,以及因快、热靶对 $\gamma$ 射线的平均吸收厚度不同而导致同一能量的 $\gamma$ 射线在快、热靶中的衰减有差异,均作了修正。其最后效果均表现为使 $R$ 值降低;前者为4%,后者为1%。

由以上数据可以得到 $^{99}\text{Mo}$ 的 $R$ 值为1.025 ( $\pm 1.7\%$ )。据此,根据前面选用的有关产额数据,可以计算出裂变谱中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变 $^{99}\text{Mo}$ 的累计产额为6.15 ( $\pm 2.8\%$ );扣掉前述修正量,最后为6.12 ( $\pm 2.8\%$ )。在2.8%的误差中,包括了峰面积误差和我们所取的参考值的误差。在相对测量中,事实上所有测定面积中的系统性的误差均可消去,因此,2.8%就是总误差。

自从五十年代研究质量分布曲线特征以来,实验上一直肯定:双驼峰曲线的谷和两翼随中子能量的增加而上升。L. E. Glendenin等人<sup>[10]</sup>在0.17—8.1 MeV能区、J. G. Cuninghame等人<sup>[11]</sup>在0.13—1.7 MeV能区,分别用单能中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变对有代表性的一些裂变产物(包括 $^{99}\text{Mo}$ )作了产额测量。他们的结果指出:峰上核素的产额随中子能量的增加有稍微下降的趋势。L. E. Glendenin所在的实验室(Argonne)对 $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ 作过类似测量,发现了同样的特点。应该指出,由同一实验室进行这种产额随中子能量变化趋势的测量,其相对趋势应该是可靠的。由此看来,裂变谱中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变的 $^{99}\text{Mo}$ 累计产额应不大於热产额。我们的测量结果在实验误差范围内符合这一规律。

西北核技术研究所对本工作给予了大力支持,本院电子部多道组提供SCORPIO-3000系统使用,我们在此一并感谢。

#### 参考文献

- [1] Petrzhak, K., A. et al., AEC-tr-4696(1960).
- [2] Bonyshkin, E. A. et al., AEC-tr-4682(1960).
- [3] 裂变产额组,核化学与放射化学,2(1),1(1980).
- [4] 裂变产额组,核化学与放射化学,4(1),44(1982).
- [5] Nethaway, D. R., UCRL-51458(1973).
- [6] Cuninghame, J. G., AERE-R8753(1977).
- [7] Debertin, K., IAEA-208(Vol.2), 1978.
- [8] 杨滢等,科技,4,483(1981).
- [9] 王德安等,原子能研究所SCORPIO-3000系统谱分析软体包.
- [10] Glendenin, L. E. et al., Phys. Rev. C24, 2600(1981).
- [11] Cuninghame, J. G. et al., J. Inorg. Nucl. Chem., 36, 1453(1974).

## DETERMINATION OF $^{99}\text{Mo}$ CUMULATIVE YIELD OF $^{235}\text{U}$ FISSION BY THE SPONTANEOUS FISSION NEUTRONS OF $^{252}\text{Cf}$ SOURCE

WANG DAO    TANG PEIJIA    JU CHANGXIN

LIU DAMING    WANG QING

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

## ABSTRACT

Gross fission product gamma-ray spectra are obtained using a large volume Ge(Li) detector, and then, the total energy peaks corresponding to  $^{99}\text{Mo}$  739 keV and  $^{95}\text{Zr}$  756 keV gamma-rays are analysed. The  $R$  value, which is the ratio of  $^{99}\text{Mo}$  relative cumulative yields for fast and thermal fission of  $^{235}\text{U}$ , are determined. Absolute cumulative yield of  $^{99}\text{Mo}$  is obtained based on the normalization of the  $R$  Value to the reference values of FPYs concerned.

Up to now, the published data can be divided into two groups, the one,  $\sim 6.40$ , and the other,  $\sim 6.10$ . Our result,  $6.12(1 \pm 2.8\%)$ , agrees well with the latter.

**Key words** Fission product, Fission product yield, Ge(Li),  $R$  value.

## 冠醚络合物的稳定性理论

## I. 冠醚及其金属络合物中若干几何参数的计算

陈仕平 刘伯里

(北京师范大学放射化学研究室)

**关键词** 冠醚, 空穴半径, 环半径, 冠醚络合物, M-O距离, 原子接触模型。

冠醚已广泛应用于有机合成、金属离子的分离或分析以及离子选择电极等方面<sup>[1-3]</sup>。由于较难制备成适合晶体测定的样品形式, 所以迄今为止测定冠醚或其络合物晶体结构的工作为数并不多<sup>[4]</sup>。

本文根据作者首次建立的原子接触模型(AIC Model)具体计算了七种简单冠醚(12C4, 15C5, 18C6, 21C7, 24C8, 27C9和30C10)的环半径(指氧原子所在环的半径)和空穴半径, 还计算了若干种金属络合物中金属离子与给体原子(氧)的距离 $r_{\text{M-O}}$ 以及与环平面的距离 $r_{\text{M-面}}$ 。所得的空穴半径与Pedersen<sup>[9]</sup>值和温元凯值<sup>[10]</sup>等文献值相比有明显改进,  $r_{\text{M-O}}$ 计算值与晶体测定值相对偏差约为3%。AIC模型对于预言冠醚及其络合物的分子几何学和进一步的结构化学(或量子化学)研究具有重要的应用价值。

## 一、计算方法

我们调查了迄今已测出的不同冠醚或其络合物的X射线结构分析结果, 在此基础上提

1984年6月12日收到。