

文章编号: 0253-9950(2002)-0122-04

## 19.1 MeV 中子诱发<sup>235</sup>U 裂变质量分布研究

鲍 杰<sup>1</sup>, 刘永辉<sup>1</sup>, 杨 毅<sup>1</sup>, 冯 晶<sup>1</sup>, 李 泽<sup>2</sup>, 崔安智<sup>2</sup>,  
孙宏清<sup>2</sup>, 张生栋<sup>2</sup>, 郭景儒<sup>2</sup>

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: 用双裂变电离室测量了靶物质碎片的裂变率, 由阈探测器测量了中子能谱, 用能谱法测量了 19.1 MeV 中子诱发<sup>235</sup>U 裂变时<sup>95</sup>Zr, <sup>147</sup>Nd 等 35 种产物核素的产额。并绘制了产额 - 质量分布曲线。

关键词: <sup>235</sup>U; 裂变产额测定; 能谱法

中图分类号: O614.62 文献标识码: A

中子诱发重核裂变产物的产额测量工作在核数据测量和核裂变机制研究中具有重要意义。特别是近些年来, 裂变产物的产额随中子能量变化规律的研究一直为人们所关注<sup>[1-6]</sup>。在热中子和 14 MeV 中子能区, 热中子和快中子及 14 MeV 中子诱发<sup>235</sup>U 裂变产额的数据报道较多, 而其它单能点的数据较少, 而且数据分歧较大, 主要原因是中子源的强度不够和非主中子的干扰太大。关于 19.1 MeV 中子诱发<sup>235</sup>U 裂变产物产额测量的工作, 尚未见文献报道。为此, 在本院放射性计量测试部的小串列加速器上进行 19.1 MeV 中子诱发<sup>235</sup>U 裂变的产额测量。本文利用核反应<sup>3</sup>H(d, n)<sup>4</sup>He 产生的 19.1 MeV 中子, 用阈探测器测量中子能谱, 用能谱法测量从<sup>84</sup>Br 到<sup>151</sup>Pm 共 35 个质量链的产额, 以得到该能点的产额数据。

### 1 实验部分

#### 1.1 材料和设备

电离室, 自制; 前置放大器, 北京核仪器厂产品; 主放大器 572, 四路单道, 92X 多道, HPGc 探

测器, 均为美国 ORTEC 公司产品; <sup>235</sup>U 靶片 2 个, 本院放射化学研究所产品; <sup>3</sup>H-Ti 靶 2 个, 本院同位素所产品。

#### 1.2 实验方法

1.2.1 铀靶的制备和照射 铀靶为直径 16 mm 的金属铀片, 厚度为 0.4 ~ 0.8 g/cm<sup>2</sup>, 同位素成份为: 1.1% <sup>234</sup>U, 90.2% <sup>235</sup>U, 0.3% <sup>236</sup>U, 8.4% <sup>238</sup>U。金属铀片用硝酸洗涤除去氧化层后准确称重, 用厚度为 5 mg/cm<sup>2</sup> 的纯铝箔封包, 以防止裂变产物丢失。标准靶是用与厚靶来源相同的浓缩铀(<sup>235</sup>U) 经分子电沉积在厚度为 0.10 ~ 0.15 mm 的铂金底衬上制成。铀斑的直径为 16 mm, 厚度为 0.3 ~ 0.4 mg/cm<sup>2</sup>。标准靶的比活度为 (2.362 ± 0.022) Bq/μg<sup>[7]</sup>。为了减少中子散射影响, 双裂变室制作得小而轻, 电极用直径为 54 mm 的铝片制成。电缆接头固定在 8 mm 厚的黄铜法兰盘上, 距电极为 205 mm。

实验在 2X1.7 MeV 小串列加速器上完成, 19.1 MeV 中子由<sup>3</sup>H(d, n)<sup>4</sup>He 产生, 束流强度平均为 8 μA。样品裂变率通过双裂变室监测, 电离

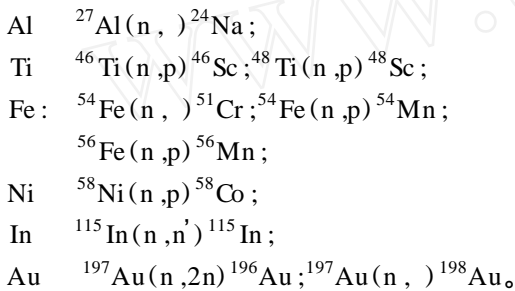
收稿日期: 2001-03-10; 修订日期: 2002-01-04

作者简介: 鲍 杰 (1975 -), 男, 河北廊坊人, 助理研究员, 核物理专业。

室贴近靶头,照射时间为30 h。

1.2.2 裂变率的测量 从双裂变室出来的两路脉冲信号经放大后,每路又分两路同时分别进入四路单道脉冲幅度分析器,共有四路甄别输出信号输入四道多路定标单元并用微机实时记录和处理。多路定标的时间道宽和道数可根据产物核素的寿命而预置,实验仪器范围时间道宽为 0.1 ~ 900 s。最大道数为4 096<sup>[8]</sup>。

1.2.3 中子能谱的测量 选取若干阈探测器 (Al, Ti, Fe, Ni, In, Au), 经中子辐照后测量各产物核的活度,用 SAND- 程序计算出中子能谱。阈探测器的反应如下:



1.2.4 探测器效率的测量 用 HPGe 探测器测量裂变产物核素的 射线能谱。P 型同轴 HPGe 探测器的体积为110 cm<sup>3</sup>,对<sup>60</sup>Co 的 1 332.5 keV 能量的 射线分辨率(FWHM)为 1.85 keV。测量标准靶时将其放在有机玻璃架上,与探测器的距离可通过有机玻璃架进行调节。探测器的外盖上加一个厚为1.4 mm的镅片以屏蔽低能 X 射线。选取一系列没有级联发射的单能 源<sup>54</sup>Mn, <sup>57</sup>Co, <sup>65</sup>Zn, <sup>109</sup>Cd, <sup>137</sup>Cs 作绝对刻度,效率曲线示于图 1。图 1 中的曲线由经验公式拟合实验点而成:

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

式中,  $\epsilon(E)$  为随能量变化的探测效率,  $E$  为射线能量,  $a_i$  为拟合系数。但铀靶厚度与刻度源的厚度不同。改变源与探测器之间的距离测得几何校正系数为  $g_c = 1 + 0.032 3(0.2 + 1/2)$ , 其中  $1$  为铀靶的厚度。

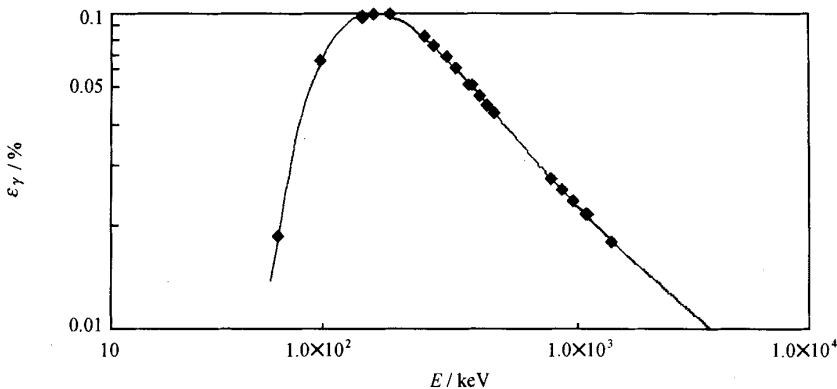


图 1 探测器的效率曲线  
 Fig. 1 The efficiency curve of HPGe detector

## 2 结果和讨论

### 2.1 <sup>235</sup>U 的裂变率对裂变产额测量的影响

用双裂变电离室绝对监测裂变率,用来计算绝对裂变产额值。给出的裂变率精度好于 1.5 %。

### 2.2 中子能谱对裂变产额测量的影响

用阈探测器方法测量中子能谱,结果列入表 1。

表 1 中子能谱

Table 1 Neutron spectrum

$E_n$ / MeV	计数(N)	$E_n, cen$ / MeV
0.1 ~ 2.6	2 410	1.05
2.7 ~ 4.5	1 152	3.35
4.6 ~ 18.4	45	11.16
18.5 ~ 20.0	9 495	19.10

表 1 结果表明:非主中子与主中子比例约为 0.38 : 1; 非主中子平均能量为 1.91 MeV; 0.1 MeV 以下能量的中子有待进一步分析。非主中子主要来自 D-D 沉积反应和低能本底散射。以计数百分比作为权重,以评价值作为相应非主中子的产额,扣除非主中子对主中子裂变产额值的影响,可以得到 19.1 MeV 单能中子的裂变产额。

### 2.3 裂变产额计算

在裂变产物衰变链中 A B C, A 核的累积产额  $Y_f$  可按下式计算:

$$Y_f = A / \{ m \cdot C \cdot I \cdot e^{-\lambda t} \cdot n_{fi} e^{-(T_N - T_i)} [1 - e^{-(T_N - T_i)}] \} \quad (1)$$

式中,  $A$  为计数率,  $\text{min}^{-1}$ ;  $m$  为照射靶的质量,  $\text{mg}$ ;  $C$  为射线自吸收校正系数;  $I$  为射线的绝对活度,  $\text{s}^{-1}$ ;  $\epsilon$  为射线的探测效率;  $\lambda$  为核素的衰变常量  $\text{s}^{-1}$ ;  $t$  为冷却时间,  $\text{min}$ ;  $T_i$  为照射时间内第  $i$  时刻(令照射初始时刻  $T_0 = 0$ , 而停止时刻为  $T_N$ );  $n_{fi}$  为  $T_i$  时刻的裂变率,  $\text{s}^{-1}$ 。所用的衰变数据表参见文献[9]。裂变产额质量分布曲线示于图 2。

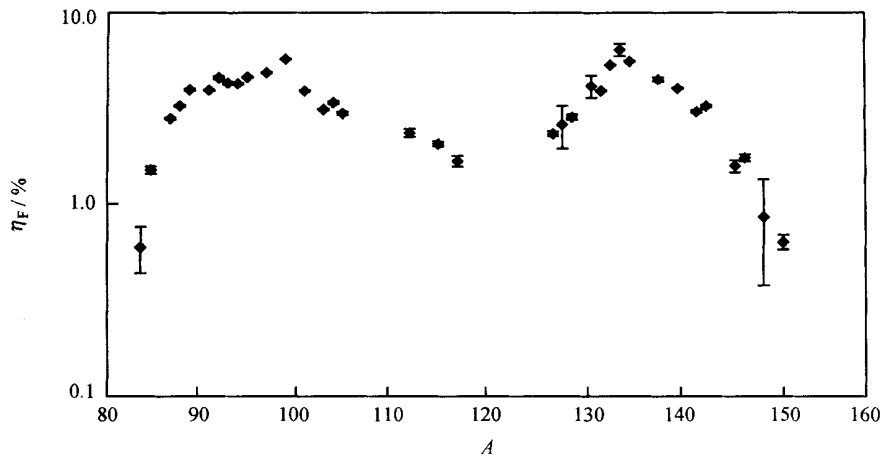


图 2 19.1 MeV 中子诱发<sup>235</sup>U 裂变的质量分布曲线

Fig. 2 Mass distribution curve of 19.1 MeV neutron induced fission

### 2.4 裂变产额值

4 块厚铀靶经辐照后,用高纯锗(HPGe)谱仪进行裂变产物核素分析并获取峰面积数据<sup>[10]</sup>。在谱数据获取过程中,由于辐照的样品较少,既要尽可能多地得到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,探测效率,核素间能量的相互干扰程度以及产物核素的半衰期等因素都给予了适当考虑。在产物核素鉴别时,对于每个核素都绘出了射线强度随时间变化曲线。以对可能存在的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。为减少偶然误差,对每一个样品都采用了两套完全独立的高纯锗

谱仪系统进行了数据获取。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,以较少地损失计数积累的机会。

为减少非主中子引起的裂变对产额测量精度的影响,实验中采用阈探测器方法对中子能谱进行测量。选用的探测器材料为铝(Al),钛(Ti),铁(Fe),镍(Ni),铟(In)和金(Au)等。经中子辐照后用探测器测量产物核素的活度,用 SAND-程序计算与合理估计的方法得出中子能谱,进而得到裂变数谱对每个裂变产物核素进行非主中子影响的修正,误差最大不超过 2%。

用直接能谱法测量中子诱发重核裂变产额的测量误差主要来自裂变率的绝对测定。本工作采用了双裂变室记录裂变碎片,并采用<sup>197</sup>Au 箔代替<sup>235</sup>U 厚靶,装在双裂变室内两标准靶之间,与铀样品照射条件相同,通过这种方法对裂变室的

效率进行了检验<sup>[2]</sup>。

从图 2 所示的质量产额曲线看出, 实验共测得 35 个裂变产物核素的产额。测得的产额之和为 114.3%, 轻峰和重峰之和分别为 61.1% 和 53.2%。用内插法和外推法得到未测定的产额, 轻峰和重峰的总和分别为 100.4% 和 98.0%。这与 100% 在误差范围内很好地符合。说明裂变率和裂变产物的绝对测量是正确的。轻重峰的平均质量数分别为 97.9 和 133.8, 平均裂变中子发射率 = 4.3。

致谢: 卢涵林研究员, 韩洪银研究员和王屹华先生以及对本工作给予关心和支持的各位作者一并表示感谢。

#### 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 <sup>235</sup>U and <sup>238</sup>U [J]. Phys Rev, 1978, C17:1 089.
- [2] CLERC H G, LANG W, MUTTERER M, et al. Cold Fragmentation in Thermal-Neutron-Induced Fission of <sup>233</sup>U and <sup>235</sup>U [J]. Nucl Phys A, 1986, 452 (2):277 ~ 295.
- [3] RUDSTAM G, AGAARD P, EKSTROM B, et al. Yields of Products From Thermal Neutron-Induced Fission of <sup>235</sup>U [J]. Radiochim Acta, 1990, 49(4): 155 ~ 191.
- [4] GLENDENIN L E, GINDLER J E, HENDERSON D J, et al. Mass Distributions for Monoenergetic-Neutron-Induced Fission of <sup>235</sup>U [J]. Phys Rev, 1981, C24:2 600.
- [5] 原子能研究所裂变产额组. 热中子和裂变谱中子诱发<sup>235</sup>U 裂变时几个核素累积产额的绝对测量 [J]. 核化学与放射化学, 1980, 2(1):1 ~ 8.
- [6] 原子能研究所裂变产额组. 14.9 MeV 中子诱发<sup>235</sup>U 裂变时几个核素累积产额的绝对测量 [J]. 核化学与放射化学, 1984, 6(4):229 ~ 231.
- [7] 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.
- [8] 李 泽, 崔安智, 刘大鸣, 等. <sup>95</sup>Zr, <sup>140</sup>Ba 和 <sup>147</sup>Nd 产额的精确测量 [J]. 核化学与放射化学, 1995, 17 (2):65 ~ 72.
- [9] RICHARD B F. Table of Isotopes (8th [M]). California: Lawrence Berkeley National Lab, University of California, 1996.
- [10] WANG Li-yu. Multiple Processing in High Resolution Gamma Spectroscopy [J]. Int J Appl Radiat Isot, 1989, 40(7):575 ~ 579.

## MASS DISTRIBUTION IN 19.1 MeV NEUTRON-INDUCED FISSION OF <sup>235</sup>U

BAO Jie<sup>1</sup>, LIU Yong-hui<sup>1</sup>, YNAG Yi<sup>1</sup>, FENG Jing<sup>1</sup>, LI Ze<sup>2</sup>, CUI An-zhi<sup>2</sup>, SUN Hong-Qing<sup>2</sup>, ZHANG Sheng-dong<sup>2</sup>, GUO Jing-ru<sup>2</sup>

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:** 35 chain yields are determined for the fission of <sup>235</sup>U induced by 19.1 MeV neutrons by HPGe  $\gamma$ -ray spectrometry. Absolute fission rate is monitored with a double-fission chamber. The efficiency of the fission chamber is checked with absolute determination of <sup>198</sup>Au activity from <sup>197</sup>Au(n,  $\gamma$ )<sup>198</sup>Au reaction for the first time. Fission product activities of irradiated <sup>235</sup>U foils are measured by HPGe  $\gamma$ -ray spectrometry without chemical separation. Threshold detector method is used to estimate the fission events induced by neutrons of other energies.

**Key words:** fission yield; <sup>235</sup>U;  $\gamma$ -ray spectrometry