

3MeV中子诱发²³⁸U裂变的质量分布

裂变产额组*

(原子能研究所, 北京)

本文叙述了用放化法和 Ge(Li) 直接 γ 能谱法测量 3MeV 中子诱发 ²³⁸U 裂变的裂变产额。测得了 38 个核素的产额值, 其中 9 个核素的产额尚未见文献报道。用实验值描绘出的质量-产额曲线下的总产额为 200.2%, 在重峰 $A=134$ 处存在精细结构峰, 在轻峰 $A=101-103$ 处观测到一小峰。

关键词 裂变产额, 质量分布, 精细结构。

引 言

前些年对 3.0MeV 中子诱发 ²³⁸U 裂变时质量产额的分布缺乏广泛研究, 仅有的实验数据^[1-4]还不能描绘出一条质量分布曲线。直到 1975 年 Harvey 等人^[5]才以 ¹⁴⁰Ba 为参照核相对测量了 32 个质量链的产额, 然后归一化到 200%, 给出了绝对产额值。并作出了质量-产额曲线。

本工作的目的是测定该裂变体系中裂变产物的产额, 以便提供更多、更精确的产额值, 同时研究质量分布, 并对其特征及精细结构进行讨论。

实 验

1. 铀样品的制备 将直径为 16mm 的天然铀金属片除去污物和氧化层后, 包在 20 μ m 厚的高纯铝箔中, 然后冷压密封于 200 μ m 厚的铝制圆盒中。

在碘的测定中, 辐照样品采用同样直径的天然铀 $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ 压片, 封装于塑料袋内。

2. 铀样品的辐照 在 600kV 高压倍加器上用入射能量 400keV 的氘核轰击 Ti-D 靶, 通过 $D(d, n)^3He$ 反应产生能量为 3.00 ± 0.28 MeV 的单能中子, 强度为 $10^8 - 2.5 \times 10^9$ n/s。用双裂变电离室测量样品的裂变率^[6]。

3. 放射性的测量和数据处理 放化分离纯化^[7]后制成样品源, 测量 β 或 γ 放射性, 对那些半衰期较短又不便于化学分离的核素采用直接 γ 能谱法进行测定。 β 放射性在有机闪烁体低本底装置上测量; γ 放射性在 $\phi 75 \times 75$ mm 井型 NaI(Tl) 晶体低本底装置上测量; γ 能谱在活性体积为 130cm³, 能量分辨率 $FWHM = 1.85$ keV (对 1332keV) 的同轴 Ge(Li) 多道计算机系统上测量。

* 执笔人: 张春华、刘从贵。
1983年12月9日收到。

某些核素的 β 、 γ 测量效率由已知强度的该核素标准源直接刻度，不能进行直接刻度的核素的测量效率，分别由预先标定的 β 、 γ 效率曲线^[6]给出。

对于一些含有两个以上核素的源（如¹⁰⁹Pd-¹¹²Pd-¹¹²Ag, ¹³¹I, ¹³²I, ¹³³I, ¹³⁴I, ¹³⁵I 等）的测量，用跟踪总 β 放射性，然后作图分解^[10,11]得到每个组分。

绝大多数核素的产额计算同文献[6,9]。¹³⁴I 在分离时刻，其母体核还没有完全衰变，则其产额(y_i)需用方程(1)计算。

$$y_i = y_0 \cdot \frac{A_i^s}{N_{f_i}} \cdot \frac{N_{f_0}}{A_c} \quad (1)$$

其中 y_0 、 A_0 分别为参照核的产额和停照时刻的衰变率。 A_i^s 为分离时刻¹³⁴I 的衰变率。 N_{f_0} 和 N_{f_i} 分别为 (1a) 和 (1b)。

$$N_{f_0} = \sum_{i=1}^k n_f(i) [1 - e^{-\lambda_0 T(i)}] e^{-\lambda_0 [T - \sum_{j=1}^i T(j)]} \quad (1a)$$

$$N_{f_i} = \sum_{i=1}^k \{ n_f(i) \{ R_1 \left[\frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 T(i)}) e^{-\lambda_1 T_s} + \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 T(i)}) e^{-\lambda_2 T_s} \right] + R_2 (1 - e^{-\lambda_2 T(i)}) e^{-\lambda_2 T_s} \} \} \quad (1b)$$

式中 $T_s = \sum_{i=1}^k T(i) - \sum_{j=1}^i T(j) + T_{SP}$; $j = i - 1$; k 为中子通量变化的段数; $n_f(i)$ 为实验测得的第 i 段的裂变率; λ_2 , λ_1 , λ_0 分别为¹³⁴I、¹³⁴Te 及参照核的衰变常数; T 为总的辐照时间; $T(i)$ 为第 i 段辐照时间; R_1 、 R_2 分别为累积生成和独立生成的¹³⁴I 的分数^[12]; T_{SP} 为停照时刻到分离时刻的时间。

结果和讨论

本工作用上述方法测量了从^{85m}Kr—¹⁶¹Tb 之间的38个核素的绝对累积产额，其结果与其他测量者的结果列于表1。表中^{89,91}Sr, ^{95,97}Zr, ⁹⁹Mo, ¹³²Te, ¹⁴⁰Ba, ^{141,143}Ce 的值为绝对测量值，其余是以¹⁴⁰Ba 或 ⁹¹Sr, ⁹⁹Mo 作参照核测量值。^{95,97}Zr 的产额值与文献值^[5]差别较大，和 Nagy^[14]的结果 (⁹⁵Zr, 5.24 ± 0.19 , ⁹⁷Zr, 5.65 ± 0.15) 一致。¹³³I 的产额值 (5.57 ± 0.57) 与文献中仅有的两个数据 (8.18 和 7.37 ± 0.82)^[3,5] 符合得不好，^{131,135}I 在误差范围内符合，我们对碘的放化分离流程进行了研究，解决了碘的同位素交换问题，用测量 β 和 γ 放射性两种方法得到了相同的结果。¹⁶¹Tb 由于产额太低，测量次数较少，仅提供一个上限。

表1中所给误差为测量值的总误差。绝对测量值误差处理方法同文献[6]，放化法相对于¹⁴⁰Ba 和 Ge(Li) 直接 γ 能谱法相对于⁹¹Sr 测量的总误差分别由(2)和(3)式给出。

$$\sigma_{is} = \sqrt{\sigma_{i_s}^2 + (\sigma_{onf} + 2\sigma_{oac})^2 + 2\sigma_{iao}} \quad (2)$$

$$\sigma_{is} = \sqrt{\sigma_{i_s}^2 + \sigma_s^2 + \sigma_{o_s}^2 + 2\sigma_{iao}} \quad (3)$$

式中 σ_{i_s} 为 i 核的探测效率误差; σ_{onf} 和 σ_{o_s} 分别为参照核裂变率的测量误差和累积产额值的总误差; σ_{oac} 和 σ_{iao} 分别为参照核和 i 核的单个测量的标准偏差; σ_s ^[9] 为自吸收校正误差。引用的半衰期和分支比^[13]的误差不包括在内。本工作测得的产额值误差，对²峰区核素约为

表1 本文结果与文献数据比较

| 核素 | 本工作 测量方法* | 裂 变 产 额, % | | | | | 文 献 [5] |
|-------------------|----------------------|-------------------------|-------------------|---------------------|-----------------|-------------------|-------------------|
| | | 本 工 作** | 文 献 [1] | 文 献 [2] | 文 献 [3] | 文 献 [4] | |
| ^{85m}Kr | γ | $0.63 \pm 0.13(3)$ | | | | | |
| ^{87}Kr | γ | $1.72 \pm 0.13(3)$ | | | | | |
| ^{88}Kr | γ | $1.90 \pm 0.24(3)$ | | | | | |
| ^{89}Sr | RC- β | $2.97 \pm 0.14(5)$ | 2.65 ± 0.3 | | | | 3.73 ± 0.39 |
| ^{91}Sr | RC- γ | $4.33 \pm 0.17(4)$ | | | | 3.50 ± 0.05 | 4.65 ± 0.45 |
| ^{92}Sr | γ | $4.58 \pm 0.45(2)$ | | | | | 5.21 ± 0.51 |
| ^{95}Zr | RC- γ | $5.06 \pm 0.31(5)$ | | | | | 6.67 ± 0.80 |
| ^{97}Zr | RC- γ | $5.48 \pm 0.17(5)$ | | | 5.89 | | 6.95 ± 0.69 |
| ^{99}Mo | RC- γ | $6.14 \pm 0.27(9)$ | 6.32 | 6.92 ± 0.69 | 6.32 | 6.32 | 6.75 ± 0.71 |
| ^{101}Tc | γ | $6.70 \pm 0.39(3)$ | | | | | |
| ^{103}Ru | RC- γ | $5.96 \pm 0.37(6)$ | 6.20 | | | | 5.24 ± 0.85 |
| ^{105}Ru | γ | $4.35 \pm 0.36(3)$ | | | | 3.81 ± 0.21 | 2.16 ± 0.31 |
| ^{106}Ru | RC- β | $2.70 \pm 0.20(6)$ | 2.9 ± 0.3 | | | | |
| ^{107}Rh | γ | $1.79 \pm 0.12(3)$ | | | | 1.36 ± 0.13 | |
| ^{109}Pd | RC- β | $0.129 \pm 0.019(3)$ | | | | | 0.102 ± 0.010 |
| ^{111}Ag | RC- β | $0.050 \pm 0.005(6)$ | 0.063 ± 0.006 | 0.0513 ± 0.0103 | | | 0.077 ± 0.008 |
| ^{112}Pd | RC- β | $0.054 \pm 0.016(6)$ | | | | | 0.069 ± 0.009 |
| ^{113}Ag | RC- β | $0.023 \pm 0.005(3)$ | | | | | 0.059 ± 0.007 |
| ^{113}A | | $0.031 \pm 0.007^{***}$ | | | | | |
| ^{115}Cd | RC- β | $0.032 \pm 0.003(5)$ | 0.035 ± 0.007 | 0.0256 ± 0.0051 | | | 0.057 ± 0.010 |
| ^{115}A | | $0.034 \pm 0.003^{***}$ | | | | | |
| ^{121}Sn | RC- β | $0.026 \pm 0.005(6)$ | | | | | 0.059 ± 0.009 |
| ^{121}A | | $0.030 \pm 0.006^{***}$ | | | | | |
| ^{125}Sn | RC- β | $0.0102 \pm 0.0010(6)$ | | | | | |
| ^{125}A | | $0.099 \pm 0.010^{***}$ | | | | | |
| ^{127}Sb | RC- γ | $0.125 \pm 0.019(6)$ | 0.130 ± 0.03 | | | | 0.131 ± 0.020 |
| ^{128}Sb | γ | $0.50 \pm 0.14(2)$ | | | | | |
| ^{129}Sb | γ | $0.45 \pm 0.10(3)$ | | | | 0.329 ± 0.014 | |
| ^{131}I | RC- γ | $2.23 \pm 0.15(3)$ | | | 3.10 ± 0.06 | | |
| ^{132}Te | RC- γ | $4.69 \pm 0.24(6)$ | 4.65 ± 0.7 | | | | 3.79 ± 0.35 |
| ^{133}I | RC- $\beta + \gamma$ | $5.57 \pm 0.57(4)$ | | | 8.18 | | 7.37 ± 0.82 |
| ^{134}I | RC- β | $8.35 \pm 0.86(3)$ | | | | | 8.19 ± 0.84 |
| ^{135}I | RC- $\beta + \gamma$ | $7.66 \pm 0.66(4)$ | | | 8.40 | | 6.88 ± 0.90 |

| 核素 | 本工作 测量方法* | 裂 变 产 额, % | | | | | |
|-------------------|--------------|-----------------------|------------------|---------|---------|-----------------|-----------------|
| | | 本工作** | 文 献 [1] | 文 献 [2] | 文 献 [3] | 文 献 [4] | 文 献 [5] |
| | γ | $7.58 \pm 0.52 (3)$ | | | | | |
| ^{138}Cs | γ | $5.49 \pm 0.40 (3)$ | | | | | |
| ^{140}Ba | RC- γ | $5.77 \pm 0.22 (6)$ | 5.7 | | | | 6.16 ± 0.13 |
| ^{141}Ce | RC- β | $5.27 \pm 0.26 (7)$ | | | | | 5.76 ± 0.61 |
| ^{143}Ce | RC- β | $4.75 \pm 0.54 (6)$ | | | | 5.14 ± 0.19 | 5.45 ± 0.50 |
| ^{144}Ce | RC- β | $4.72 \pm 0.39 (9)$ | 4.85 ± 0.5 | | | | |
| ^{147}Na | RC- β | $2.87 \pm 0.25 (6)$ | | | | | 3.5 ± 0.51 |
| ^{153}Sm | RC- β | $0.403 \pm 0.41 (5)$ | | | | | |
| ^{156}Eu | RC- β | $0.062 \pm 0.009 (3)$ | 0.069 ± 0.01 | | | | |
| ^{161}Tb | RC- β | < 0.01 | | | | | |

* RC- β 系指放射分离后,在 β 测量装置上测量。RC- γ 为放射分离后,在 γ 单道谱仪上测量。RC- $\beta+\gamma$ 为放射分离后,有些在 β 测量装置上测量,有些在 γ 谱仪上测量。 γ 为直接 γ 能谱法测量。

** 括号中数字为测量样品数。

*** $A=115$ 和 125 的链产额,分别由 ^{115}Cd 和 ^{125}Sn 的累积产额值和Hitoshi^[12]提供的分累积产额或分支比计算得到。 $A=113$ 和 121 的链产额由 ^{113}Ag 和 ^{121}Sn 的累积产额,根据Nagy^[14]提供的数据计算得到。

5%,两翼和谷区为10—15%。

由表1的实验数据绘出质量产额曲线,见图1。

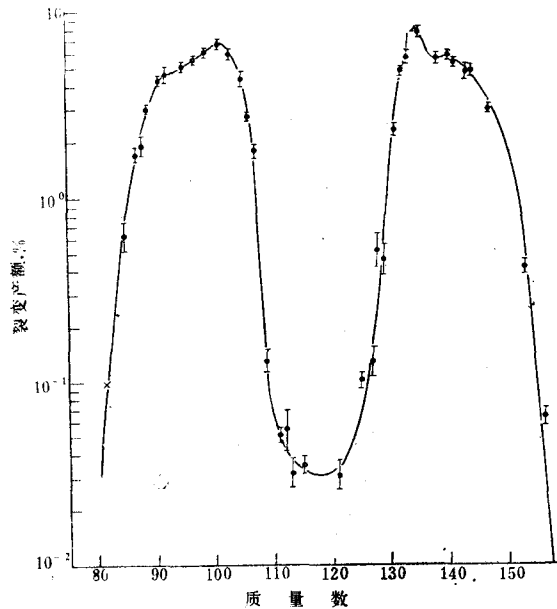


图1 3MeV中子诱发 ^{235}U 裂变的质量分布

●——实验点; ×——重峰右翼的对镜点。

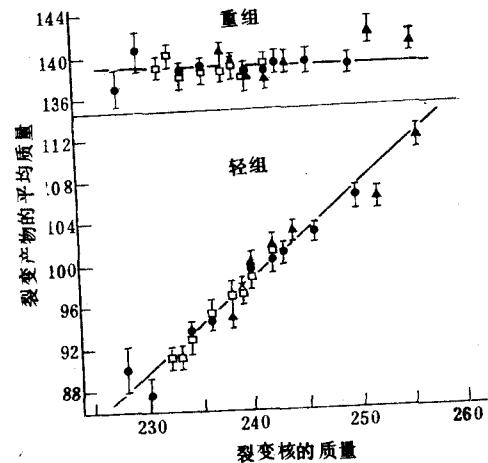


图2 轻、重裂变产物组的平均质量与裂变核的质量的关系

×——本工作; ▲——自发裂变; ●——热中子诱发裂变; □——反应堆中子诱发裂变。

从图1可以看出,质量分布曲线基本上是对称光滑的曲线。在重峰 $A=133-135$ 处有一精细结构峰,峰位在 $A=134$ 处,与重峰精细结构对应的轻峰 $A=101-103$ 处还有一个小精细结构峰。Nagy^[14]的1.5和2.0MeV中子诱发²³⁸U裂变的实验数据在101—103处也有偏高的趋向。

质量产额曲线轻峰的左翼下端系取重峰右翼的对镜点绘出。曲线轻峰下总产额为100.1%,重峰下为100.1%。轻、重峰的半宽度分别为16.7和15.8个质量数。峰谷比为179(⁹⁹Mo/ $A=115$)。轻、重峰的平均质量数分别为 97.5 ± 0.1 和 139.3 ± 0.1 (见表2),与经验规律即Vandenbosch^[15]关于重核的低能裂变中重峰上的平均质量数接近一个常数(139 ± 1)相符,而在轻峰上它是裂变体系总质量数的函数(图2)。

表2 3MeV中子诱发²³⁸U裂变的质量分布特征数据

| 平均质量数 | | 半宽度 | | 峰谷比 | 文献 |
|-------------------|-----------------|------------------|------------------|-------------------|-----|
| 轻峰 | 重峰 | 轻峰 | 重峰 | | |
| $97.5 \pm 0.1^a)$ | 139.3 ± 0.1 | 16.7 | 15.8 | 179 | 本工作 |
| 99 ^{b)} | — | — | — | 200 ^{d)} | [1] |
| 96 ^{c)} | 140 | 21 ^{e)} | 21 ^{e)} | 135 | [5] |

a) 为 $\frac{\sum A_i y_i}{\sum y_i}$ 计算值; b) 取峰最高处; c) 取半宽度处的中位值; d) 取⁹⁹Mo/ $A=115$; e) 此数据与其产额值绘出的曲线不符,实际为16左右。

结 论

本工作以放化法为主,结合直接 γ 能谱法测量了38个核素的产额。其中^{85m}Kr, ⁸⁷Kr, ⁸⁸Kr, ¹⁰¹Tc, ¹²⁵Sn, ¹²⁸Sb, ¹³⁸Cs, ¹⁵³Sm, ¹⁶¹Tb 9个核素的产额尚未见文献报道。

在重峰 $A=134$ 处有一精细结构峰,在轻峰101—103处也观测到一小峰。

参 考 文 献

- [1] Keller, R. N. et al., *Phys. Rev.*, **94**, 969 (1954).
- [2] Borikwa, H. E. et al., *Fizika*, **6**, 454 (1967).
- [3] Lyle, S. J. et al., *Radiochimica Acta*, **12**, 43 (1969).
- [4] Lyle, S. J. et al., *Radiochimica Acta*, **13**, 167 (1970).
- [5] Harvey, J. T. et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **37**, 2243 (1975).
- [6] 原子能研究所裂变产额组, *核化学与放射化学*, **2** (1), 1 (1980); **2** (4), 193 (1980).
- [7] 张春华等, *科技* **4**, 434 (1984).
- [8] 张春华等, *核技术*, 待发表。
- [9] 刘从贵等, 14.9MeV 中子诱发²³⁸U的产额质量分布, 待发表。
- [10] Biller, W. F., UCRL-2067, 1953.
- [11] Ganapathy, R. et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **29**, 257 (1967).
- [12] Hitoshi, I. et al., JAERI-M 9715, 1981.
- [13] 刘运祚等, *常用放射性核素衰变纲图*, 原子能出版社, 北京, 1982年。
- [14] Nagy, S. et al., *Phys. Rev. C*, **17**, 163 (1978).
- [15] Vandenbosch, R. et al., *Nuclear Fission*, Academic Press, New York and London, 1973, p. 304—333.

DISTRIBUTION OF FISSION YIELDS IN THE 3.0 MeV NEUTRON-INDUCED FISSION OF ^{238}U

CUMULATIVE YIELD GROUP

(Institute of Atomic Energy, p. o. Box 275, Beijing)

ABSTRACT

The fission yields of 38 mass chains are measured using radiochemical method as well as direct Ge (Li) γ spectrometry. The fission yields are reported for the first time for mass chains 85, 87, 88, 101, 125, 128, 138, 153 and 161. The yields measured make up 114.4% of the total 200% expected from fission. A fine structure exists at $A=134$ and a small fine structure at $A=101-103$. Under the light and heavy peak the total yields are both 100.1%. The peak widths taken at half maximum are 16.7 and 15.8 mass units, and the average mass numbers are 97.5 and 139.3 for the light and heavy peak respectively. The ratio of peak to valley is 179 ($^{99}\text{Mo}/^{115}\text{A}$).

Key words Fission yield, Mass distribution, Fine structure, Ratio of peak to valley.

上接封三(Continued from inside back cover)

DETERMINATION OF Cu, Na AND Au IN BIOLOGICAL MATERIALS AND SEMICON- DUCTORS BY NEUTRON ACTIVATION-SUB- STOICHIOMETRIC MULTIELEMENT SEPARATION

CHEN LIANZHONG SHA YAQIN

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

ABSTRACT

In this paper a radioanalytical method for substoichiometric multielement group separation is studied and applied to reactor neutron activation analysis. Zinc diethyldithiocarbamate $\text{Zn}(\text{DDC})_2$ is used as the chelating agent. By a single extraction gold is separated quantitatively, and copper substoichiometrically at the same time, while sodium is not extracted and remains in aqueous phase. These elements are separated from 2N H_2SO_4 and 0.1 N HClO_4 medium. This separation method is applied to the activation analysis of biological materials. Copper and gold are separated from interfering elements with high activity (principally ^{24}Na) and determined accurately with high sensibility. The method proves very suitable for the determination of copper, sodium and gold, the principal toxic elements in the semiconductor.

Key words Neutron activation analysis, Substoichiometric separation, Copper, Sodium, Gold. Biological material, Semiconductor.