

裂变产额法刻度浸于 铀溶液中SSTD的效率因子

王冬梅 张春华 唐培家 刘大鸣 郭景儒 王方定

(中国原子能科学研究院, 北京)

本文建立了裂变产额法用以刻度浸于铀溶液中的固体径迹探测器记录裂变碎片的效率因子。这个方法基于测量一些裂变产物核素的强度, 并应用文献中准确已知的裂变产额值计算出铀溶液中发生的裂变数。测量的裂变产物为 ^{91}Sr , ^{92}Sr , ^{99}Mo , ^{135}Te , ^{139}Ba , ^{140}Ba 6种核素。实验测定了聚碳酸酯记录裂变碎片的效率因子 $K_{w.e.}$ 为 $(8.52 \pm 0.05) \times 10^{-7} \text{cm}$ 。这个值和应用 ^{252}Cf 自发裂变刻度的结果很好地符合。

关键词 裂变产额, 聚碳酸酯, 径迹密度, 效率因子。

一、引言

浸于可裂变物质溶液中的固体径迹探测器(SSTD)已被用于裂变产额测量中记录裂变数^[1-5]。用可裂变物质的溶液作标准靶(SSTD浸于其中)较固体薄源作标准靶, 有明显的优点: 即, (1) 制作溶液标准靶容易, 而制备一个极薄而均匀的固体靶则困难得多。(2) 溶液中发生裂变事件是各向同性的, 径迹分布均匀, 只需测量径迹密度, 不必数出全部的径迹。而对于固体靶产生的径迹, 必须数尽全部, 费时费力, 有时还会出现漏数和重数现象。

SSTD在溶液中记录裂变碎片的效率因子 $K_{w.e.}$, 要通过实验来刻度。文献[6]中刻度 $K_{w.e.}$ 的方法有两个。一是把裂变物质的薄固体靶和SSTD贴在一起成 2π 立体角, 把它和另一浸在裂变物质溶液中的SSTD同时在中子束中照射。由固体靶的SSTD的裂变径迹推算出溶液中的裂变数, 从而刻度了 $K_{w.e.}$ 。另一个方法是把光谱纯的金片和含SSTD的铀溶液同时在中子束中照射, 由 ^{198}Au 的衰变率计算出裂变数而刻度 $K_{w.e.}$ 。

本文提出一个新方法刻度 $K_{w.e.}$ 。测量某些裂变产物核素的衰变率, 并利用已知的 ^{235}U 热中子裂变产额值计算出 $K_{w.e.}$ 。为了降低误差, 我们通过测量6种裂变产物核素的衰变率, 得出了聚碳酸酯径迹探测器记录裂变碎片的效率因子。作为对比, 我们还利用 ^{252}Cf 的自发裂变再次刻度了 $K_{w.e.}$ 。两种方法的结果很好地符合。

1989年7月11日收到, 1989年11月20日收到修改稿。

二、实 验

1. 方法原理

将已知量的铀靶(浓溶液或固体)和浸有SSTD的稀铀溶液靶一起在热中子束下同时照射。两种靶子的 ^{235}U 丰度相同。稀铀溶液中SSTD上的径迹密度 T_d ,用下式表示:

$$T_d = K_{ve} C \theta N \sigma_f \phi t / M \quad (1)$$

式中, T_d ——径迹密度, cm^{-2} ; K_{ve} ——SSTD记录溶液中裂变碎片的效率因子, cm ; C ——溶液中铀的浓度, $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$; θ —— ^{235}U 的丰度; N ——阿伏伽德罗常数; σ_f —— ^{235}U 热中子裂变截面, cm^2 ; ϕ ——热中子注量率, $\text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$; t ——照射时间, s ; M ——铀的摩尔质量, g 。

我们对同时照射的铀靶中生成的某裂变产物核素进行放化分离,测量后得到其放射性强度 A_0 ,以下式表示

$$A_0 = W \theta N \sigma_f \phi \varepsilon Y_c Y_f (1 - e^{-\lambda t}) / M \quad (2)$$

式中, A_0 ——放化分析后某核素的测量源在停照时刻的放射性计数率, $\text{计数}\cdot\text{s}^{-1}$; W ——靶中铀的质量, g ; ε ——该核素放射性测量的探测效率; Y_c ——化学产额, Y_f ——该核素的 ^{235}U 热中子裂变产额; λ ——该核素的衰变常数, s^{-1} ; 其它符号的意义同式(1)。

由式(1), (2)得到 K_{ve} ,

$$K_{ve} = \frac{T_d W \varepsilon Y_c Y_f (1 - e^{-\lambda t})}{A_0 C t} \quad (3)$$

2. 实验步骤

用同一种铀材料制备两种铀溶液,并准确标定其浓度。稀溶液作为标准靶,内浸待测的固体径迹探测器。浓溶液作为样品靶。

标准靶和样品靶同时在相同热中子束下照射一段时间。将径迹探测器从稀铀溶液中取出,蚀刻后在显微镜下读取径迹密度。将照射过的浓铀溶液转移出来,加入已经标定过的6种核素的载体。用我们拟订的系统分离流程分离纯化6种核素。得到的放射源在已经刻度过的探测器上计数。称重,校正化学产额。最后计算出 K_{ve} 。

3. 铀溶液的配制和制靶

取一定量的 U_3O_8 粉末(^{235}U 丰度90.1%)于已恒重的铂坩锅中,760°C下灼烧,冷却称量至恒重。向坩锅里小心滴入8—10mol/l HNO_3 (G.R,用石英重蒸水稀释) 3ml,小火微热,直到完全溶解。用重蒸水转移溶液到已称重的塑料小壶中,摇匀,即得铀溶液(I),浓度为10.15mg/g溶液。称取0.08081g铀溶液(I)于50ml容量瓶中,稀释至刻度为铀溶液(II),浓度为16.41 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 。铀溶液(I)用作进行放化分析的样品靶,铀溶液(II)用作浸有SSTD的标准靶。

将 $\phi 4 \times 25\text{mm}$ 聚乙烯管的一端,在酒精灯上烤软后封死。用镊子小心夹入一片 $3 \times 10\text{mm}$ SSTD,注入铀溶液(II),赶走气泡,液面漫过SSTD,将聚乙烯管另一端热封,即为标准靶。准确称取一定量铀溶液(I)注入聚乙烯管,使液面与管口相距5mm,封管,即为样

品靶。

4. 固体径迹探测器

本工作应用的SSTD系辽宁朝阳化工厂产的聚碳酸酯膜 ($[C_{16}H_{14}O_3]_n$ ，以下简称 JTSZ)。厚度为 $50\mu\text{m}$ ，剪成 $3\times 10\text{mm}$ 备用。

5. 径迹密度的获取

(1) **去污** 剪开聚乙烯管，夹出JTSZ膜，放入95%乙醇中浸泡清洗数分钟，在蒸馏水中洗净，滤纸吸去水，晾干。

(2) **蚀刻** 盛有 6mol/l NaOH溶液的小烧杯放在恒温水浴中，保持 $60.5\pm 0.5^\circ\text{C}$ ，放入JTSZ膜，蚀刻50min，取出后在去离子水中涮洗几次，晾干。

(3) **读数** 置JTSZ膜于载玻璃上，盖上盖玻璃， 45×12 倍显微镜下读记径迹 1×10^4 以上。经用标准微尺刻度视野面积为 $160\times 160\mu\text{m}$ ，即 $2.56\times 10^{-4}\text{cm}^2$ 。由于JTSZ记录的是溶液中的裂变碎片，径迹分布均匀，只需数准每个视野中的径迹。每个视野有4条边，压在边线上的径迹只数自己规定的两条边，以免被重数。所数的视野相互间隔约 $1/3$ 个视野，按一定的方向移动视野，以保证所数视野没有重复。

(4) **裂变碎片径迹的识别** 裂变碎片在JTSZ上产生的径迹蚀刻后形似竹叶；径迹的特点是形状基本统一，且有一定的深度。由于裂变碎片入射的角度不同，所以径迹有长有短。当垂直入射时，径迹呈一园斑，有一定的深度。通过微调焦距能够区分径迹与非径迹。图1给出一个视野的裂变碎片径迹。

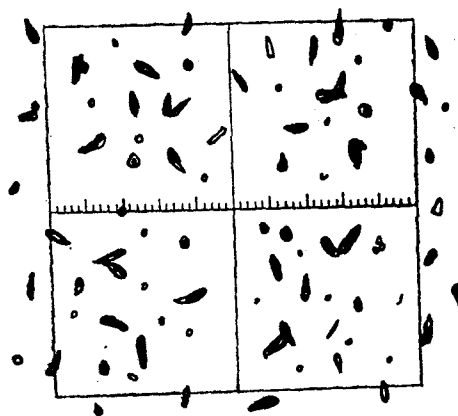


图1 显微镜下一个视野的裂变碎片的径迹
45×12倍放大；径迹密度 $1.6\times 10^6/\text{cm}^2$ 。

6. 照射安排

通过实验确定靶子的照射安排，以保证标准靶和样品靶受到相同通量的中子照射。据式(1)知道，中子注量率可直接由径迹密度反映出来，这样我们通过标准靶的径迹密度可看出中子注量率的变化。

实验了两种照射方式。一种是模拟标准靶和样品靶“背靠背”排列，让中子束依次通过浸有JTSZ的标准靶。结果发现径迹密度依次下降，三次实验结果平均值示于图2。这是由于聚乙烯及水层对中子的吸收和散射所致。第二种照射方式是靶子“肩并肩”排列受中子束照射。结果表明热中子注量率分布有一平台，示于图3。平台宽度可容放置10个靶管，图中标有虚线的区域为以后实验选用。图3中管号为11的浸有两片JTSZ。

由此我们确定了实验中样品受照位置。整个照射安排示于图4。标准靶和样品靶间隔排列，彼此挨紧，用胶布固定在铝框架上，放在重水反应堆6号水平孔道外。堆功率11MW，拉开石蜡门使样品受照，照射完毕，关闭石蜡门取出样品。启闭石蜡门费时不超过10s。

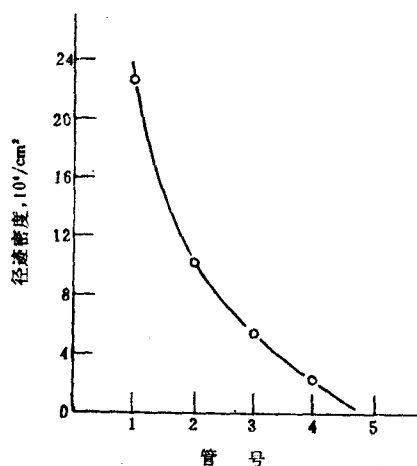


图2 径迹密度随照射位置的变化

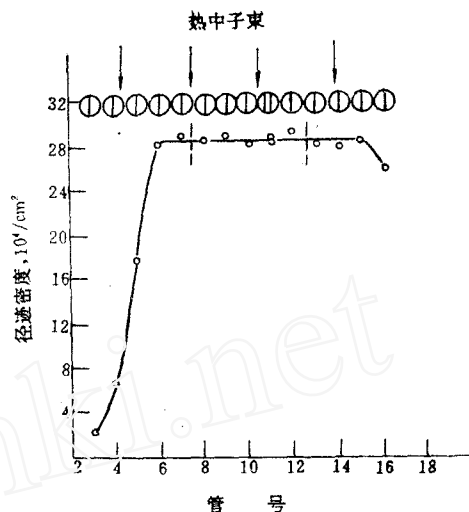


图3 热中子注量率径向分布

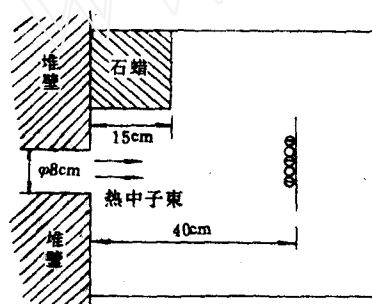


图4 热中子照射安排

7. 裂变产物的放化分离

我们所测定的裂变产物核素是 ^{91}Sr , ^{92}Sr , ^{99}Mo , ^{132}Te , ^{139}Ba , ^{140}Ba 。停照 10min 后取出样品, 剪开靶样管上端, 用吸管将溶液转移到锥形瓶中。瓶中含有 HCl , HNO_3 及已标定过的锶、钼、碲、钡载体溶液。煮沸半小时后, 从溶液中系统分离出 4 个元素。首先在 HCl -乙醚体系中以 $\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 形式分出钡, 然后从上清液中用二苯

硫脲-氯仿萃取碲。再从稍低浓度的 HCl 介质中以 α -安息香脒-乙酸乙酯萃取钼。在 NaOH 中和水相后, 用 Na_2CO_3 将锶沉淀出来。粗分出来的钡、碲、钼、锶, 应用经典的放化分析流程进行纯化^[7]。

8. 核素的放射性测量

将最后分出的 SrSO_4 , PbMoO_4 , Te , BaSO_4 沉淀, 均匀沉积在面积为 2cm^2 的已恒重的聚四氟乙烯测量盘中, 进行放射性计数, 并称量求出化学产额。

核素的 γ 放射性测量应用美国 Canberra 公司的 130cm^3 同轴 $\text{Ge}(\text{Li})$ γ 谱仪 SCORPIO-3000 多道计算机系统和北京综合仪器厂的 512 道低本底 $\text{NaI}(\text{Tl})$ γ 谱仪。 β 放射性测量应用美国 Canberra 公司的 2π 流气式正比计数器及北京综合仪器厂的 2π 塑料闪烁计数器。这些探测器的探测效率已经很好地被刻度过^[8, 9]。

三、结果和讨论

刻度 K_{wet} 的实验工作共进行了三轮, 每次照射两个样品靶, 两个标准靶。将实验所获取的数据代入式 (3), 得到 K_{wet} , 结果列入表 1。计算中应用的 6 个核素的核参数, 如半衰

期取自文献 [10], γ 分支比取自文献 [11]。 ^{235}U 热中子裂变产额取自文献 [10]。表1列出了按核素计算的 K_{wc} , 并给出各自的平均值和标准偏差。最终结果以加权平均求出(权重以偏差的平方倒数表示)为 $(8.52 \pm 0.05) \times 10^{-4} \text{cm}$, ^{91}Sr 的结果最高, 8.81, 而 ^{99}Mo 的数值低, 8.2。我们分析造成这种情况的原因是由于探测效率 e 值及 γ 射线分支比数据的系统误差所致。

表1 K_{wc} 刻度结果

靶号	铀量, mg	照射时间, min	径迹密度, cm^{-2}	按下列核素计算的 K_{wc} , 10^{-4}cm					
				^{91}Sr	^{92}Sr	^{99}Mo	^{132}Te	^{139}Ba	^{140}Ba
1	0.733	89.0	3.92×10^5	8.92	9.00	8.32	—	8.42	8.81
2	0.753	89.0	3.87×10^5	8.55	8.45	8.11	—	8.39	8.53
3	0.620	90.0	3.90×10^5	8.69	8.74	7.90	8.36	8.52	8.89
4	0.400	90.0	3.71×10^5	8.85	8.39	8.29	8.78	8.59	8.63
5	0.699	41.0	2.27×10^5	8.92	8.51	8.15	8.59	8.44	8.73
6	0.526	41.0	2.81×10^5	9.00	8.58	8.24	8.55	8.41	8.73
平均值				8.81	8.61	8.20	8.57	8.46	8.72
标准偏差				± 0.19	± 0.23	± 0.16	± 0.13	± 0.08	± 0.13

通过式(3)我们分析一下这种方法测量 K_{wc} 的准确度。径迹密度 T_d , 通过数记 1×10^4 以上的径迹, 误差 $\leq 1\%$; 铀靶质量 W , 稀铀溶液浓度 C , 误差均 $< 0.2\%$; 放射性计数 A_0 如计数累积超过 1×10^4 , 统计涨落 $\leq 1\%$; 探测效率 e , 应用 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合法标定, 误差 $\leq 2\%$; 化学产额 Y_c , 一般误差 $\leq 0.5\%$; 核素的裂变产额值 Y_f , 本文所选择的6个核素处于 ^{235}U 热中子裂变质量分布曲线的峰区, 它们的产额值已被仔细测量过, 并多次被编评, 取最新编评值, 其误差 $\leq 1\%$; 其它项如衰变常数 λ , 照射时间 t 的误差均可忽略。各项误差合起来, K_{wc} 总误差大约 2.7% 。

可以认为, 我们提出的刻度方法的准确度与文献 [6] 中的第一种方法相当, 但明显地优于第二种方法, 即金活化方法。这是因为我们通过6个核素测量的, 而金活化法只通过 ^{198}Au 一个核素。

为了检验利用裂变产物放射性刻度 K_{wc} 的可靠性, 我们应用一种比较准确的刻度方法与之比较。

J.G.Cunningham^[12]应用自发裂变源刻度了记录固体靶裂变径迹的SSTD的效率因数 K 。 ^{252}Cf 源的强度是应用小立体角测 α 发射率确定的。我们认为这种刻度方法环节少, 最直接, 所以比较准确。尤其是用于刻度 K_{wc} 就更方便, 因为只要将待刻度的SSTD浸入已知浓度的 ^{252}Cf 溶液“曝光”一段时间就可以了。关于这种方法的细节将在另一篇工作中报道^[13]。

利用 ^{252}Cf 溶液的自发裂变刻度了JTSZ的 K_{wc} , 结果为 $(8.60 \pm 0.04) \times 10^{-4} \text{cm}$, 精密密度 0.5% , 准确度好于 1.5% 。它和应用裂变产额刻度的值很好地相符, 这说明我们发展的刻度方法是可靠的。

参 考 文 献

- [1] Ramaswami, A. et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **41**, 1531 (1979) .
- [2] Ramaswami, A. et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **42**, 1213 (1980) .
- [3] Ramaswami, A. et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **43**, 3067 (1981) .
- [4] Ramaswami, A. et al., *Radiochim. Acta*, **30**, 11 (1982) .
- [5] Marathe, S.G. et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **40**, 1981 (1978) .
- [6] Iyer R.H. et al., *Nucl. Instr. Meth.*, **115**, 23 (1974) .
- [7] 郭景儒、黄浩新主编, 裂变产物分析, 原子能出版社, 北京, 1985年。
- [8] 唐培家、刘大明等, 低本底 γ 谱仪效率刻度, 中国原子能科学研究院内部资料, 1986年。
- [9] 张春华、王青等, 核技术, **10**, 33 (1986) .
- [10] Ihara, H. et al., JAERI-M 9715 (1981) .
- [11] Browne, E. and Firestone, R.B., *Table of Radioactive Isotopes*, John Wiley & Sons, New York, 1986.
- [12] Cuninghame, J.G. et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **36**, 1453 (1974) .
- [13] 王冬梅等, 应用 ^{252}Cf 溶液刻度固体径迹探测器记录裂变碎片的效率因子(待发表) .

CALIBRATION OF THE EFFICIENCY FACTOR FOR SSTD IMMERSSED IN URANIUM SOLUTION USING FISSION YIELD METHOD

WANG DUNGMEI ZHANG CHUNHUA
TANG PEIJIA LIU DAMING GUO JINGRU
WANG FANGDING

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

ABSTRACT

In the present work fission yield method is developed to calibrate the fission fragment registration efficiency factor of solid state track detector immersed in uranium solution. After measuring the activity of some fission product nuclides and the track density on the track detector, the efficiency factor, K_{we} , can be evaluated. It is based on the accuracy of thermal fission yield data of ^{235}U . The fission product nuclides to be measured are ^{91}Sr , ^{92}Sr , ^{90}Mo , ^{132}Te , ^{130}Ba and ^{140}Ba . The value of K_{we} for polycarbonate is measured to be $(8.52 \pm 0.05) \times 10^{-4} \text{cm}$ which is in very good agreement with the value calibrated with ^{252}Cf solution.

Key words Fission yield, Polycarbonate, Track density, Efficiency factor.