

放化法测定²⁵²Cf自发裂变产物的绝对产额

陈庆江 苏树新 杨景霞 陈云东 李学良
张红娣 林发 孙淑英 张淑兰 郭景儒

(中国原子能科学研究院, 北京)

本文用放化法测定²⁵²Cf自发裂变产物35个质量链的绝对产额。研究了²⁵²Cf自发裂变产物的质量-产额分布曲线。其轻峰平均质量数为 106.39 ± 0.08 ；重峰为 141.82 ± 0.09 ；平均释放中子数 $\nu = 3.79 \pm 0.12$ 。轻、重峰高度1/10处的宽度分别为26.7和26.8个质量单位，峰谷比 ≥ 370 。实验结果与文献作了比较。

关键词 放化法, ²⁵²Cf, 自发裂变, 裂变产额。

引言

²⁵²Cf是一个重要的裂变核，在低能裂变过程的研究中占有特殊的地位。许多作者用放化法^[1-6]测定了²⁵²Cf自发裂变产物的质量分布。

首先，L. E. Glendenn和E. P. Steinberg^[1]报道了用放化法测定²⁵²Cf自发裂变产物的产额，随后J. G. Cumingham^[2]也用放化法测定其产额，然而他们所用的²⁵²Cf源强度很弱，以致于产额小于1%的核不能测量。后来，W. E. Nervik^[3]用高强度的²⁵²Cf源(7×10^7 裂变/分)进行广泛的研究，并测定低产额到 $\sim 2 \times 10^{-3}\%$ ；K. E. Flyun^[6]等对²⁵²Cf自发裂变产物的质量分布曲线进行了详尽的研究，并给出各核素产额的推荐值。

上述各家测定的产额除了少数几个核素是绝对产额外，大多数产额是相对产额，而且某些核素的产额值差异比较大。例如，¹³²Te为1.75%^[3]、2.4%^[4]、1.83%^[5]、2.17%^[6]，最大差值 $\sim 25\%$ 。又如，¹⁰⁹Pd的产额值各家报道的值差异也很大。为此，我们进一步测量了²⁵²Cf自发裂变产物的产额及其质量分布曲线。本文用一个已知裂变率的²⁵²Cf源，用铝片捕集裂变产物，然后将铝片溶解，经放化分离纯化，测得绝对产额，给出了质量-产额分布曲线。

实验

1. ²⁵²Cf源及裂变产物的捕集

将²⁵²Cf配制成2 N HNO₃溶液，用铂做衬底，在电镀槽中加入10毫升二次蒸馏水，4滴0.1 N HNO₃，再加入10微升²⁵²Cf溶液，在电压为100 V，电流10 mA下电镀30 min制得²⁵²Cf源，其源斑直径为6 mm。

为了防止 ^{252}Cf 原子从源的表面上扩散出来, 我们用下述方法处理 ^{252}Cf 源的表面。取 0.06% (W/V) VYNS (聚氯乙烯醋酸乙烯酯共聚物) 的 1,2-二氯乙烷溶液大约 $20\mu\text{l}$ 于 ^{252}Cf 源的表面, 待二氯乙烷挥发后, 在源的表面凝固着约 12 微克牢固紧密的 VYNS 薄层, 通过实验证明这一薄层能阻止 ^{252}Cf 原子扩散, 又不妨碍裂变碎片的飞出。

应用厚 0.2 mm, 直径为 22 mm 的铝片作为捕集片。捕集片距 ^{252}Cf 源的表面距离为 5 mm。

^{252}Cf 源的装置, 裂变率的测定以及捕集片收集效率的测定详见文献[7]。测得的 ^{252}Cf 源的裂变率为 12258.4 cps (参考时间 1980 年 7 月 24 日)。

2. 放化程序

将捕集片溶解在含有载体的酸性溶液中, 使其同位素交换达到平衡。用一般的放化标准程序, 或者加以改进了的放化程序对待测裂变产物进行分离纯化, 然后制成合适的测量源, 求得化学回收率。在已知 (γ 、 β) 探测效率的仪器上测定源的放射性强度。由下式求得 ^{252}Cf 自发裂变产物某一核素的裂变产额 Y :

$$Y = \frac{A}{Y_c \cdot \epsilon \cdot N_s (1 - e^{-\lambda T})} \quad (1)$$

式中: Y_c 为化学回收率; ϵ 为仪器测量效率; N_s 为 ^{252}Cf 源的自发裂变率; λ 为核的衰变常数; A 为停止捕集时刻的放射性计数率; T 为捕集时间。

3. 放射性测量及效率刻度

本工作应用两台低本底 β 测量装置, 一台为 2π 流气式正比计数器, 另一台为塑料闪烁计数器。本底大约为 1—2 cpm, 探测效率用 $4\pi\beta$ - γ 符合计数器标定过的放射性核素溶液进行刻度。

在产额测定中有许多核素很难直接刻度 γ 射线的探测效率, 为了扩大测定核素的范围, 我们对 NaI(Tl) 井型晶体制作出一 γ 能量-探测效率曲线。

能谱的拟合公式如下:

$$P_{\text{全}} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \cdot e^{-\frac{(x-a)^2}{2\sigma^2}}$$

$$P_{\text{康}} = K(a)x^b + K'(a)x$$

P 为计数效率; x 为单道阈值电压 (V); a 为全能峰最高处阈值 (V)。

公式中的参数和函数关系通过对一系列单能核素的能谱测量来确定。实验测得的谱与拟合的谱基本相符合。

本文中的 ^{92}Sr 、 ^{105}Ru 、 ^{112}Pd 、 ^{113}Ag 、 ^{115}eCd 、 ^{117}Cd 、 ^{127}Sb 、 ^{129}Sb 、 ^{131}I 、 ^{133}I 、 ^{135}I 、 ^{139}Ba 、 ^{156}Eu 的探测效率均是由 γ 能量-效率曲线求得的。其它核素的 γ 或 β 探测效率均由直接刻度得到的。

结果和讨论

我们测定的 ^{252}Cf 自发裂变产物的绝对产额值及文献值均列于表 1 中, 其中 ^{113}eAg 的

产额值按衰变链校正^[8]后得到 113 链产额；^{121g}Sn 及 ^{125g}Sn 的产额值校正该核素产额与总链产额的比率^[6]后得到 121 及 125 链产额；¹³⁴Te 和 ¹³⁵I 的产额值除以累积产额分数^[9]后得到 134 和 135 链的产额值。

所给各核素产额值的误差由式(1)中各个直接测量数值的误差传递而来，采用 J. W. Müller^[10]建议的用总不确定度来表述测量值的精密度(或准确度)。直接测定了式(1)中的仪器效率 ϵ ，化学回收率 Y_c 和裂变率 N_f ，以及 A 的数值。而每个测量数值的不确定度，包含着由重复测量导出的不确定度和由估计方法(随机估计)确定的不确定度。分别用 σ_ϵ (2—12%)， σ_{Y_c} (1—2%)， σ_{N_f} (1—2%)， σ_A (1—15%) 来代表，而产额数据的标准偏差用 σ_{π} (0.1—4.5%) 表示，用 $2\sigma_{\pi}$ 表示 95% 的置信度，表中各核素产额值的总不确定度由 $\pm\sqrt{\sigma_\epsilon^2 + \sigma_{Y_c}^2 + \sigma_{N_f}^2 + \sigma_A^2 + (2\sigma_{\pi})^2}$ 计算出来。

轻、重峰高度处 1/10 处的宽度分别为 26.7 和 26.8 个质量单位。轻峰的峰谷比等于 407；重峰的峰谷比为 370；所以给出的峰谷比 ≥ 370 ，这与 K. F. Flyun^[6]等给出的峰谷比相一致。

实验测得轻峰产额值之和为 49.39%；重峰之和为 51.58%。从实验点描绘的双峰曲线(图 1)内插求得未经测量的产额值，其轻峰之和为 48.54%；重峰之和为 49.39%。实验测定的与内插的产额值之和为：轻峰 98.43%；重峰 100.97%；总和为 199.4%；与理论值 200% 接近。

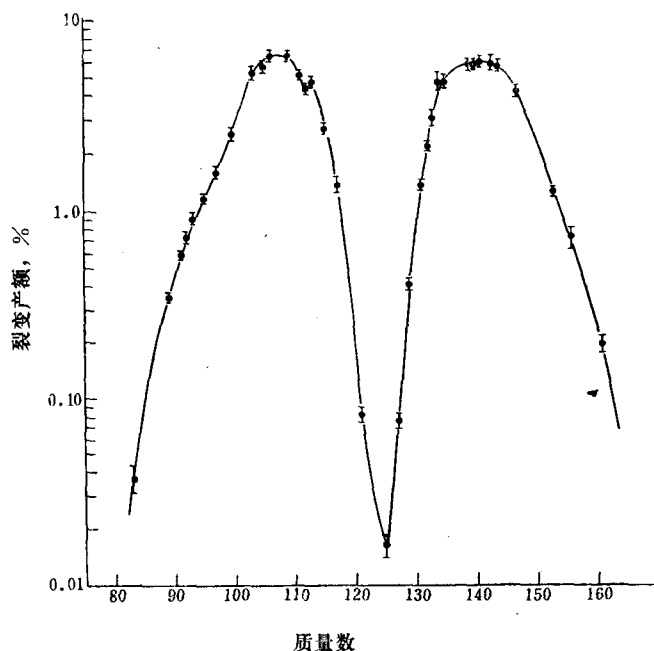


图 1 ²⁵²Cf 自发裂变产物质量-产额曲线

平均质量数 \bar{A} 可用下式表示：

$$\bar{A} = \frac{\sum A_i Y_i}{\sum Y_i} \quad (2)$$

式中 A_i 为核的质量数， Y_i 为 i 核的产额。由双峰曲线上查得相应的 A_i 和 Y_i 值代入式(2)中计算出轻峰平均质量数为 106.39 ± 0.08 ；重峰为 141.82 ± 0.09 。其误差由各个核素

表 1 ^{252}Cf 自发裂变变产物的产额值

裂变产物	本工作	[3]	[4]	[5]	[6]
^{82}Br	0.037 ± 0.006	0.0214			0.040
^{80}Sr	0.347 ± 0.016	0.32			0.366
^{81}Sr	0.582 ± 0.026				0.58
^{82}Sr	0.725 ± 0.046			0.70	
^{83}Y	0.931 ± 0.058	0.83		1.00	0.67
^{85}Zr	1.15 ± 0.04	1.37	1.2	1.33	1.24
^{87}Zr	1.57 ± 0.05	1.54	1.8	1.64	1.81
^{90}Mo	2.52 ± 0.09	2.57	2.7	2.76	2.48
^{103}Ru	5.18 ± 0.21		4.8	5.67	4.62
^{105}Ru	5.70 ± 0.37				5.53
^{106}Ru	6.51 ± 0.29	5.99		5.98	5.75
^{109}Pd	6.48 ± 0.32	5.69		7.65	5.60
^{111}Ag	5.08 ± 0.21	5.19		5.11	5.04
^{112}Pd	4.27 ± 0.29	3.65		3.81	4.21
^{113}Ag	4.23 ± 0.30	4.23		2.99	
113 链	4.70 ± 0.53				
^{115}Cd	2.49 ± 0.12				2.08
$^{115\text{m}}\text{Cd}$	0.165 ± 0.019				0.246
115 链	2.65 ± 0.14				2.326
^{117}Cd	1.36 ± 0.12				
^{121}Sn	0.0713 ± 0.007				0.0847
121 链	0.0814 ± 0.007				0.0974
^{125}Sn	0.00760 ± 0.0011	0.0093			0.0078
125 链	0.0160 ± 0.0023				0.0164
^{127}Sb	0.0748 ± 0.0055	0.130		0.110	0.072
^{129}Sb	0.402 ± 0.027	0.615			0.317
^{131}I	1.35 ± 0.09	1.27	1.8	1.2	1.64
^{132}Te	2.15 ± 0.09	1.75	2.4	1.83	2.17
^{133}I	3.02 ± 0.29	2.77	3.9	3.28	3.03
^{134}Te	3.70 ± 0.37				
134 链	4.68 ± 0.47				4.44
^{135}I	4.55 ± 0.39				
135 链	4.68 ± 0.40		4.96		3.86
^{139}Ba	5.66 ± 0.34	5.73	5.7	6.24	5.75
^{140}Ba	5.77 ± 0.20	6.32	5.81	6.47	5.50
^{141}Ce	5.97 ± 0.29	5.9	5.8	6.39	6.08
^{143}Pr	5.86 ± 0.55			6.93	
^{144}Ce	5.70 ± 0.35		5.7	6.25	5.98
^{147}Nd	4.14 ± 0.16	4.69	4.5	4.4	3.99
^{153}Sm	1.23 ± 0.05	1.41		1.29	1.33
^{156}Eu	0.70 ± 0.09	0.703		0.68	
^{161}Tb	0.19 ± 0.02	0.15		0.20	0.21

产额值的误差传递而来。

平均释放中子数可由所得之轻、重峰平均质量数得到, 即 $\bar{\nu} = 252 - (106.9 + 141.82) = 3.79 \pm 0.12$, 这与孟江辰^[11]的测量编评值 3.732 ± 0.008 相接近。

曲线在质量数 112—115 之间出现一个精细结构峰, 这与 W. E. Nervi^[3] 发现的现象相似。

由表 1 可以看出我们测定的结果在实验误差范围内与各家文献值基本上一致。

¹⁰⁹Pd、¹¹²Pd 的产额值各家所给值相差很大, 我们使用标准放化程序^[12], 分离纯化后测得的产额值波动很大, 这可能是钚的同位素交换不完全引起的。²⁵²Cf 裂变成钚的碎片时, 它在捕集片里呈什么状态, 是离子状态还是钚的金属原子状态尚不清楚。钚金属是一种难溶解的物质, 只有在王水中缓慢地溶解, 如果裂变碎片钚是金属原子状态, 用 3 NHCl 加几滴浓 HNO₃ 溶解捕集片时, 放射性的钚原子不溶解, 不能与溶液中的载体钚离子之间达到同位素交换平衡。为此, 我们在迴流装置下, 用王水溶解捕集片, 沸腾下迴流三小时, 再用文献^[12]的程序分离纯化, 测得的 ¹⁰⁹Pd、¹¹²Pd 的产额数值增大并且重复性明显地提高了。用王水迴流和不用王水迴流测得的 ¹⁰⁹Pd、¹¹²Pd 的产额值相比较示于表 2。

表 2 不同处理条件对钚产额值的影响

实 验 条 件	¹⁰⁹ Pd 产 额, %	¹¹² Pd 产 额, %
6NHCl 加几滴浓 HNO ₃ 溶解捕集片	4.43	2.18
	1.77	1.34
用王水溶解捕集片, 然后沸腾下迴流三小时	6.54	4.43
	6.48	4.28
	6.41	4.10

从表 2 中可以看出, 加王水迴流处理后可以促使钚的同位素之间交换达到完全。

本工作得到严叔衡、李泽、刘从贵、刘永辉、庄人杰、居崇华、樊芝草、朱荣保、唐培家、王青、鞠长新等同志的帮助, 作者向他们表示感谢。

参 考 文 献

- [1] Glendenin, L. E. et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 1,45(1955).
- [2] Cuminghame, J. G., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 6,181(1958).
- [3] Nerivik, W. E., *Phys. Rev.*, 119,1685(1960).
- [4] Harbour, R. M. et al., *Radiochim. Acta*, 15,146(1971).
- [5] Сковородкин, Н. В. и др., *Атомная Энергия*, 34,365(1973).
- [6] Flyun, K. F. et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 37,881(1975).
- [7] 李泽等, 原子核物理, 5(3),226(1983).
- [8] Varteressian, K. A. et al., ANL-7678(1970).
- [9] Manohar, S. B., *Phys. Rev. C.*, 17,188(1978).
- [10] Muller, J. W., *Nucl. Instrum. Method*, 163,241(1979).
- [11] 孟江辰, Hsj-77044, 原子能科学研究院内部资料, (1977).
- [12] Kleinberg, J. et al., LA-1566(1953).

(编辑部收到日期: 1984 年 2 月 15 日)

**THE ABSOLUTE DETERMINATION
OF THE SPONTANEOUS FISSION
YIELD OF ^{252}Cf BY RADIOCHEMICAL
METHOD**

CHEN QINGJIANG SU SHUXIN YANG JINGXIA
CHEN YUNDONG LI XUELIANG ZHANG HONGDI
LIN FA SUN SHUYING
ZHANG SHULAN GUO JINGRU

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

ABSTRACT

The mass distribution in the spontaneous fission of ^{252}Cf was investigated by the radiochemical determination of the absolute fission yield for 35 mass chains. An integration of the mass-yield curve gives a value of 199.4% which is in very good agreement with the value of 200% in fission. The mean masses of the light and heavy groups are located at 106.39 and 141.82 respectively. The average neutron number per fission ($\bar{\nu}$) is 3.79 ± 0.12 . The peak-to valley ratio is ≥ 370 . The results obtained in this work is compared with those in literature.

Key words Radiochemical method, ^{252}Cf , Spontaneous fission yield.