

# 用活化法比較 Pu<sup>239</sup> 和 U<sup>235</sup> 的裂变中子能譜

胡选文 梅启庸 刘天柱

本文利用一組有關能的核反应:  $P^{31}(n,p)Si^{31}$ ,  $Al^{27}(n,p)Mg^{27}$ ,  $Si^{28}(n,p)Al^{28}$ ,  $Al^{27}(n,\alpha)Na^{24}$ , 用活化法对热中子引起的 Pu<sup>239</sup> 和 U<sup>235</sup> 的裂变中子能譜进行了测量。进一步肯定了 Pu<sup>239</sup> 的裂变中子能譜比 U<sup>235</sup> 的“硬”的結論。若取 U<sup>235</sup> 裂变中子平均能量  $\bar{E}_{U^{235}} = 1.94 \pm 0.05$  兆电子伏作为标准,并且以  $E^{1/2}e^{-\beta E}$  形式的麦克斯韦分布表示裂变中子能譜,則测得  $\bar{E}_{Pu^{239}} = 2.015 \pm 0.030$  兆电子伏或  $\beta_{Pu^{239}} = 0.7443 \pm 0.0110$ , 亦即  $\bar{E}_{Pu^{239}}/\bar{E}_{U^{235}} = 1.038 \pm 0.009$ 。

## 一、引 言

对于热中子引起的 U<sup>235</sup> 和 Pu<sup>239</sup> 的裂变中子能譜已有許多作者进行了测量<sup>[1-9]</sup>。测量的結果表明, 裂变中子能譜可以近似地以只含一个参数的麦克斯韦分布  $\phi(E) \propto E^{1/2}e^{-\beta E}$  来表示。 $\beta = \frac{3}{2\bar{E}}$ ,  $\bar{E}$  为中子平均能量。但是各作者所测得的参数数值却有明显的不同。各文献的  $\bar{E}_{Pu^{239}}$  和  $\bar{E}_{U^{235}}$  以及  $\bar{E}_{Pu^{239}}/\bar{E}_{U^{235}}$  值整理在表 1 中。

表 1  $\bar{E}_{Pu^{239}}$  和  $\bar{E}_{U^{235}}$  的测量結果比較

作 者	文 献	方 法	$\bar{E}_{Pu^{239}}$ , 兆电子伏	$\bar{E}_{U^{235}}$ , 兆电子伏	$\bar{E}_{Pu^{239}}/\bar{E}_{U^{235}}$
尼尔逊(Nereson)	[1][2] (1952)	乳胶法	2.275 ± 0.04	2.055 ± 0.04	1.107 ± 0.03
尼尔逊等	[3] (1956)	乳胶法		1.952 ± 0.013	
格兰伯格(Granberg)等	同 上	飞行時間法		1.916 ± 0.04	
瓦特(Watt)	[4] (1952)	正比管法		1.854 ± 0.01	
穆欣(Мухин)	[5] (1951)	乳胶法	1.87 ± 0.05	1.91 ± 0.04	0.979 ± 0.033
科瓦洛夫(Ковалов)	[6] (1957)	活化法和裂变室法	2.02 ± 0.02*		1.041 ± 0.01
格伦德耳(Grundl)等	[7] (1956)	活化法	2.01 ± 0.02*		1.036 ± 0.01
比美(Beets)等	[8] (1962)	乳胶法		1.80 ± 0.15	
萧振喜等	[9] (1962)	乳胶法	1.989 ± 0.024	1.867 ± 0.015	1.065 ± 0.021

\* 文献[6]和[7]测得的是  $(\bar{E}_{Pu^{239}} - \bar{E}_{U^{235}})$ , 以特勒耳(Terrell)<sup>[10]</sup>按文献[1,5]中的  $\bar{E}_{U^{235}}$  計算的加权平均值  $\bar{E}_{U^{235}} = 1.94 \pm 0.05$  作为标准值,即得到  $\bar{E}_{Pu^{239}}$  和  $\bar{E}_{Pu^{239}}/\bar{E}_{U^{235}}$ 。

由表 1 可見, 不仅各个作者测得的平均能量的绝对值不符合, 而且相对的平均能量比值  $\bar{E}_{Pu^{239}}/\bar{E}_{U^{235}}$  也符合得不好。因此还需要作进一步的测量。

我們在前一篇文章<sup>[11]</sup>中已詳細地說明了用活化法测量快中子能譜的原理和方法, 对于可以用单参数表示的裂变中子能譜, 用“单参数測定法”来确定其  $\beta$  (或  $\bar{E}$ ) 是比較簡便和精确的。

在工作中, 根据已知的截面能量关系曲綫  $\sigma(E)$  和  $\frac{2\beta^{3/2}}{\pi^{1/2}} E^{1/2}e^{-\beta E}$  的能譜形式, 我們首先計算出了能譜指标比随  $\beta$  变化的关系曲綫(图 1):

$$\frac{s_{12}(\beta)}{s_{12}(\beta_0)} = \left(\frac{\bar{\sigma}_1}{\bar{\sigma}_2}\right)_\beta : \left(\frac{\bar{\sigma}_1}{\bar{\sigma}_2}\right)_{\beta_0} = \left(\frac{\bar{\sigma}_2}{\bar{\sigma}_1}\right)_{\beta_0} \frac{\int_{E_{T_1}}^{\infty} \sigma_1(E) E^{1/2} e^{-\beta E} dE}{\int_{E_{T_1}}^{\infty} \sigma_2(E) E^{1/2} e^{-\beta E} dE}$$

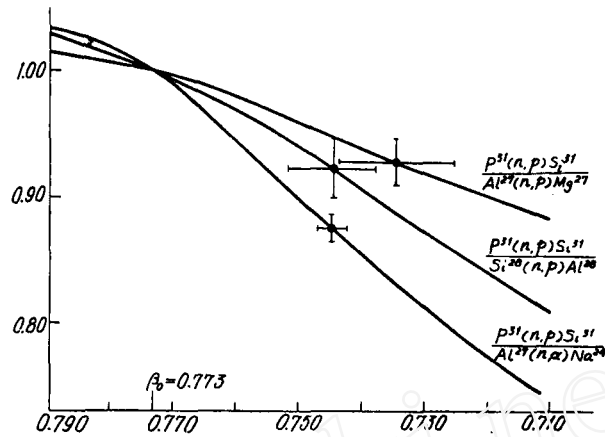


图 1 能譜指标之比与能譜参数  $\beta$  的关系曲线  
 ◆---实验值.

(此处  $\beta_0 = 0.773$  是  $\text{U}^{235}$  裂变中子譜的参数  $\beta$  值,它是文献[1—5]的实验值的加权平均值.)然后用从实验测出的同样的值与曲线相比较的方法,定出了  $\text{Pu}^{239}$  裂变中子譜的参数  $\beta_{\text{Pu}^{239}}$  值.为了正确地得到  $\beta_{\text{Pu}^{239}}$ ,同时也是为了检验一下  $\text{Pu}^{239}$  裂变中子譜是否真正服从单参数的麦克斯韦分布,我們选用了四个独立的活化反应,分別用它們定出了  $\text{Pu}^{239}$  裂变譜的  $\beta_{\text{Pu}^{239}}$ . 测定的結果表明,  $\text{Pu}^{239}$  裂变中子譜是可以用来描述,至少在 1 兆电子伏以上是这样. 下面介紹我們的实验方法和实验結果.

## 二、实验方法和結果

由文献[11]中我們已經知道,在同一条件下受中子照射的两个指示箔的饱和計数率比是

$$R_{12} = \frac{A'_{01}}{A'_{02}} = \frac{\epsilon_1 N_1 \bar{\sigma}_1}{\epsilon_2 N_2 \bar{\sigma}_2}$$

因此,如果我們将这些指示箔分別用  $\text{Pu}^{239}$  和  $\text{U}^{235}$  的裂变中子照射,我們就可以得到  $R_{12}(\text{Pu}^{239})$  和  $R_{12}(\text{U}^{235})$ ,而它們的比值

$$\frac{R_{12}(\text{Pu}^{239})}{R_{12}(\text{U}^{235})} = \left(\frac{\bar{\sigma}_1}{\bar{\sigma}_2}\right)_{\text{Pu}^{239}} / \left(\frac{\bar{\sigma}_1}{\bar{\sigma}_2}\right)_{\text{U}^{235}}$$

正好等于两种裂变能譜的能譜指标之比,可以直接与算得的曲线相比较. 由此可见,为了确定未知譜参数  $\beta$ ,我們只需测出二个活化反应在  $\text{Pu}^{239}$  裂变譜和  $\text{U}^{235}$  裂变譜上的饱和計数率的相对比就行了.

我們的实验装置包括两个裂变中子源、一组指示箔、照射设备和  $\beta$  計数装置.

裂变中子源是安置在热中子反应堆水平孔道內的  $\text{Pu}^{239}$  和  $\text{U}^{235}$  轉換靶. 水平孔道的大小为  $40 \times 40$  厘米<sup>2</sup>,轉換靶安置在經過准直的中子束上,估計裂变中子照射到指示箔上的强度为  $10^8$  中子/厘米<sup>2</sup>·秒. 預先的检验表明,在 1 兆电子伏以上,周围物质散射中子的贡献可以忽略不計.

根据具有合适的反应阈能、完整的截面能量曲线、适当的半衰期、竞争活化可分开、杂质少、坚固耐用等方面的考虑,我們选用三种指示箔,共四种核反应. 它們是  $\text{P}^{31}(n, p)\text{Si}^{31}$ ,  $\text{Al}^{27}(n, p)\text{Mg}^{27}$ ,  $\text{Si}^{28}(n, p)\text{Al}^{28}$ ,  $\text{Al}^{27}(n, \alpha)\text{Na}^{24}$ , 測量核反应物的放射性. 指示箔均为  $\phi 30 \times 3$  毫米的圓片,其性質見表 2.

表2 指示箔性质

核反应	同位素丰度, %	反应产物半衰期	理论阈能 $E_T$ , 兆电子伏	指示箔材料	竞争活化
$P^{31}(n,p)Si^{31}$	100	2.62小时	0.72	磷酸氢二铵和纯石蜡混合	可忽略
$Al^{27}(n,p)Mg^{27}$	100	9.5分	1.9	金属铝	2.3分的 $Al^{27}(n,\gamma)Al^{28}$ , 1.5小时的 $Al^{27}(n,\alpha)Na^{24}$
$Si^{30}(n,p)Al^{30}$	92.3	2.3分	4.01	石英晶体	2.62小时的 $Si^{30}(n,\gamma)Si^{31}$ , 6.6分的 $Si^{30}(n,p)Al^{30}$
$Al^{27}(n,\alpha)Na^{24}$	100	15小时	3.27	金属铝	2.3分的 $Al^{27}(n,\gamma)Al^{28}$ , 9.5分的 $Al^{27}(n,p)Mg^{27}$

指示箔受中子照射时装置在一个铝质圆盘上,各指示箔距圆盘中心等距离,圆盘的面垂直于中子入射方向并绕其中心轴旋转。这样便保证了各指示箔受同样通量的中子照射。整个圆盘外面包有锡片以屏蔽热中子。

中子照射二小时后即取出测量其 $\beta$ 放射性。Al指示箔在停止照射后25分钟才开始测量,此时2.3分的 $Al^{27}(n,\gamma)Al^{28}$ 的放射性已衰变得可忽略不计了。

$\beta$ 计数装置包括钟罩形盖革 $\beta$ 计数管、高压稳压电源和定标器,测量时特别注意了计数装置长时期工作的稳定性,并用 $U_3O_8$ 作成的标准 $\beta$ 源检验其稳定性。数据经 $\chi^2$ 测试表明,在约为0.5%的计数统计涨落的误差范围内,计数装置的长时间稳定性是满意的。

对每个指示箔测量了衰变曲线,计数率经本底、死时间等修正。从实验测量得的计数率用最小二乘法处理,并利用已知的衰变常数 $\lambda$ 求出了饱和计数率 $A_0$ 。 $P^{31}(n,p)Si^{31}$ 的数据按单一成分衰变的情况处理; $Al^{27}$ 的两个反应产物的 $\lambda_1, \lambda_2$ 差别很大,能方便地将它们从衰变曲线上分开,故也按单一成分处理。 $Si^{30}(n,p)Al^{30}$ 两个反应产物的 $\lambda$ 值差别不大,按二个成分的混合衰变用最小二乘法处理。

根据以上方法,我们分别在 $Pu^{239}$ 和 $U^{235}$ 裂变中子源上进行了多次重复的照射和测量。现将用这些源测得的各指示箔的饱和计数率比分别列在表3和表4中。

表3 用 $U^{235}$ 裂变中子源照射后测得的各样品的饱和计数之比

次数	$R_{13}$	$\frac{P^{31}(n,p)Si^{31}}{Al^{27}(n,p)Mg^{27}}$	$\frac{P^{31}(n,p)Si^{31}}{Al^{27}(n,\alpha)Na^{24}}$	$\frac{P^{31}(n,p)Si^{31}}{Si^{30}(n,p)Al^{30}}$	$\frac{Al^{27}(n,p)Mg^{27}}{Al^{27}(n,\alpha)Na^{24}}$
1		0.786±0.012	5.11±0.04	0.673±0.008	6.50±0.06
2		0.806±0.012	5.23±0.04	0.666±0.008	6.49±0.06
3		0.805±0.012	5.26±0.04	0.711±0.008	6.52±0.06
4		0.800±0.012	5.19±0.04	0.686±0.008	6.48±0.06
5		0.804±0.012	5.16±0.04	0.720±0.008	6.41±0.06
6		0.799±0.012	5.26±0.04	0.742±0.008	6.55±0.06
平均值		0.800±0.005	5.20±0.02*	0.700±0.012*	6.49±0.02

由表3和表4可以看出,每一个中子源上测得的各指示箔间饱和计数率的比值,在多次重复测量中是相近的。而且,尽管表3中的P/Si比值和表4中的数据分别由于硅的反应产物的半衰期太短(2.3分),容易受中子通量涨落和时间误差的影响,以及在用 $Pu^{239}$ 裂变中子照射时指示箔受到了一定程度的放射性沾污而引进的误差较大,但在二个源上测得的各指示箔的饱和计数率的相对比的平均值还是在误差范围之外被明显地分开了。

根据表3和表4最后算得能谱指标比,得表5。

将这些数据与图1中各相应的计算曲线相比,分别得到了 $Pu^{239}$ 裂变中子谱的参数 $\beta$ 为:

表 4 用 Pu<sup>239</sup> 裂变中子照射后测得的各种样品的饱和计数率之比

次数	$R'_i$	$\frac{P^{81}(n,p)Si^{81}}{Al^{27}(n,p)Mg^{27}}$	$\frac{P^{81}(n,p)Si^{81}}{Al^{27}(n,\alpha)Na^{24}}$	$\frac{P^{81}(n,p)Si^{81}}{Si^{30}(n,p)Al^{28}}$	$\frac{Al^{27}(n,p)Mg^{27}}{Al^{27}(n,\alpha)Na^{24}}$
1		0.754±0.030	4.69±0.03	0.642±0.011	6.21±0.37
2		0.724±0.029	4.57±0.03	0.612±0.010	6.31±0.38
3		0.769±0.031	4.67±0.03	0.633±0.011	6.08±0.36
4		0.701±0.028	4.39±0.03	0.652±0.011	6.25±0.38
5		0.752±0.030	4.52±0.03	—	6.00±0.36
6		0.753±0.030	4.48±0.03	0.689±0.012	5.96±0.36
平均值		0.742±0.013	4.55±0.05*	0.646±0.013*	6.14±0.17

\*表 3 和表 4 中的誤差均按文献 [11] 中的(33)和(35)式算得,它包括了計数統計涨落和計数裝置不穩定等所引进的誤差. 六次实验的平均值的誤差  $\sigma$  按下列两个公式計算:

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{\sum (\frac{1}{\sigma_i})^2}}; \quad \sigma' = \sqrt{\frac{\sum (\frac{1}{\sigma_i})^2 v_i^2}{(n-1)\sum (\frac{1}{\sigma_i})^2}}$$

其中  $v_i$  为各次測量值与平均值的殘差. 当  $\sigma' > \sigma$  时表明由于中子照射測量等条件控制不严而引进了額外誤差, 此时即以  $\sigma'$  表示平均值的誤差(標 \* 号的); 当  $\sigma \geq \sigma'$  时即以  $\sigma$  表示.

表 5 Pu<sup>239</sup> 裂变譜与 U<sup>235</sup> 裂变譜的能譜指标比

$\frac{S_{Pu^{239}}}{S_{U^{235}}} \left( \frac{P^{81}(n,p)Si^{81}}{Al^{27}(n,p)Mg^{27}} \right)$	$\frac{S_{Pu^{239}}}{S_{U^{235}}} \left( \frac{P^{81}(n,p)Si^{81}}{Al^{27}(n,\alpha)Na^{24}} \right)$	$\frac{S_{Pu^{239}}}{S_{U^{235}}} \left( \frac{P^{81}(n,p)Si^{81}}{Si^{30}(n,p)Al^{28}} \right)$
0.928±0.018	0.875±0.010	0.923±0.028

$\beta_1 = 0.7448 \pm 0.0024$ ,  $\beta_2 = 0.7448 \pm 0.0070$ ,  $\beta_3 = 0.7345 \pm 0.0096$ . 显然, 这些数据相互間在誤差范围之內是符合的. 将上列三个  $\beta$  值加权平均, 并考虑到作为比較标准的 U<sup>235</sup> 的裂变中子平均能量有一定的誤差,  $\bar{E}_{U^{235}} = 1.94 \pm 0.05$  (兆电子伏), 最后得到

$$\beta_{Pu^{239}} = 0.7443 \pm 0.0110 \text{ (兆电子伏}^{-1}\text{)}, \text{ 相当于 } \bar{E}_{Pu^{239}} = 2.015 \pm 0.030 \text{ (兆电子伏)}.$$

### 三、結 論

1. 实验結果証明, Pu<sup>239</sup> 裂变中子的能量分布在 1 兆电子伏以上服从单参数表征的麦克斯韦分布  $\sim E^{1/2} e^{-\beta E}$ , 并且,  $\beta_{Pu^{239}} = 0.7443 \pm 0.0110$  (兆电子伏<sup>-1</sup>).

2. 若取 U<sup>235</sup> 裂变中子平均能量  $\bar{E}_{U^{235}} = 1.94 \pm 0.05$  (兆电子伏), 則  $\bar{E}_{Pu^{239}} = 2.015 \pm 0.030$  (兆电子伏), 并且  $\bar{E}_{Pu^{239}}/\bar{E}_{U^{235}} = 1.038 \pm 0.009$ , 这进一步肯定了 Pu<sup>239</sup> 裂变譜比 U<sup>235</sup> 裂变譜“硬”的結論.

3. 本工作与文献 [6,7] 中用类似方法測得的結果很好地符合, 与文献 [12] 用同样方法測得的快中子反应堆活性区能譜的高能部分的結果也相符合, 与文献 [10] 所总结的世界平均值  $\bar{E}_{Pu^{239}} = 2.00 \pm 0.05$  (兆电子伏) 及  $\bar{E}_{Pu^{239}}/\bar{E}_{U^{235}} = 1.03 \pm 0.04$  也是很符合的.

本工作是在何泽慧先生的指导下完成的, 对于她的关心和宝貴的意見, 我們表示衷心的感謝. 在工作过程中, 孙汉城、胡仁宇、黃胜年等同志也提供了有益的意見; 开始阶段叶宗垣同志参加了部分工作; 中国科学院原子能研究所負責反应堆运行的工作同志提供了稳定的工作条件, 作者在此一并致謝.

## 参 考 文 献

- [1] N. Nereson, *Phys. Rev.*, **85**, 600 (1952).  
[2] N. Nereson, *Phys. Rev.*, **88**, 823 (1952).  
[3] L. Granberg, G. Frye, N. Nereson, & L. Rosen, *Phys. Rev.*, **103**, 662 (1956).  
[4] B. E. Watt, *Phys. Rev.*, **87**, 1037 (1952).  
[5] К. Н. Мухин, 原子核裂变物理, 科学出版社, 1958, 66页.  
[6] В. П. Ковалев, В. Н. Анбреев, М. Н. Николаев и А. Г. Гусейнов, *ЖЭТФ*, **33**, 1069 (1957).  
[7] J. Grundl, J. R. Neuer, *Bull. Amer. Phys. Soc., Ser., II*, **1**, 95 (1956).  
[8] C. Beets, H. Deckers, *Nucl. Phys.*, **30**, 232 (1962).  
[9] 萧振喜、叶宗垣、张应、黄胜年, 物理学报, **18** (1962).  
[10] J. Terrell, *Phys. Rev.*, **113**, 527 (1959).  
[11] 胡逸文、梅启庸、刘天柱、孙汉城, 原子能科学技术, 第4期, 356 (1964).  
[12] J. Grundl, A. Usner, *Nucl. Sci. Eng.*, **8**, 598 (1960).  
[13] D. J. Hughes and R. B. Schwartz, BNL-235 (1958).  
[14] R. Bullock, R. Moore, *Phys. Rev.*, **119**, 721 (1960).

(编辑部收稿日期 1963年10月8日)