

⁹⁹Mo 的裂变产额及产额分布的结构现象

王 豫 生

我们多次测定了裂变谱中子引起²³⁵U裂变中⁹⁹Mo的产额值 Y_f 。分别用放射法及Ge(Li)直接 γ 能谱法测定了绝对产额及与热中子裂变产额 Y_{th} 的相对比值 $R=Y_f/Y_{th}$ 。其中,对⁹⁹Mo都得到 $R>1$ 的结果,即裂变谱中子引起²³⁵U裂变时的⁹⁹Mo产额比热中子裂变的产额值高^[1,2]。这种在产额质量分布峰上的产额与入射中子能量有明显依赖、而且随能量而增高的现象是与以前实验及编译数据以及峰上产额值不随能量变化的观点^[3]不一致的,如表1及表2。但是,几年前陆续发表的一些数据^[4,5]与我们的结果趋于一致,但未作讨论。

⁹⁹Mo是一个与精细结构峰($A=134$)的镜像核($A=106$)相邻的核,如图1^[6]。因为至今理论上对裂变碎片质量分布还不能作精确计算,所以对⁹⁹Mo产额值仍从实验事实出发对结构作定性探讨。

过去已知的实验现象是:

(1)二分裂中裂变碎片(放中子前)及产物(放中子后)的质量分布(双峰)随能量的变化是:随能量的增加而谷上升,两翼增“肥”而峰顶产额不变或略有下降。轻峰位置随裂变核质量增加而向较高质量处移动但重峰位置不变。

(2)低能中子裂变时($\lesssim 2$ MeV)不论碎片或产物(即不论放中子前或放中子后)的质量分布都有明显的结构。最突出的精细结构峰在重峰的轻翼 $A=134$ 处,见图1。其产额值比附近的“平坦”部份约高26%(热中子裂变²³⁵U)。随着激发能增高精细结构逐渐消失。也就是说,精细结构区域的产额随能量的变化较之平坦部份更灵敏。

(3)精细结构的对效应:Thomas及Vandembosh^[7]对精细结构曾作过详细研究,他们提出:有结构的原因是偶-偶碎片释放的能量 $>$ 奇质量碎片释放的能量,因为对能把奇质量碎片的结合能表面压低到偶-偶质量碎片的结合能表面之下,亦即优先形成偶-偶碎片,结构的周期是 $2A/Z\sim 5$ 个质量单位,(A, Z 分别为复合核的质量与电荷)如图2。他们按照Cameron质量公式算得任何裂变方式的裂变能量为:

$$E_f = A_c \left[\frac{Z^2}{A^{2/3}} - \frac{Z_1^2}{A_1^{2/3}} - \frac{Z_2^2}{A_2^{2/3}} \right] + A_s (A^{2/3} - A_1^{2/3} - A_2^{2/3}) + A_a \left[\frac{(A-2Z)^2}{A} - \frac{(A_1-2Z_1)^2}{A_1} - \frac{(A_2-2Z_2)^2}{A_2} \right] + \Delta$$

其中 z, z_1, z_2 为复合核及轻、重碎片的电荷; A, A_1, A_2 为复合核及轻、重碎片的质量; A_c, A_s, A_a 分别为库伦能系数、表面能系数及非对称能系数; Δ 为壳效应及对效应修正。

表 1 热中子及裂变谱中子裂变²³⁵U时⁹⁹Mo的产额(实验值)

文 献	Y_{th}	Y_f	Y_f/Y_{th}	备 注
[1]	6.16 ± 0.12	6.38 ± 0.035	1.05 ± 0.04	单 能
[2]			1.08 ± 0.04	
[3]		6.1	0.99	
[3]		5.9	0.96	
[3]		6.4 ± 0.4	1.05	
[4]			~ 1.02	
[5]	6.13 ± 0.06	6.40 ± 0.12	1.04 ± 0.016	

表 2 热中子及裂变谱中子裂变 ^{235}U 时 ^{90}Mo 产额编评值^[8]

Y_i	$R = Y_i/Y_{i,0}$	备 注
6.10	0.99	以 $Y_{i,0} = 6.16$ 计算
6.04	0.98	
6.10	0.99	
5.9	0.958	
5.9	0.958	
6.125	0.994	
5.7	0.925	
5.57	0.904	

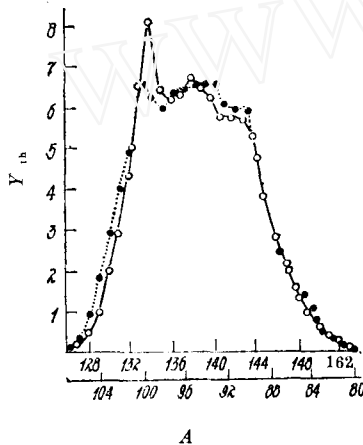


图 1 热中子裂变 ^{235}U 的轻、重裂变产物累积产额分布及精细结构^[8](已修正缓发中子)

○—○— 重产物产额;
 轻产物产额。
 横座标 162 应为 152(校后注)。

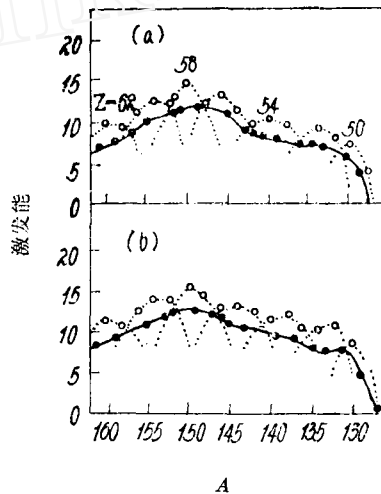


图 2 热中子裂变 ^{235}U 时,在各种电荷,质量分配下,而且轻碎片动能为 108 MeV 时,裂变碎片的总激发能^[7]

○— 偶质量产物,
 — 奇质量产物;
 给定电荷,
 —— 奇质量产物的激发能极大值连线;
 (a) 由Cameron质量公式计算,
 (b) 由Seeger质量公式计算。

这样算得净激发能的极大值是在非对称能极大值高 3.5 个质量单位处,即 $A_1^{max} \approx Z_1 \left(\frac{A}{Z} \right) + 3.5$ 。这与实验符合很好(计算值与实验值之间的均方偏差为 0.9 质量单位)。在这里明显可见到对的作用。事实上,若不是由于奇、偶效应,由图 2 裂变成偶-偶产物的能量释放就与奇质量产物没有区别了。

(4) 精细结构的壳效应:在工作[7]中并没有排斥壳效应,如图 2 中 $Z=58$ 的激发能很高,因为这对应于轻碎片有 50 个中子。而重碎片 $A=132$ 处激发能很低,是“谷”,这都反映了壳的作用。但为什么最突出的精细结构峰不在 $A=132$ 双幻数核上而在 $A=134$ 处? 至今没有解释。从实验上看,精细结构在 $A=134$ (热中子引起 ^{235}U 裂变时产额为 8.1%) 的主要原因是由于 $^{134}\text{Te}_{52}$ 的独立产额特别大(~6.9%) 而相邻的核 $^{132}\text{Te}_{52}$ 的产额却在“正常”值(~3.1%)^[8]。但这也不能用中子蒸发的理由来说明在 134 质量处有这么高的产额。因为在实验及半经验的 $\nu \sim A$ (放中子数~碎片质量)关系中(图 3)^[8] 未见这个区域有异常。然而,另一方面,在 132 质量链上双满壳核 $^{132}\text{Sn}_{52}$ 的分数累计产额确实突出的大(~8.5%),再

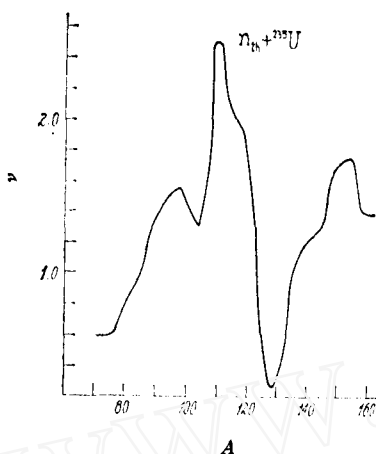


图 3 A~ν的关系^[8]

设 ν_i 为裂变时放出的总中子数, ν_b 为重碎片放中子数, 按 $\nu = \nu_i \left(\frac{\nu_b}{\nu_i} \right)$ ——对重碎片、 $\nu = \nu_i (1 - \nu_b/\nu_i)$ ——对轻碎片进行计算。
其中 ν_b 为文献[8]中给出的实验值平均值。

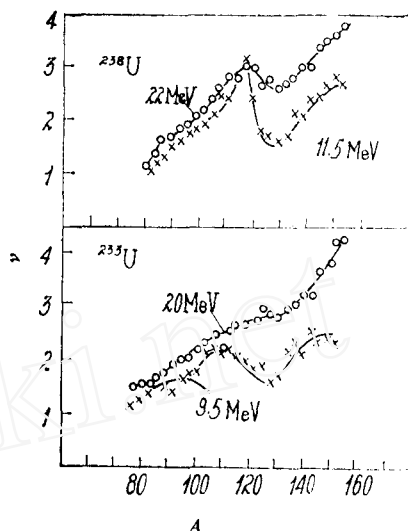


图 4 质子引起²³⁸U、²³⁵U裂变碎片质量与中子产额的变化关系^[10]

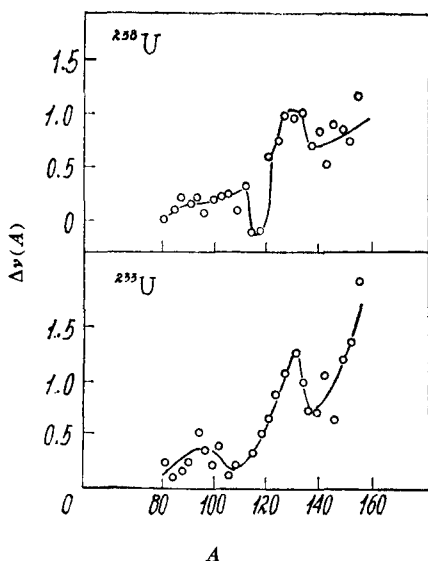


图 5 对应于图4, 不同激发能下中子产额的差Δν(A)

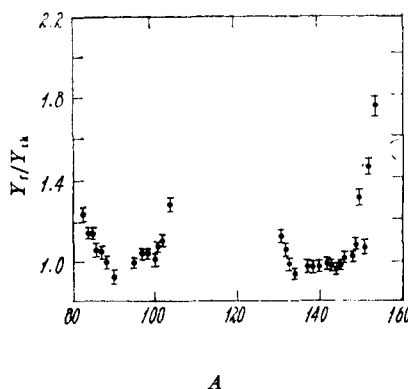


图 6 快堆谱与热中子裂变²³⁵U的产额比值

联系到重峰轻边界的位置不随能量和复合核而变, 固定在 $A = 132$ 处, 这些无疑都是壳作用的影响。

(5) 单个碎片放中子数 ν 对精细结构的影响, 各种复合核裂变时 $\nu \sim A$ 关系曲线形状相似, 它对精细结构的主要影响是将结构峰往较低质量数处略作移动。由于 $\nu \sim A$ 曲线上可能的不平滑部份, 例如满壳时 ν 值特别低, 也有可能产生产额精细结构的变化。从 ν 随 A 的变化, J.Terrell^[9] 提出, 中子产额与初生碎片的形变密切相关, 满壳或近满壳的球形核不“愿意”变形, 若其互补核是非满壳的, 则在断点绝大部份的形变能 will 交给这个非满壳的互补碎片, 因而放出较多的中子。 $\nu \sim A$ 的锯齿形状随着激发能的增高很快

消失,如图4。不同激发能下引起 ν 的差 $\Delta\nu \sim A$ 见图5^[10]。在图4、5给定的情况下(质子引起²³⁵U、²³⁸U裂变)可见高激发能时锯齿的消失是因为 $A=130$ 处 $\Delta\nu$ 反常地增大,而其互补核 $\Delta\nu$ 又反常的小^[11]。在 $A=132$ 处 $\Delta\nu$ 又突然下降,这意味着 $A=132$ 的碎片保持着相对稳定的球形结构而不易形变。当能量增加,壳结构逐渐消失时复合核形成更拉长的断点结构,但应注意到重碎片的 $\Delta\nu$ 远大于轻碎片,这表明绝大部份增加的激发能都归给重碎片(见图5)。因为壳效应趋于消失时断点可以采取在重、轻碎片之间按每个核子更加平均的形变能进行分配。

总之,笼统地说,在 $\nu \sim A$ 变化急剧区域,有可能影响质量分布的精细结构。由图3可见,在 $A=130$ 及 104 (一对互补质量)是两个放中子的凹谷,但在这两个质量处的产额并没有形成峰。因为放中子的数目以及它随能量的变化都与碎片的变形程度有关,故精细结构也难以主要按照放中子的结构来解释。

这些事实给我们以如下概念:精细结构是受着对效应(优先形成偶-偶核)和壳效应的影响并与单个碎片放中子数目有关。但尚不能由此得到完全对应的解释。然而质量分布中的精细结构是个实验事实。热中子²³⁵U裂变中 $A=134$ 及 100 是重、轻峰上互为镜像核的精细结构的位置,与 $A=100$ 相邻的 $A=99, 98$ 的产额有明显下降(约7--8%)。这种现象又使人回复到最初发现精细结构时的古老的观点上^[12],即在 $A=134$ 的断开方式中就有特别增强的结构效应。作为 $A=134$ 的镜像核自然要受到这种结构较大的影响。如果认为 $A=134$ 与其镜像核 $A=100$ 的产额结构随能量的变化是一致的,则在 $A=134, 100$ 的结构峰随入射中子能量逐渐消失的过程中其产额随能量上升有较大的下降,而其邻核则有可能随能量上升而有某些增加以使结构峰趋于消失,因而就有可能导致 $R > 1$ 的结果。

此外,既然精细结构未必是壳效应的原因,则它消失的能量也并不一定需要高到打破壳(6--8MeV)的能量,可以在低于这个能量下就开始消失结构。由图1可见,在 $A=98$ 处(精细结构的谷)的产额当能量由热能提高到裂变谱能量时会上升得至少与 $A=99$ 的产额同样明显。如果测 $A=98$ 的产额随能量的变化或着重测量97—103, 132—136质量区域内的产额变化,对系统研究这个问题会更有意义。这类工作(如图6)中子能量由热能提高到快堆谱能量时 $A=134$ 的产额比值 $R < 1$,而 $A=98, 99$ 处的产额也得到 $R > 1$ 的结果,这与我们的实验是一致的。

尽管问题还没有得到贴切的解释,但实验表明,在质量范围97—103, 132—136内的产额是有结构的,它随能量的变化比较灵敏,这一现象正逐渐为日益精确的实验数据所证实。因而不能笼统地认为产额分布曲线峰上的值与能量无关或略随能量增高而下降。因为在低能裂变时还仍然保留着的结构现象会使产额因能量的变化而有起伏。对于处在结构区的⁹⁹Mo相对产额 R 值各家数据的差异很可能是由于各自所使用的中子能谱的实际差异而引起的。因而在要求精确测定精细结构区的产额值数据时不能忽略各种能谱的差别,例如不应将快堆谱粗糙地等效于裂变谱。

感谢卓益忠同志对此工作有益的讨论。

参 考 文 献

- [1] 裂变产额组,核化学与放射化学,2,1(1980).
- [2] 王豫生等,核化学与放射化学,2,129(1980).
- [3] 裂变产额评价会战小组,裂变产物产额的评价,原成hsj-77037(bp)
- [4] J. G. Cuninghame. AERE-R, 8753 (1977).
- [5] Л. Н. Юрова и др., Атомная Энергия, 47(1), 26 (1979).
- [6] H. Farrar et al., Can. J. Phys., 40, 943 (1962).
- [7] T. D. Thomas et al., Phys. Rev., 133(4B), 976 (1964).
- [8] A. C. Wahr et al., IAEA-SM-122/116, Proceedings of the second IAEA Symposium on the International Atomic Energy Agency in Vienna, p. 813, 1969.
- [9] J. Terrell, Phys. Rev., 129, 880 (1962).
- [10] C. J. Bishop et al., Nucl. Phys., A 150, 129 (1970).
- [11] R. Vandendoorn, et al., Nuclear Fission, New York, Academic Pr., p. 348, 1973.
- [12] D. R. Wiles et al., Can. J. Phys., 31, 419 (1953).

(编辑部收到日期:1981年2月28日)