

^{252}Cf 冷裂变瞬发 γ 射线*

韩洪银 李安利 陈锦华 黄胜年

(中国原子能科学研究院 北京 102413)

1993-04-05收稿

摘 要

用四参量关联实验技术研究了 ^{252}Cf 冷裂变瞬发 γ 射线发射性质。孪生屏栅电离室收集极和栅极信号分别用于确定碎片的动能和发射角。圆柱形电离室轴线上的 NaI(Tl) 晶体用于符合记录裂变瞬发 γ 射线。结果表明,不仅冷裂变瞬发 γ 射线角分布系数约为正常二分裂变值的两倍,而且冷裂变轻碎片发射的 γ 射线数目几乎是重碎片发射数目的三倍。对后一实验事实目前尚未有满意的理论解释。

关键词 ^{252}Cf 自发裂变, 裂变碎片- γ 射线符合, 冷裂变特性。

1 引 言

冷裂变 (CF) 是一种稀有的裂变现象。在这种裂变方式下, 裂变碎片对的总动能 (TKE) 十分接近于相应碎片质量分割的裂变反应 Q 值。可见冷裂变是极端条件下的物理现象, 它与通常所指的正常裂变 (NF) 方式的一个本质性差别是, 冷裂变的系统激发能甚低且没有中子从碎片发射。冷裂变现象的研究为人们提供了了解核的对效应、壳效应以及核基态形变的极好机会。由于中子发射会破坏初始碎片的排列方向, 故研究没有中子发射的冷裂变瞬发 γ 射线也是揭露裂变 γ 射线发射机制的有力工具。由于至今尚未有冷裂变 γ 射线研究的实验报道, 所以本文的主要注意力将是比较冷裂变与通常所谓正常裂变 γ 射线发射性质, 并力求给出尝试性解释。

2 实验方法和数据分析

裂变源是用自转移法制备的。厚度 $20\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 的碳膜底衬直接附着于具有 $\phi 16\text{mm}$ 圆孔的电离室阴极上。源斑直径 5mm , 源的放射性强度为 68 裂变/s。裂变事件是由测量屏栅室的两个收集极信号和一个栅极信号的幅度确定的。用屏栅室测量裂变碎片能量和碎片相对于电离室轴线发射角的方法见文献 [1]。裂变事件包含的两个碎片是互成 180° 从源中飞出的, 故实验上只需确定一个碎片的发射方向就够了。为消除源底衬对测量发射

* 本项目得到中国自然科学基金委员会和中国核工业总公司的共同支持。

角的影响,实验只记录了不穿过碳膜那个碎片在栅极上产生的感应信号。一个放在圆柱形电离室轴线上用铅屏蔽起来的 NaI(Tl) 探测器 ($\phi 10\text{cm} \times 10\text{cm}$) 符合记录裂变瞬发 γ 射线。屏栅室的角度分辨 (FWHM) 不大于 8° , 远小于 γ 探头对源的张角 (17°), 故系统对 γ 射线的角分辨 (FWHM) 值估计将不大于 19° 。为了数据的可靠性, 离线分析时只选取了碎片发射角小于 81° 的那些事件。应指出的是, 由于角分辨限制和碎片各向同性发射, 得到的 γ 射线角分布数据点将不是等距分布的。NaI(Tl) 探测器对 ^{137}Cs γ 线的能量分辨好于 7%, 分析数据所选取的 γ 射线下域为 0.15 MeV。因冷裂变的低发生率, 测量时对电离室的快阴极信号进行了反堆垒技术处理也求最大限度降低慢收集极脉冲堆积形成的假高动能事件。估算表明, 测到的冷裂变事件中的假事件率低于千分之六。

整个实验周期内, VAX-11/780 计算机数据获取系统在线记录了约 3×10^8 个裂变关联事件。

数据分析过程要点如下。

(1) 当测到的 γ 谱计数统计精度足够高时, 解谱技术直接用于退解脉冲幅度谱成为 0.15—3.7 MeV 能区的初始能谱。当因低统计精度不能用解谱法时, Meier-Leibnitz 倡导的权因子法^[2]用于寻找初始 γ 射线能谱的总计数和谱平均能量。使用上述技术所需的探头响应函数是由测量探头对一系列单能 γ 源的响应确定的。

(2) 在确定正常裂变瞬发 γ 射线角分布时修正了裂变中子发射的影响, 用吸收法测量了不同碎片发射角下 γ 探头输出的脉冲幅度谱和闪烁液体探测器输出的 n- γ 形状甄别谱, 测量时中子探测器轴线与电离室轴线垂直, 在两探测器与源间分别放置 3cm 和 5cm 铅层。离线分析时, 用 Monte Carlo 模拟了不同能量 γ 射线经过实验用铅层的响应函数。把中子探头测量到的中子强度随铅层变化与模拟得到的响应函数以及 [NaI(Tl) 幅度谱变化结合起来, 用最小二乘法解谱可直接推出中子在 NaI(Tl) 探头上的本底谱来。这里的唯一假设是, 中子本底谱计数仅与入射到 NaI(Tl) 上的中子数成正比例相关。

(3) 对 γ 射线数据进行分析时, 用文献 [3] 的方法修正了 γ 射线从运动碎片发射的 Doppler 能量移动和探测器主体角的相对变化。

(4) 由于裂变中子发射^[4]、碎片在底衬中的能损^[5]和碎片脉冲高度亏损^[6]均与碎片质量、电荷和动能有关, 故反复迭代技术用于确定发射中子前的质量和能量。计算上述修正量时, 对冷裂和正常裂变分别采用了文献 [7, 8] 给出的电荷分布参数。

(5) Budtz-Jørgensen 等人实验^[4]表明, 当一个裂变事件释放的总动能 TKE 高于相应碎片质量分割的 $\text{TEKL}_{\max}(A_H)$ 或 $\text{TKEH}_{\max}(A_H)$ 值时, 轻或重碎片将不可能发射中子。根据他们对 ^{252}Cf 自发裂变测到的 $\text{TKEL}_{\max}(A_H)$ 和 $\text{TKEH}_{\max}(A_H)$ 值, 离线分析时专门挑出了不发射中子的冷裂变事件和只有一个碎片可能发射中子的近冷正常裂变。

(6) 如果裂变事件的初始轻碎片质量数和电荷数分别用符号 A_L 和 Z_L 表示, 初始重碎片的质量数和电荷数则为 $A_H = 252 - A_L$ 和 $Z_H = 98 - Z_L$ 。裂变事件总激发能可表为 $E_x(A_H, Z_H) = Q(A_H, Z_H) - \text{TKE}(A_H, Z_H)$, 这里的符号 $Q(A_H, Z_H)$ 和 $\text{TKE}(A_H, Z_H)$ 分别表示上述特定碎片质量分割的裂变反应 Q 值和碎片对总动能, $Q(A_H, Z_H)$ 可直接从 Möller 和 Nix 核质量表计算^[9]。鉴别屏栅室不能按事件方式确定单个碎片电荷数^[8], 本文采用对电荷分布求平均办法寻找固定碎片质量分割下的系统激发能

平均值 $\bar{E}_x(A_H) = \bar{Q}(A_H) - \text{TKE}(A_H)$, 这里 $\text{TKE}(A_H)$ 是按事件处理方式测到的碎片对总动能。计算时对冷裂变和正常裂变仍分别用文献 [7,8] 给出的电荷分布参数。虽然这种确定系统激发能的方法不是完全严格的, 但得到的结果无疑能粗糙地反映系统的总激发能。

3 结果和讨论

如无说明, 本文所指的冷裂变是那些碎片对总激发能小于 10MeV 且没有中子发射的事件。

3.1 冷裂变瞬发 γ 射线谱

归一化的冷裂变和正常裂变瞬发 γ 射线谱在图 1 中给出。 $N(E_\gamma)/E_\gamma$ 随 γ 射线能量 E_γ 的变化给在图 2 中, 这里 $N(E_\gamma)$ 表示每 1MeV 能量间隔内每次裂变发射的 γ 射线数目。

图 1 表明, 冷裂变比正常裂变更有更高的低能 γ 射线产额, 而发射较少的高能量 γ 射线。图 2 的特征是, γ 射线能量高于 1.2MeV 时, $N(E_\gamma)/E_\gamma$ 的对数值随 E_γ 的变化具有直线形式, 这种函数依赖关系可解释为 γ 射线的统计发射。

Skarsvåg^[10] 用 Cascade 统计模型计算了 ^{252}Cf 自发裂变轻、重碎片组的 γ 射线能谱。计算的输入参数包入了轻、重碎

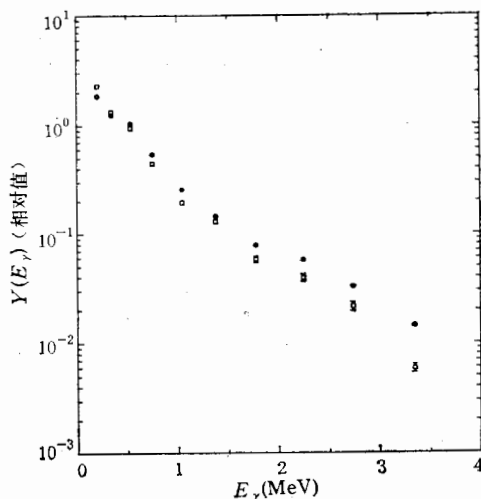


图 1 归一化的裂变瞬发 γ 射线谱

••• NF; □□□ CF

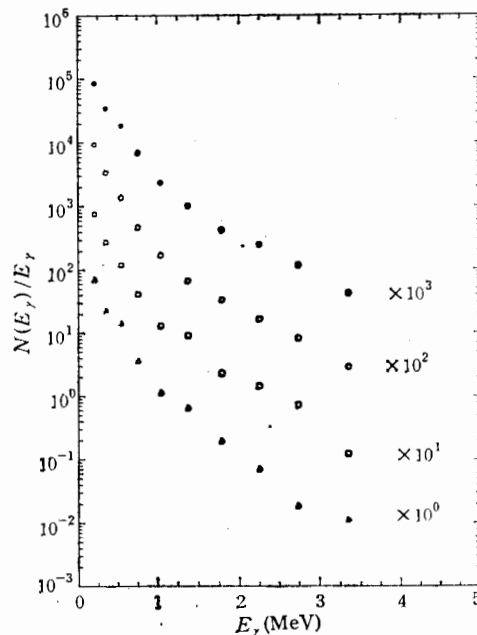


图 2 裂变瞬发 γ 射线谱

••• NF; ○○ NF1; □□ CF2; △△ CF1

片发射 γ 射线数目比。结果是: E2 级联跃迁能量是落在 0.15—0.24MeV 和 0.35—0.96 MeV 范围; 统计偶极跃迁主要出现在 0.15—0.29MeV 和能量高于 1MeV 范围; 统计四极跃迁则可在能量高于 0.15MeV 的整个能区观测到。当能量高于 1.2MeV 后, 两种统计辐

射成分差不多具有相等的强度。

Kapoor 等人^[4]用统计理论研究了热中子引起 ^{235}U 裂变积分 γ 射线谱。他们发现, 谱的高能部分既可用统计偶极发射也可用统计四极发射拟合。从拟合得到的统计偶极发射和统计四极辐射的最大碎片核温度分别为 0.8 和 0.6 MeV。Kapoor 等人把统计计算给出的 γ 射线产额在谱的低能区范围明显低于实验值归因于碎片基态带内的转动退激级联跃迁辐射存在。

用 Kapoor 方法对能量高于 1.2 MeV 的 γ 谱数据进行拟合的结果在表 1 中给出, T_m 表示最大的碎片核温度, 核碎片的平均温度为 T_m 值的 $\frac{2}{3}$ 。表中符号 NF 代表正常裂变; NF1 表示一种特定的近冷裂变(碎片对总激发能大于 6 但小于 16 MeV, 平均每次裂变约 0.4 个中子从重碎片发射, 轻碎片是不发射中子的); CF2 和 CF1 分别表示碎片对总激发能小于 6 MeV 和大于等于 6 MeV 但小于 10 MeV 的冷裂变事件。

表 1 拟合得到的最大碎片核温度 T_m

裂变方式	NF	NF1	CF1	CF2
偶极辐射 T_m, MeV	0.83 ± 0.04	0.82 ± 0.04	0.66 ± 0.05	0.58 ± 0.04
四极辐射 T_m, MeV	0.61 ± 0.03	0.59 ± 0.03	0.48 ± 0.04	0.42 ± 0.04

得到的结果有如下特点。

(1) 能量高于 1.2 MeV 的统计 γ 射线不仅在正常裂变 γ 谱中而且也在冷裂变 γ 谱中观察到了。统计 γ 辐射是与激发能高于 Y_{rast} -线碎片的退激相关的。同正常裂变相比, 冷裂变 γ 射线谱低能部分包含着更多的转动退激成分。

(2) 冷裂变碎片比正常裂变碎片有低一些的核温度。从冷裂变向正常裂变过渡时, 碎片发射 γ 射线的核温度随系统激发能的增加而上升。

(3) 近冷裂变方式 NF1 的碎片最大核温度几乎等于正常裂变的值。因为, 只要能量上许可中子总是优先于 γ 射线发射, 并消耗掉碎片激发能的绝大部分, 故这一现象是不难理解的。

3.2 冷裂变瞬发 γ 射线角分布

裂变 γ 射线角分布通常表为

$$W(\theta_c) = 1 + A_2 P_2(\cos \theta_c) + A_4 P_4(\cos \theta_c),$$

这里 P_2 和 P_4 为 Legendre 多项式, θ_c 表示碎片坐标系中光子传播方向与碎片速度矢量间夹角。令 C_L 和 C_H 分别表示每次裂变轻、重碎片发射的 γ 射线数目, 那么每次裂变每单位立体角发射的总 γ 射线数目 $Z(\theta_c)$ 可写为

$$Z(\theta_L) = C_L S_L W_L(\theta_{LC}) + C_H S_H W_H(\theta_{HC}),$$

这里的 $W_L(\theta_{LC})$ 和 $W_H(\theta_{HC})$ 为轻、重碎片角分布, θ_{LC} 和 θ_{HC} 分别表示 γ 射线在轻、重碎片参考系中的发射角, θ_L 为实验室坐标系中 γ 射线相对于轻碎片速度矢量的夹角, S_L 和 S_H 为 γ 射线从轻、重碎片发射的转换、修正因子。对实验数据拟合时, 表达式中的 θ_{LC} 和 θ_{HC} 需转换为实验坐标系值 θ_{LL} 和 $\theta_{HL}(\theta_{HL} = \pi - \theta_{LL})$ 。为了检验参

数选取对拟合结果的影响, 选用了两种数据拟合方式: (1) 把 C_L 、 C_H 、 A_2 和 A_4 选为自由参数, 令 $A_2 = A_{2L} = A_{2H}$ 和 $A_4 = A_{4L} = A_{4H}$; (2) 选 C_L 、 C_H 、 A_{2L} 和 A_{2H} 为自由参数, 令 $A_4 = A_{4L} = A_{4H} = 0$. 拟合参数的下标 L 和 H 分别表示轻、重碎片, 拟合时还考虑了冷裂变轻、重碎片组的平均速度不同于正常裂变值这一事实. 得到的拟合曲线和拟合值可分别从图 3 和表 2 中看到, 表中 $R = C_H / (C_H + C_L)$ 表示每次裂变从重碎片发射 γ 射线所占的份额, 对图 3 中的数据点只给出了统计误差, 实验结果有如下特征.

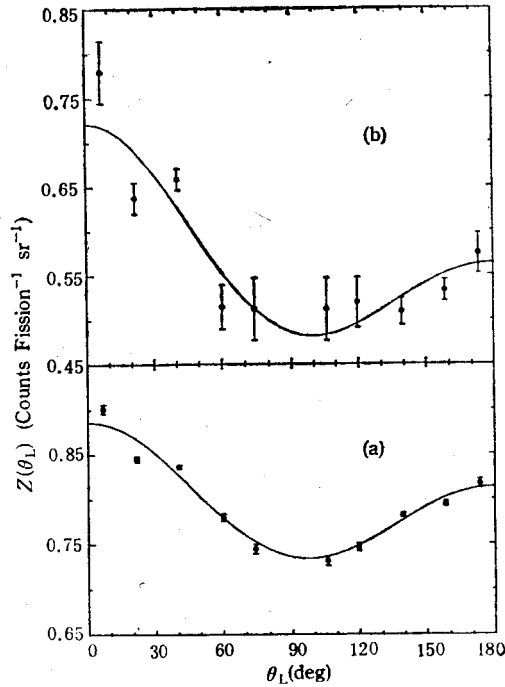


图3 裂变瞬发 γ 射角分布

实线为拟合曲线, (a) NF; (b) CF

表 2 裂变瞬发 γ 射线角分布参数

裂变方式	拟合方式	A_{2L}	A_{2H}	A_{4L}	A_{4H}	R
冷裂变	1	0.17 ± 0.01	$= A_{2L}$	0.004 ± 0.008	$= A_{4L}$	0.26 ± 0.04
	2	0.20 ± 0.01	0.17 ± 0.01	$= 0$	$= 0$	0.27 ± 0.04
正常裂变	1	0.099 ± 0.002	$= A_{2L}$	0.001 ± 0.002	$= A_{4L}$	0.452 ± 0.014
	2	0.101 ± 0.002	0.099 ± 0.002	$= 0$	$= 0$	0.45 ± 0.014

(1) 两种拟合参数选取方式给出的冷裂变瞬发 γ 射线角分布系数 A_2 值均约为正常裂变值的两倍, 本实验正常裂变 γ 射线各向异性 $W(0^\circ)/W(90^\circ)^{-1} = 0.156 \pm 0.05$ 与 Skarsvåg^[10] 等人结果一致. 一个比正常裂变大得多的 A_2 值不仅意味着冷裂变初始碎片转动轴很好地排列在垂直于裂变方向平面内, 也意味着中子发射在某种程度上破坏了正常裂变初始碎片的转动排列取向.

Wolf 等人^[11]测量了 ^{252}Cf 自发裂变某些特定碎片 γ 射线角分布系数. 某些非偶偶

碎片 19 条 γ 跃迁的 A_2 系数加权平均值为 -0.05 ± 0.02 , 而某些偶偶碎片 23 条 ($2^+ - 0^+$ 和 $4^+ - 2^+$) $E2$ 跃迁辐射的 A_2 加权平均值为 0.27. 他们把负的 A_2 值归究为非偶偶核的 $E1$ 和 $E2$ 混合跃迁. 如果碎片退激进入到基态转动带前且没有 $E1$ 跃迁存在, 模型计算预言的 $E2$ 级联跃迁 A_2 值为 0.40.

从讨论可见, 冷裂变比正常裂变有近约大 1 倍的瞬发 γ 射线角分布系数 A_2 值, 这从本实验观测到的冷裂变 γ 射线谱比正常裂变 γ 谱包含有更多的 $E2$ 级联辐射成分可得到解释.

(2) 对冷裂变数据用两种拟合方式得到的 R 值均约等于 0.26, 这值远小于正常裂变的值. 本实验得到的正常裂变 R 值与文献[10]的值 0.472 ± 0.014 很好一致. 正常裂变轻碎片比重碎片平均说来发射稍微多一些的 γ 射线数目常被简单地解释为: (1) 裂变轻碎片组比重碎片组平均说来发射较多的中子数目^[13-15] ($\nu_L = 2.13$ 和 $\nu_H = 1.60$), 这意味着前者的平均激发能高于后者, 高的激发能有助于提高统计跃迁几率; (2) 碎片在发射中子后能用于 γ 发射的平均激发能约为中子结合能的 $\frac{1}{2}$, 而轻碎片的中子结合能略大于重碎片值. 上述的解释只能是定性的, 因为 γ 退激过程不仅和激发能有关, 而且也和碎片的核结构直接相关.

在裂变断点弯曲模式(bending mode) 激发假设下, Zeilinska-Pfable^[16] 研究了热中子引起 ^{235}U 裂变的偶偶碎片平均角动量与碎片质量数和断点核温度 T 的关系. 在断点温度 $T = 2 - 3\text{MeV}$ 和非绝热近似下, 模型很好解释了正常裂变轻碎片比重碎片发射稍微多一些的 γ 射线数目这一实验事实, 但显然不能解释对冷裂变所观测到的结果, 因为冷裂变的 R 值比 0.45 值小得太多.

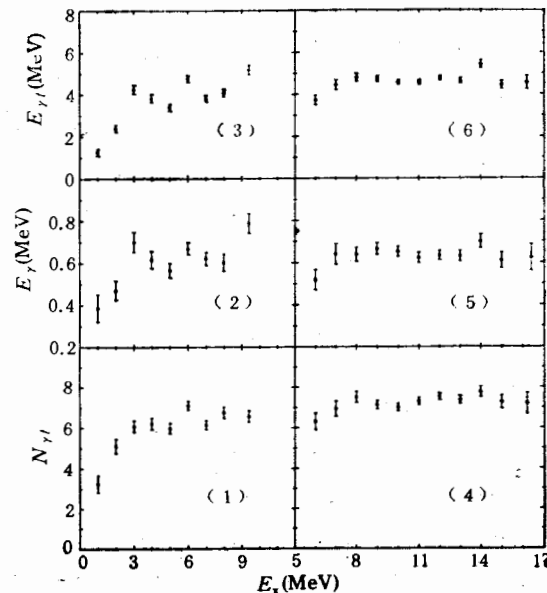


图 4 N_{γ} , E_{γ} 和 $E_{\gamma/E}$ 随碎片对总激发能 E_x 的变化
(1)–(3)为冷裂变(CF)结果;(4)–(6)为近冷正常裂变(NF1)数据

3.3 $E_{\gamma t}$ 、 $N_{\gamma t}$ 和 E_{γ} 随碎片对总激发能 E_x 的变化

(1) 图4(1)–(3)给出了每次冷裂变平均总 γ 射线数目 $N_{\gamma t}$ 和每个 γ 光子平均能量 E_{γ} 随碎片对总激发能 E_x 的变化。每次冷裂变平均总 γ 射线能量 $E_{\gamma t}$ 等于 E_{γ} 和 $N_{\gamma t}$ 乘积,故 $E_{\gamma t}$ 对 E_x 的依赖由后两个量的联合效应决定。当碎片对总激发能从零开始增加而没有中子发射时,全部激发能将以 γ 辐射形式释放出来,因此观察到的冷裂变 $E_{\gamma t}$ 激发能增大而增加的现象是易于理解的。

在统计理论框架中,Fréhauf^[17] 用每次裂变总 γ 射线能量分布方差实验数据推出, $E_{\gamma t}$ 对裂变系统激发能的依赖基本上由 E_{γ} 随系统总激发能变化所决定,因 $N_{\gamma t}$ 值基本上与系统激发能无关。这种现象被解释为高激发能下的中子 γ 发射竞争。这里,我们又一次看到了冷裂变的 γ 发射行为与正常裂变相比有着很大的差别。

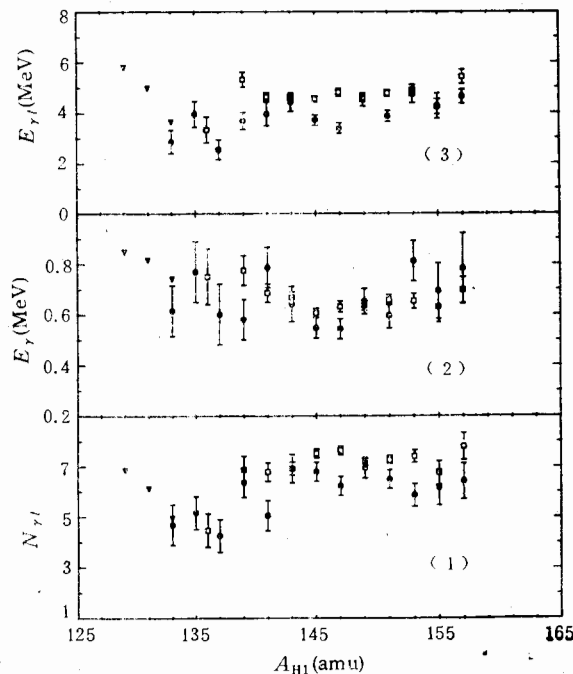


图5 $N_{\gamma t}$ 、 E_{γ} 和 $N_{\gamma t}$ 与碎片质量分割的关系

A_H 表示重碎片质量数。●●●CF; □□□NF1; ▼▼▼NF2 和 NF2 的数据进行了微小的发射中子修正。

从图5可见:(1)冷裂变和近冷裂变 NF1 的 $E_{\gamma t}$ 值在 $A_H > 135$ 条件下随碎片质量分割变化较小,但 $N_{\gamma t}$ 和 E_{γ} 则有较大的起伏变化,这种起伏预期是直接和碎片核结构相联系的,因 E_{γ} 与核能级间距有关;(2)当从冷裂变转变到 NF1 和 NF2 近冷裂变方式时,在整个碎片质量分割范围内大体表现为 $E_{\gamma t}$ 和 $N_{\gamma t}$ 的增加,这可理解为激发能增加的直接结果,但 E_{γ} 的显著增加只对某些特定碎片质量分割被观察到了。

(2) 图4(4)–(6)给出了近冷正常裂变方式 NF1 的实验结果。物理量 $E_{\gamma t}$ 、 $N_{\gamma t}$ 和 E_{γ} 均随系统激发能增加而缓慢增加,并最终趋于正常裂变相应值。图4给出的物理量变化趋势清晰地反映了从冷裂变向正常裂变发展的全过程。

3.4 $E_{\gamma t}$ 、 $N_{\gamma t}$ 和 E_{γ} 随碎片质量分割的变化

图5给出了 $E_{\gamma t}$ 、 $N_{\gamma t}$ 和 E_{γ} 随初始重碎片质量数 A_H 的变化,轻碎片质量数 $A_L = 252 - A_H$ 。符号 NF2 表示另一种特定的近冷正常裂变方式(裂变系统激发能大于 6MeV,但小于 16MeV,每次裂变平均约有 0.7 个中子从轻碎片发射但重碎片不发射中子)。

对 NF1

参 考 文 献

- [1] 韩洪银等,原子能科学技术,26(1992)29.
[2] F. Pleasonton et al., *Phys. Rev.*, **C6**(1972)1023.
[3] K. Skarsvåg, *Nucl. Phys.*, **A96**(1967)385.
[4] C. Budtz-Jørgensen and H.-H. Knitter, *Nucl. Phys.*, **A490**(1988)307.
[5] J.S. Forster et al., *Nucl. Instr. Meth.*, **136**(1976)349.
[6] C. Budtz-Jørgensen et al., *Nucl. Instr. Meth.*, **A258**(1987)209.
[7] R.W. Waldo et al., *Phys. Rev.*, **C23**(1981)1113.
[8] H.-H. Knitter et al., *Nucl. Phys.*, **A536**(1992)221.
[9] P. Möller and J.R. Nix, *Atomic Data and Nucl. Data Tables*, **26**(1981)165.
[10] K. Skarsvåg, *Phys. Rev.*, **C22**(1980)638.
[11] S.S. Kapoor and R. Ramanna, *Phys. Rev.*, **B133**(1964)598.
[12] A. Wolf and E. Cheifetz, *Phys. Rev.*, **C13**(1976)1952.
[13] J.W. Boldeman, Proceeding of International Specialists' Symposium on Neutron Standards and Application, Gaithersburg, Maryland, U.S.A., 1977, p. 182.
[14] H.R. Bowman et al., *Phys. Rev.*, **126**(1962)2120.
[15] K. Skarsvåg, *Phys. Scr.*, **7**(1973)160.
[16] M. Zielinska-Pfable and K. Dietrich, *Phys. Lett.*, **B49**(1974)123.
[17] J. Frehaut, Physics of Neutron Emission in Fission, Proceeding of a Consultants Meeting on Physics of Neutron Emission in Fission Organized by IAEA, Meto, Japan, 1988, p. 99.

Behaviour of Prompt Gamma-Ray Emission in Cold Fission of ^{252}Cf

Han Hongyin Li Anli Chen Jinhua Huang Shengnian

(Institute of Atomic Energy, Beijing 102413)

Received 5 April 1993

Abstract

The behaviour of prompt γ -ray emission in the cold fission of ^{252}Cf was investigated experimentally using a four-parameter correlation technique. A twin gridded ionization chamber was employed to detect the fission signals and to determine the fragment emission angles, and a $\phi 10\text{cm} \times 10\text{cm}$ NaI(Tl) detector was used to record the γ -ray energies. The result shows that the angular distribution coefficient of γ -rays emitted in cold fission is twice as large as that in the normal fission. The fact that in the cold fission the number of γ -rays emitted from the light fragments is approximately three times as large as that from the heavy ones can not be explained satisfactorily so far.

Key words ^{252}Cf spontaneous fission, fission fragment- γ ray coincidence, characteristics of cold fission.