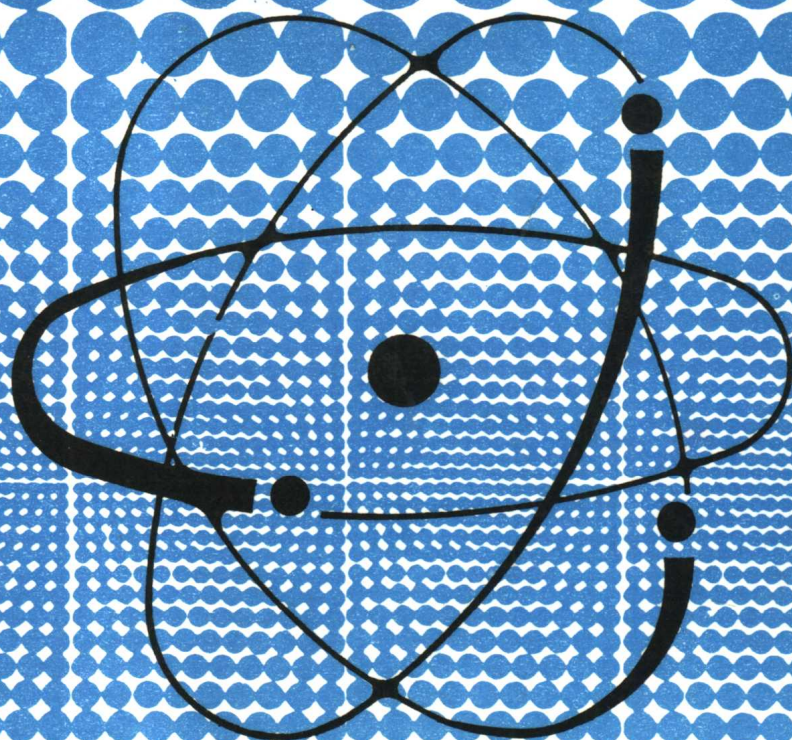


裂变化学

张丕禄 主编 唐培家 编
郭高品 主审
陶祖贻 郭景儒 审校



原子能出版社

裂变化学

张丕禄 主编 唐培家 编
郭高品 主审
陶祖貽 郭景儒 审校

江苏工业学院图书馆
藏书章

原子能出版社
北 京

图书在版编目(CIP)数据

裂变化学/张丕禄主编 唐培家编 郭高品主审 陶祖贻 郭景儒审校. —北京:原子能出版社, 1996. 12

ISBN 7-5022-1606-5

I. 裂… I. ①张… ②唐… II. 裂变化学 IV. O165.5

中国版本图书馆 CIP 数据核字(96)第 17995 号

内 容 简 介

本书是关于原子核裂变的有关化学的专业参考书,比较系统地介绍了裂变化学的主要研究成果。全书共分八章,分别阐述了原子核裂变的基本原理和过程,裂变产物的组成及化学状态,裂变化学的实验方法,裂变产额的测定方法以及裂变产物的质量及电荷分布。

本书可供放射化学专业的教师、研究生及其他有关专业人员参考。

裂变化学

张丕禄主编 唐培家编 郭高品主审 陶祖贻 郭景儒审校

©原子能出版社, 1996

责任编辑:金一一

社址:北京市海淀区阜成路 43 号 邮政编码:100037

原子能出版社印刷厂印刷 新华书店经销

开本:787×1092mm 1/16 印张 12.5 字数 332 千字

1996 年 12 月北京第 1 版 1996 年 12 月北京第 1 次印刷

印数:1—400

定价:25.00 元

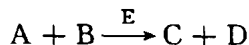
代 序

《裂变化学》的作者要我为他们的著作作序。作者认为裂变化学与裂变物理为姐妹学科。我早有同感。因为志同道合,所以一向不愿作什么序的我却愿为我国的第一本《裂变化学》摇旗呐喊,作一个马前卒,又来写这篇序。

不过我感到的范围还要广些。我几十年来一直认为核化学与核物理互相渗透,互相促进,前者以实验为主,后者以理论为主(裂变化学与裂变物理就是一例),但似乎一直未为核物理学家所认同。其实,核物理大师,如卢瑟福、居里夫人、约里奥与小居里夫人等得的诺贝尔奖都是化学奖,因为他们获奖的工作也可认为都是核化学工作。我甚至更进一步,以为粒子化学也与粒子物理互相渗透,互相促进,因为粒子化学者,粒子变“化”之学也,以实验为主,而粒子物理者,粒子变化之“理”也,以理论为主。核工业部研究生部曾请我开讲一课,我即以“粒子化学”应之,连教学提纲都拟好了,但似乎没什么特别反应,我也不愿惹起粒子物理学家的异议,后来也就作罢了。可惜的是,核物理学家,人家作核化学的工作,而核化学家止于原子,见核而却步,或没机会参加粒子变化的工作。这倒是我们,尤其是我引以为恨,深以为愧的。好在,还有化学家提出“强子及轻子化学”,“夸克化学”,则粒子化学虽如缕而尚未绝也。这些都是闲话。

且谈裂变。国际原子能机构曾于1965及1969年分别举行过裂变物理和裂变化学的研讨会。关于裂变过程,物理学家趋向于把它分为三个主题:中间过渡态原子核,裂点(decission point)构型及裂后现象。而化学家则倾向于分为:反应核、激发复合核及产物核。其实这两种分法都有些学究气。

我接受作序任务后,曾较全面地想过一下裂变的方方面面,试述如下:



A:可裂变核。首先想到的自然是Th,U及Pu等超铀元素,及同质异能裂变核,如 ^{241m}Am 等,以及由Th,经 ^{252}Cf ,至近来发现的 ^{262}No 的自发裂变。

B:诱发裂变的粒子。如n(热中子,共振中子,快中子), γ ,加速的p, α , ^3He ,轻离子,重离子等。

E:过程。如裂变的模型,势能,位垒,宽度,能量,阈能及隧道效应,截面及速率等。裂变的二分,三分。

C:轻粒子。如瞬发中子,缓发中子,其它轻核(三裂变之 ^{24}Na , ^{28}Mg , ^{31}Si , ^{38}S)。

D:产物核。裂变产物核(及其产额,质量分布,电荷分布)及团簇发射(cluster emission),三裂变之重核产物。

再浏览一下本书,则上列主要内容都涉及到了。它是我国第一本“裂变化学”的著作,并不以大全、详尽为目的。我认为这是一本好书,有它的逻辑安排,无上述的学究气。反观二战

后解密编著的 NNES(美国国家核能丛书,1951),其中的《裂变产物的化学研究》,三厚本,从当年看来虽有很多新发现,但由今视之,是很粗糙的。本书则深入多了。

只有一些补遗,与作者商榷,作再版时的参考:

一、可否补一个第九章:三分裂变。它是二分裂变的小弟弟,是我国著名核物理学家钱公三强与何先生泽慧的得意之作,而且他人的工作也不少。

二、可否提一提的:

1. 理论工作。各种模型不必都要讲到,但美籍华裔学者冯平贯(Peter Fong)先生研究多年的统计理论;及胡济民、钟云霄夫妇的多维布朗宁运动;裂变位垒不但光有第一阱、第二阱,法国科学家有实验证明还有第三阱。

2. 应用工作。作者所参加的“洁净核能系统的研究”中长半衰期的裂变产物分离后再以快中子嬗变为短半衰期的。研究裂变产物而发现的失落元素 ^{147}Pm 作为 β 放射源; $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 在核医学中的应用极广,研究亦多。还有作肿瘤治疗的 ^{90}Y 。所谓的“原子鸡尾酒”即诺贝尔奖得主 Yallow 的放射免疫分析所用的 ^{131}I 。甚至新的前沿的裂变碎片火箭等等。

就将以上的鄙见交卷罢。



1996/08/14

於“往矣楼”的“看今居”

前 言

本书是一本研究生教学参考书,也可以供从事放射化学工作的有关人员参考。《裂变化学》一书比较系统地介绍了裂变化学研究的成果。

本书是在王方定院士和郭景儒研究员的讲授稿和讲授提纲的基础上编写的。我们在编写本书的过程中,将内容进行了重新安排,并根据函审的编写提纲作了改编,增加了相当一部分内容,在书稿审查后又作了部分修改。本书的第一、二、三、六、七章由唐培家编写,第四、五、八章由张丕禄编写,后者还统校了全书。

参加本书编写提纲审查的有:陶祖貽教授、郭高品研究员、郭景儒研究员、严叔衡研究员。书稿审查是在陶祖貽教授主持召开的审稿会上进行的,参加审查的还有严叔衡研究员、郭高品研究员、郭景儒研究员、李泽副研究员。他们在审查过程中提出了许多宝贵意见,编者对书稿进行了认真的修改与核对。

本书在编写和修改过程中得到了王方定、郭景儒、李泽、黄怀安等以及中国核数据中心的同志们的帮助,在此一并表示衷心的感谢。

由于编者的水平有限,也由于有关裂变化学的书是第一次编写,书中错误和欠妥之处在所难免,敬请读者不吝赐教、批评指正,编者将深表感谢。

编者

1993. 4

目 录

代序	(-1-)
前言	(-3-)
第一章 绪论	(1)
第一节 原子核裂变的发现	(1)
第二节 裂变化学的内容	(6)
参考文献	(6)
第二章 原子核的裂变	(7)
第一节 引言	(7)
第二节 自发裂变和诱发裂变	(7)
第三节 原子核裂变的液滴模型	(9)
第四节 核裂变中的几个物理量	(11)
第五节 断点之后的现象	(16)
第六节 对液滴模型理论的修正——壳校正	(26)
第七节 核裂变的链式反应	(27)
参考文献	(29)
第三章 裂变产物	(30)
第一节 裂变产物衰变链(质量链)	(30)
第二节 裂变产物衰变特性	(31)
第三节 裂变产物混合物的组成	(33)
参考文献	(40)
第四章 裂变产物的化学状态	(41)
第一节 引言	(41)
第二节 裂变产物最终化学状态的形成	(42)
第三节 裂变碎片的反冲反应	(48)
第四节 几种主要裂变产物元素化学状态	(51)
参考文献	(68)
第五章 裂变化学的实验方法	(70)
第一节 靶子的制备、采集和溶解	(70)
第二节 裂变产物的分离方法	(78)

第三节 自发裂变的裂变产物的研究方法	(94)
参考文献	(96)
第六章 裂变产额测量	(99)
第一节 裂变产额定义	(99)
第二节 裂变产额的测量	(100)
第三节 裂变产额相对测量	(109)
第四节 裂变产额测定实例	(111)
参考文献	(118)
第七章 裂变产物的质量分布	(120)
第一节 质量分布曲线	(120)
第二节 质量分布的特征	(120)
第三节 质量分布中的精细结构	(122)
第四节 质量分布的应用	(124)
参考文献	(128)
第八章 核裂变的电荷分布	(129)
第一节 电荷分布的定义及研究方法	(129)
第二节 电荷分布的假说和经验模型	(133)
第三节 最概然电荷 Z_p 的实验测定	(152)
第四节 电荷分布宽度参量的测定	(154)
第五节 研究电荷分布的实例	(155)
参考文献	(163)
附录 A 裂变产物衰变链	(174)
附录 B 几种常用裂变核的链产额表	(189)

第一章 绪论

第一节 原子核裂变的发现

一、核裂变发现的意义

核裂变的发现是核科学发展史上的一个重要里程碑。从 1896 年 H. Becquerel 发现放射性起,到 1939 年 O. Hahn 和 F. Strassmann 发现裂变现象为止的几十年内,核科学一直局限于实验室的范围内,未能得到实际应用。核裂变现象的发现很快改变了核科学的这种局面。核裂变释放出的原子核中蕴藏着的巨大能量,使科学家们很快意识到了核裂变潜在的军事和工业上的应用价值。从此,核科学的研究跨出了实验室的大门,得到了迅速的发展,使人类进入了利用原子能(核能)的新时代。1942 年 12 月 E. Fermi 等人在美国芝加哥建成了世界上第一座铀-石墨反应堆,实现了人类首次驾驭原子核能的伟大壮举。1945 年美国爆炸了原子弹,后来美国和苏联又相继试验了氢弹。核武器的发展对战后的国际关系起着重大作用。战后,核能从单一军事应用开始走向多样化。1954 年原苏联建成了世界上第一座核电站,英法于 1956 年,美国于 1957 年也先后建成了核电站,从此开创了和平利用原子能的新时代。此后,原子能开始广泛地应用于国民经济,很快地形成了一个巨大的工业部门——原子能工业。经过几十年的不断发展,今天,核科学技术已广泛渗透到国民经济的各个领域及人们的日常生活中。

原子能包括核裂变能和核聚变能。核裂变能来自重核裂变的链式反应中释放出来的巨大能量;核聚变能来自轻核的聚变反应中释放出来的巨大能量。虽然聚变能是一种很干净的能源,但由于工程技术上的困难,预计要到 21 世纪中叶才能建成商用聚变堆。在相当长的一段时间内,人们主要利用核裂变能。

原子能在军事上的应用主要是制造核武器,其次是作军用核舰艇的推进动力。

原子能的和平利用主要包括以下两个方面:核电站和同位素与辐射技术。

同位素和辐射技术已广泛地应用于农业、工业、医学和科学研究中。在农业上主要用于辐射育种、辐射刺激增产、辐射防治病虫害、辐射杀菌消毒以及辐射食品保藏等等;在工业上主要用于辐射无损探伤、辐射(化学)加工、放射性测井、静电消除以及利用放射性核素制成各种检测仪表作为自动检验(同位素仪表)和自动控制(核控制系统)的手段;在医学上由于核技术的应用已经形成了一门年轻的学科——核医学,开辟了疾病的临床诊断、治疗和预防的新途径。特别是示踪原子技术作为一种极其有力的工具,可以解决生产和科研当中许多过去难以解决的问题。另外,利用长寿命的放射性同位素衰变时放出的能量可以制成具有特殊用途的小型能源——原子电池,用在宇宙飞船、人造卫星、无人管理的灯塔、航标、极地气

象站等方面;在医学上还可以制成长期使用的心脏起搏器。

利用核能发电和供热始终是原子能和平利用的最主要方面。核电站比常规的火力发电有很多的优点:

(1)量密度大。1kg 的 ^{235}U 或 ^{239}Pu 所能提供的能量在理论上相当于 2500t 优质煤,可以大大地节省燃料的运输和存储量;

(2)对环境污染较轻;

(3)在一些根本无法采用常规电站的特殊场合有时就非用核电站不可。

当今,世界上利用的主要能源——煤、石油、天然气等化石燃料的存储量都很有限,而且它们又是宝贵的化工原料。从合理利用天然资源和长远发展的观点看,开发和利用核燃料提供的新能源具有十分重要的意义。当代核能已被世界公认为近期最现实的可替代化石燃料的先进能源。核电站成了电力工业的生力军。据统计 1970 年核电还只占世界总发电量的 1.5%,1975 年就增加到 5.5%,1987 年已超过 16%。到 1991 年,全世界并网核电机组已达 429 座,总功率为 3 亿多千瓦,还有 120 多座核电反应堆在建设中,分布在 32 个国家和地区。

现在运行中的核电站多采用轻水堆,铀的利用率只有 0.5%。正在开发的快中子增殖堆使铀的利用率将增加几十倍。目前,核电经济性、固有安全性、乏燃料处置等问题困扰着核电的发展。看来,解决人类能源需求的最终出路是建造相当安全的核聚变电站。据报道,月球上有丰富的氦-3,江河湖海中有取之不尽,用之不竭的氘。如果核聚变成为人类可以控制的能源,将为人类解决几十亿年的能量资源问题。这种能源比核裂变反应堆提供的能源有更多的优点:

(1)所使用的原料更便宜,可使发电成本大大降低;

(2)不会发生反应堆失控事故,也没有裂变产物污染环境的问题,使用更安全;

(3)有可能实现能量直接转换,提高热效率,使热污染问题大为减轻。

核能为人类解决未来的能源问题展现出美好的前景。

二、核裂变发现的历史

核裂变发现的过程是一段值得回顾的历史。回顾这一段历史,我们可以从中学到科学家们的探索精神和严谨的治学态度,体会到科学实验、学术交流在科学发展过程中的巨大作用。

到 20 世纪 30 年代初,人类对于放射性现象已经有了不少认识。Po、Ra、Ac、Rn 等一些放射性元素已被发现;知道了放射性有 α 、 β 、 γ 三种类型;研究并确立了放射性衰变规律;建立了放化分离方法;发现了质子和人工核反应现象;发明了 Geiger - Muller 计数器、质谱仪;建造了加速器。

1932 年 J. Chadwick 发现了中子。中子的发现对裂变现象的发现起了重大的推动作用。1934 年 F. Joliot Curie 和 Irene Curie 用 α 粒子轰击 Al、B、Mg 时获得了第一批人工放射性新核素。这两个新发现促使许多科学家应用中子的核反应去寻找新元素。E. Fermi 和 E. Segre 等人对周期表中 63 种元素都进行了中子辐照,有 37 种产生了放射性,得到了许多新核素。

当时已发现的周期表上最重的元素是 92 号元素铀。Fermi 等人设想用慢中子轰击铀会

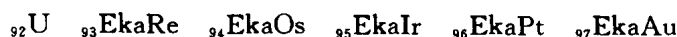
发生转变,企图得到自然界中不存在的 93 号、94 号等超铀元素。他用(氘-铍中子源)中子照射天然铀,得到的 β 放射性衰变曲线相当复杂,经过分析,确认有四种放射性成分存在,其半衰期分别为 10s、40s、13min 和 90min,并且认为至少还有一种半衰期更长的成分存在。根据用二氧化锰共沉淀时,大部分半衰期为 13min 和 90min 的放射性物质与 MnO_2 共沉淀,而与铀相邻的天然放射性元素不发生共沉淀这一性质,认为这四种放射性成分中至少有一种属于超铀元素。

在 E. Fermi 发表了他们鉴定超铀元素的工作之后,德国女科学家 Ida Noddack 很快写了有关 93 号元素的评论文章。她对这些意大利科学家们的结论持有异议。她说:“可以假定这种由中子和铀发生的核反应是一种重要的新型核反应,而不是迄今为止已观察到的那种由质子或 α 粒子对原子核引起的反应。可以想象在中子轰击重核时,这些核碎裂成几个大的碎块,它们实际是已知元素的同位素,而不是和被照元素相邻的元素”,因“(周期表上)许多中等原子量的元素能被二氧化锰共沉淀”。这样,她认为必须从化学上证明新生成的放射性物质不是周期表上已知的元素,才能确定为新的超铀元素。很可惜,由于当时广为承认的是关于原子核高度稳定的概念,Fermi、Hahn 等人没有认真考虑她的假定,认为它是荒谬的、不可思议的。所以,她的假定对以后的研究工作几乎没有起到什么指导作用。

寻找人工超铀元素的憧憬及 Fermi 的实验结果所显示出来的复杂性,吸引了许多科学家们去探索。当时,放射化学家的知识和手段远较物理学家优越,他们可以从化学性质和衰变关系两个方面去判断元素的种类。在很短的时间内就发表了大量的实验工作的结果,但其结果相互矛盾,使 1934 年到 1938 年期间,在超铀元素的领域里呈现一片混乱。这就是有名的“Fermi 之谜”。对于这些情况只要读一下 Quill 关于当时超铀化学的综述文章就可以知道。

在众多的实验工作中,有两组科学家的工作最有成效,这就是以巴黎的 I. Curie 为首和以柏林的 O. Hahn 为首的两组科学家们的工作。

Hahn, Meitner 和 Strassmann 利用他们在化学方面的专长对用中子轰击天然铀得到的产物进行了详细研究。他们从测量中发现实际情况要比 Fermi 最初预料的复杂得多。他们测到了 Fermi 未曾测到的半衰期,总共达九种。各种放射性强度的衰变曲线在不同的观测时间内变化很大,而且即使中子照射停止,有些放射性物质仍能不断产生,衰变过程是相当复杂的。这就是说,某些放射性产物不是直接由中子与铀的反应产生的,而是存在着一系列衰变的结果。他们给出了如下的衰变链:



1. 10 s $\rightarrow$ 2. 3 min $\rightarrow$ 59 min $\rightarrow$ 66 h $\rightarrow$ 2. 5 h $\rightarrow$ St

2. 40 s $\rightarrow$ 16 min $\rightarrow$ 5. 7 h $\rightarrow$ 60 d $\rightarrow$ St

3. 23 min $\rightarrow$ St

这里, Eka 表示“类似”。如 EkaRe 表示它是铼的同类物“类铼”。

当时对这些衰变链存在着疑虑:

(1) 如果它们仅仅是由 ${}^{238}\text{U}$ 产生的,那就是说存在着超铀元素的三个同质异能态。怎么会有三个同质异能态同时共存呢?

(2) 铀核俘获一个中子后,其产物可以经过长达五次的衰变。是何原因能造成产物有那么大的不稳定性呢?

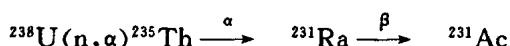
(3)另外,95~97号元素竟有稳定同位素存在也不好理解。

I. Curie 和 Savitch 在他们的实验中观察到了四种放射性成分,其半衰期分别为 40 s、2.2 min、16 min 和 3.5 h。他们发现半衰期为 3.5 h 的这个核素(称之为 R3.5h)不经化学分离也能探测到。在中子和铀作用后通过一块厚金属板记录其 β 衰变曲线。

Hahn 和 Strassmann 后来的实验证实了 3.5 h 的放射性物质的存在。他将用中子照射过的铀溶解于浓 HCl 中,进行 BaCl_2 沉淀。Ra 能进入其晶格共沉淀下来,而不包藏其它元素。在沉淀中含有三种成分,他们认为这些是 Ra 的同质异能素。它们又衰变分别生成三种 β 放射性物质(其中包括 3.5 h 的成分),可以用 NH_3 沉淀,这些就是 Ac 的同位素,并认为按下述核反应生成:



或



尽管 Hahn 的化学实验方法是十分清楚的,但他的同时存在三种 Ra 的同质异能素的解释使人有怀疑。

后来 I. Curie 和 Savitch 又对半衰期为 3.5 h 放射性物质进行深入研究,发现它可以和 Ac 分离,说明它不是 Ac 的同位素。还有许多的实验证据说明它的化学性质十分像 La,只有用分级结晶的办法才能将它从 La 中分离出来。

I. Curie 和 Savitch 的工作否定了 Hahn 等人的结论,这给了 Hahn 很大震动。他和 Strassmann 验证了 I. Curie 和 Savitch 的实验工作,结果发现 3.5 h 的放射体在化学分离中确实跟随 La 走。考虑到既然半衰期为 3.5 h 的放射性物质有 La 的性质,那么其母体曾经被认为是 Ra 的同位素的放射性物质是否也具有 Ba 的性质呢?。他们采用居里夫人使用过的铬酸盐或溴化物进行分步沉淀的方法,用 Ba 作载体去富集 Ra。

在一个用热中子照射过的铀样品中,加入钡作载体,化学纯化后分出的 Ba 中只可能带有 Ra,而不含其它元素,其中有一个半衰期为 85 min 的放射性核素。然后加入天然的半衰期为 3.6 d 的 $^{224}\text{Ra}(\text{ThX})$,分级结晶沉淀 BaCrO_4 。并取其最初两步的相等重量的 BaCrO_4 沉淀,测量其 β 放射性,测量的结果见图 1-1。 ^{224}Ra 作为 α 源没有直接测量,而是测量其子体 $^{212}\text{Pb}(\text{ThB})$,它是由 ^{224}Ra 连续三次 α 衰变(寿命很短)生成的。

图 1-1 由 a、b 和 c 三部分组成。图 1-1a 中曲线开始急剧下降是由半衰期为 85 min 的成分的衰变引起的,随后上升是由 ^{224}Ra 的子体 ^{212}Pb 引起的;将图 1-1a 的时间坐标放大 12 倍,得到图 1-1b。将图 1-1b 中曲线的开始部分分解就可以得到半衰期为 85 min 成分的衰变曲线,如图 1-1c 所示。由此可以看出 ^{224}Ra 在第一部分 BaCrO_4 沉淀中强烈富集,它与第二部分 BaCrO_4 沉淀中 ^{224}Ra 的比是 20:1,但这半衰期为 85 min 的成分被平均地包含在两部分中,有着严格相等的放射性。这说明它必定是 Ba 的同位素而不是 Ra 的同位素。

这个实验结果大大出乎人们的意料。于是 Hahn 和他的同事 Strassmann 以踌躇的心情在 1939 年 1 月发表了这个令人们惊疑的实验结果。他们谨慎地写到“我们的镭同位素有着钡的性质,作为化学家我们现在应该说这个新的物质不是镭而是钡,但作为核化学家——在某种程度上和物理学家有着密切关系的核化学家,我们还不能下决心作出和以前所有核物理的经验相矛盾的飞跃。”

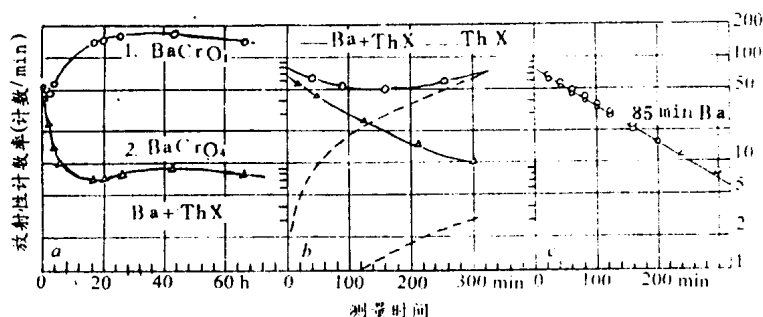


图 1-1 Ba 的分级结晶沉淀物衰变曲线图
(取自文献[2])

Hahn 和 Strassmann 又想到了人们曾经发现过的“超铀”元素中一个相似于 Re 但比 Re 的原子序数高的元素。当他们原假定为 Ra 的元素明显地被证实是钡的时候,想到很可能这个“EkaRe”是原子序数较低类似物。其原子序数为 43,那时叫 Masurium,符号为 Ma。Hahn 指出 Ba+Ma 的质量数的总和为 $138+101=239$,正好是 ^{238}U 加上一个中子的总和。可以说在这里他们已经给出了暗示——中子使得铀核破裂,分成比较相似的两个部分。

Hahn 及时地把他们的研究结果告诉了过去曾经长期和他合作的 Meitner(Meitner 是核物理学家)。她极为重视 Hahn 的实验结果,和 Frisch 进行了详细的讨论。她们应用 Bohr 的液滴模型首先对这一实验事实给出了理论上的解释。其基本思想是:“重核尽管有高的核电荷,但它们还是靠像液滴的表面张力那样的内聚短程力相互保持在一起。如果有一个小的能量使其振动变形,就会得到向相反方向互相排斥的静电力,于是核就分裂了。裂变和原子核中发射带电粒子的反应之间毫无相同之处。”他们借用生物学上细胞分裂的名词,将这个新型的核反应叫作“Fission”。

就这样“Fermi 之谜”经过了长达五年之久的时间终于被解开了。曾经被假定为超铀元素的东西实际上许多是裂变产物。Hahn 和 Strassmann 发现的半衰期为 85min 的钡是 ^{139}Ba ,现在测定的半衰期为 83.34 min,而 I. Curie 和 Savitch 发现的半衰期为 3.5 h 的物质大概就是半衰期为 3.54 h 的 ^{92}Y 和半衰期为 3.93 h 的 ^{141}La 及其它稀土元素的混合物。 ^{92}Y 能发射非常硬的 β 射线,可以不经过分离,透过厚金属板被探测到。

这以后相继发表了一批论文,讨论原子核对于裂变的稳定性问题,其中特别详尽的是 Bohr 和 Wheeler 关于裂变理论的那篇论文,预言俘获慢中子引起裂变的铀是 ^{235}U 。F. Joliot Curie 和 Fermi 等人指出,热中子诱发铀裂变时每次裂变放出 2~3 个快中子。

发现裂变现象后,寻找超铀元素的工作也取得了新的进展,1940 年 E. McMillan 和 P. H. Abelson 发现 93 号元素 Np,它是 $^{238}\text{U}(n,\gamma)^{239}\text{U}$ 反应产物经 β 衰变形成的,不是类镧,而是充填 5f 电子层的成员。同年 G. T. Seaborg 等人发现了 94 号元素 Pu。Pu 和其它超铀元素均可由铀俘获中子产生。Fermi 用中子辐照产生超铀元素的设想被证明是正确的。

第二节 裂变化学的内容

从以上所述可知,在发现裂变现象的过程中,放射化学家们做出了不可磨灭的贡献。在以后的年代中,放射化学家的大量工作,丰富了人们对裂变现象的认识,逐渐形成了裂变化学这门学科。作为它的姊妹学科,裂变物理也得到了迅速的发展。

裂变化学和裂变物理是在互相启发、互相渗透的情况下发展起来的,有的工作是相互交错的,所以有时很难区分这两门学科。我们试着给裂变化学下这样的定义,即“裂变化学是核化学的一个分支,它是以可裂变核素和裂变产物为研究对象,以放射化学方法为研究手段、以裂变规律为研究目的的一门学科。”以这个定义为指导,我们确定了裂变化学这门课程的主要内容。

因为裂变化学是以研究核裂变机制为目的,所以首先需要具备关于裂变过程的物理图像的知识,这正是本书第二章“原子核的裂变”的内容。第三章讲解裂变产物的衰变链,对屏蔽核、双 β 发射体等几种裂变产物核素给以描述,并给出在不同时间各种裂变产物相对含量的计算。第四章讲裂变产物的化学状态。这一章的内容比较新,但又研究得不够深入,有许多值得探讨的东西,主要介绍化学方法研究的成果。第五章讲裂变化学的实验方法,除了简单地介绍一般方法外,重点介绍快速分离技术。第六章介绍裂变产额的测量。它是定量研究裂变产物的质量分布和电荷分布的基础。第七章叙述核裂变的质量分布。第八章是核裂变的电荷分布的几个理论假说,以及在这方面取得的实验成果。

裂变化学是一门实验学科,故本课程中有相当多的内容属于实验事实的介绍,读者应以足够的重视。

参 考 文 献

- 1 [美]R. 范登博施等著,黄胜年等译. 原子核裂变. 北京:原子能出版社,(1980)
- 2 G. Herrmann, Radiochim. Acta. 3, 169 (1964), or AERE-Trans-1036 (1965)
- 3 华明川. 能源. 1, 32 (1986)
- 4 周全之. 能源. 4, 42 (1988)
- 5 张文青. 中国能源. 4, 14 (1990)
- 6 刁国平. 放射性同位素的应用. 北京:北京人民出版社,(1975)
- 7 中国医学科学院第七研究室主编. 同位素技术及其在生物医学中的应用. 北京:科学出版社,(1979)
- 8 L. S. Quill, Chem. Rev. , 23, 87 (1938)

第二章 原子核的裂变

第一节 引言

原子核裂变是一个包括很多事件的极其复杂的过程。比较成功地解释原子核裂变机制的理论是早期核物理中原子核的液滴模型(详细的理论描述不属于本书的范畴)。本章将以“液滴模型”为基础,对原子核裂变给出一个简明的物理图像,使大家对原子核的裂变过程有一个形象的了解;通过对原子核裂变过程中发生的各种事件的描述及对核裂变中常用的几个物理量的介绍,使读者对核裂变有进一步的认识。由于原子核裂变的液滴模型有很大的局限性,尚有许多实验事实用液滴模型不能给予很好的解释,在本章的最后一节我们将给出对液滴模型的修正——壳模型,使读者对原子核裂变的机制有深入的了解。

实验发现只有较重的原子核才会发生裂变反应。从图 2-1 所示的比结合能曲线可以看到,中等质量核的比结合能比重核的比结合能大。根据质量亏损原理,重核裂变为较轻核时会有能量释放出来,轻核聚合成较重的核时,也会有能量释放出来。

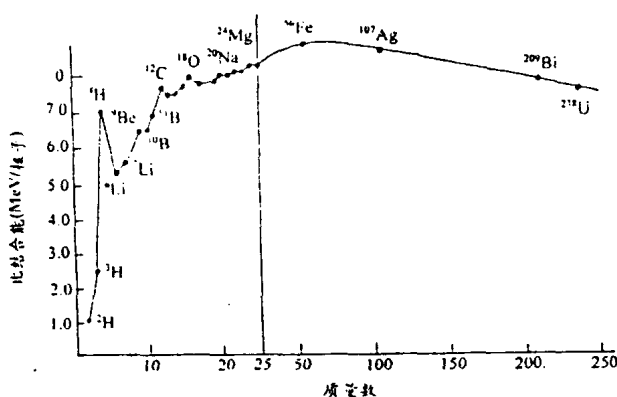


图 2-1 比结合能曲线

(引自文献[2], p. 45)

第二节 自发裂变和诱发裂变

原子核裂变分为自发裂变与诱发裂变两类。自发裂变是原子核在没有外来粒子轰击的

情况下,处于基态的原子核自行发生的裂变。实验发现只有很重的原子核才能发生自发裂变。例如 ^{252}Cf 就是一个重要的自发裂变的核。然而,它的自发裂变分支比只占总衰变率的3%左右,占主要的是 α 衰变。

自发裂变和 α 衰变是重核衰变的两种不同方式,两者相互之间有竞争。对于 ^{254}Cf 来说,自发裂变是它主要的衰变方式,其分支比为99.7%;但对比它轻的铀、钍来说,它们的自发裂变概率很小,和 α 衰变相比可以忽略。铀、钍只有在入射粒子的轰击下才能发生明显的核裂变。

原子核自发裂变的半衰期是原子核自发裂变概率大小的量度。自发裂变半衰期长的核素,其自发裂变概率就小,反之亦然。在图2-2中给出了一些锕系核素的自发裂变半衰期。从中可以看出:

(1)一般说来,较轻的锕系核素自发裂变的半衰期都比较长,例如 ^{232}Th 其半衰期长达 10^{20} a;随着质量数以及原子序数的增加,其半衰期迅速缩短,像 ^{254}Cf 其半衰期只有60.5 d。

(2)对于偶偶核(中子数和质子数都为偶数),自发裂变半衰期有随着 Z^2/A 值增加而下降的趋势,如图中虚线所示。

(3)对于同一种元素,各同位素之间自发裂变半衰期的差别很大,如图中相联实线所示。

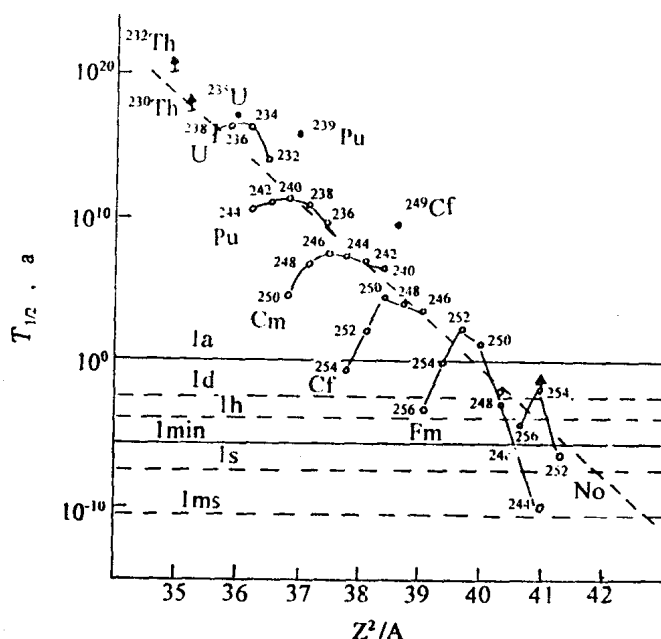


图 2-2 一些锕系核素的自发裂变半衰期
(引自文献[2], p. 297)

(4) 奇 A 核的自发裂变半衰期比相邻的偶偶核要长。对给定元素的偶偶核自发裂变半衰期,在该元素较重的同位素区域,有随着 Z^2/A 值的减少而缩短的趋势。

在《原子核裂变》一书的表 III - I 中给出了较完整的自发裂变半衰期的资料。

原子核自发裂变概率的大小主要是由裂变位垒的穿透概率所决定的。裂变位垒穿透概率大,自发裂变就容易发生,自发裂变的半衰期就短;相反如果裂变位垒穿透概率小,自发裂变不容易发生,自发裂变半衰期就长。自发裂变半衰期对于裂变位垒的高度非常敏感,位垒高度相差 1MeV 时,自发裂变半衰期可以相差 10^5 倍。

在 WKB 近似中,自发裂变位垒的穿透概率 P 由下式给出:

$$P = \exp\left\{-\left(2/\hbar\right)\int_{r_1}^{r_2}\left[2(V(r)-T)\sum_i m_i(dx_i/dr)^2\right]^{1/2}dr\right\}$$

式中, r 为形成中的裂变碎片重心之间的距离, $V(r)$ 是形变势能, T 是裂变自由度上可能有动能, X_i 是质量为 m_i 的第 i 个核子的坐标。积分要从自发裂变核稳定平衡处 r_1 开始,通过裂变鞍点,到位垒下降到 r_2 时, $[V(r)-T]=0$ 为止。

对于处于基态的核, $T=0$, 自发裂变位垒穿透概率 P 为:

$$P = \exp\left\{-\left(2/\hbar\right)\int_{r_1}^{r_2}\left[2V(r)M\right]^{1/2}dr\right\}$$

其中

$$M = \sum_i m_i(dx_i/dr)^2$$

这里忽略位垒穿过程中在未来碎片中发生的变化,因而假设每个核子移动的距离与碎片质量中心移动的距离相同。

1962 年前苏联的研究人员发现了具有异常短的自发裂变半衰期 ($t_{1/2} \approx 0.02\text{s}$) 的核素。后来鉴定这个核素为 $^{242\text{m}}\text{Am}$, Am 的一种同质异能素。除此之外, ^{240}Pu , ^{236}U 等也都是同质异能态核素,处于 Strutinsky 预言的势能曲面上第二极小,称之为形状同质异能素。由于该位垒较窄,高度只有基态时的一半左右,所以它们的自发裂变半衰期特别短。自发裂变同质异能素核的寿命给出了位垒大小的量度。

诱发裂变是指重核在某种入射粒子的轰击下,使其能量提高到裂变位垒顶部而发生的裂变。与自发裂变不同,诱发裂变是原子核反应的一种形式,是一个核经过激烈变化重新组合成两个较小的核的极其复杂的反应过程。诱发重核裂变的入射粒子可以是中子,也可以是具有能量一定的带电粒子,例如 p 、 d 、 α 等等。高能 γ 光子也能诱发重核裂变,叫光致裂变。

在原子核的诱发裂变中,中子引起的裂变最为重要,人们对它研究得也最多。这是因为中子和靶核的作用没有库仑位垒的阻挡,能量很低的中子就可以进入核内使靶核激发而发生裂变。裂变过程中又有中子发射出来,可以形成链式反应。这是原子弹和反应堆的理论基础。这也正是中子诱发的重核裂变更受重视的一个原因。为简单起见,原子核的诱发裂变均简称为原子核裂变。

第三节 原子核裂变的液滴模型

原子核裂变的过程比较复杂,理论也还不很成熟。到目前为止,用来描述原子核裂变机