

^{239}Pu 衰变纲图编评报告

梁 渝 生

中国科学院上海原子核研究所

一九七九. 九. 十一.

239

$^{235}\text{U}_{143}$ (AcU) 经 α 衰变到 $^{231}\text{Th}_{141}$ 的纲图数据, 在 1977 年已有 Nuclear Data Sheets 编评发表 (77ScND21), 到 1979 年看到最新的, 78 年出的第七版《同位素表》(78LeTI) 时, 发现二者所收数据家数基本相同, 少数几家虽有差异但影响很小, 故本编评截止日期是 1978 年上半年, 选用了约 18 篇文献。

一、 ^{235}U 基态衰变的半衰期和推荐的衰变纲图

所有的测量结果都认为 ^{235}U 是 100% α 衰变的。

对该核半衰期, 现已公认采用 $(7.038 \pm 0.005) \times 10^8 \text{ yr}$ 的数据, 这是 (71Ja07) 对比放射性的绝对测定结果。(71Ja07) 采用中等几何 α 计数法和能谱法结合, 测定了 99.999% 高浓缩的 ^{235}U 的 $T_{1/2}$ 和比放射性, 它是一篇总结性的实验文章。该文给出的是统计误差, 但指出系统误差不大于该统计误差值的二倍。(74Ja17) 进一步讨论于 (71Ja07) 的结果可能受到的 ^{234}U 、 ^{238}U 的影响等问题, 而仍维持了原推荐值。

其余关于 ^{235}U 半衰期的测定家数太多, 择其要者录于下:

$(6.85 \pm 0.09) \times 10^8 \text{ yr}$, 比放射性法 (74De19, A. J. Deruytter et al, P.R.C10(1974)383)

$(6.92 \pm 0.09) \times 10^8 \text{ yr}$, 比较天然铀中 ^{235}U 与 ^{238}U 活性 (65De19, Deruytter et al, Nucl. Sci. Eng. 21(1965)325)

$(7.13 \pm 0.09) \times 10^8 \text{ yr}$, α 比活性法 (65Wh05, J. Nucl. Energy, A/B, 19(1965)33)

本编评采用 $(7.038 \pm 0.005) \times 10^8 \text{ yr}$ 作为推荐值, 以与 (77Sc ND21) , (78LeTI) , (71Ja07) 和 (74Ja17) 等国际广泛采用值相一致。

对 ^{235}U 的自发裂变有以下三家测量结果:

(62Se67) 采用测比活性法与质谱法结合, 给出: $T_{1/2}(\text{SF}) = (1.9 \pm 1.1) \times 10^{11} \text{ yr}$, 或 $\lambda(\text{SF}) = 3.65 \times 10^{-12} \text{ yr}^{-1}$

(66AtEn) 采用玻璃板探测器长期辐照后, 再对计数作探测效率等校正得到: $T_{1/2}(\text{SF}) = (3.6 \pm 0.9) \times 10^{11} \text{ yr}$, 或 $\lambda(\text{SF}) = 2.0 \times 10^{-12} \text{ yr}^{-1}$.

(74GrZA) 该文指出: 奇A核和奇奇核的 $T_{1/2}(\text{SF})$ 比同样裂变参数的偶偶核, 要长几个数量级, 但与其他偶奇核相比, ^{235}U 与 ^{233}U 的这个差值较小, 本文要澄清对系统学的这一偏差。采用了 Spinner detector 来测量 ^{235}U 的自发裂变率, 结果如下:

(1) 采用 99.7% 浓缩 ^{235}U , 测 $\lambda(\text{SF})$ 的上限, 未校正 (α, n, f) 和 ^{234}U 、 ^{236}U 影响, 但精度高: $\lambda(\text{SF}) < 3.9 \times 10^{-12} \text{ yr}^{-1}$,

$$\text{即 } T_{1/2}(\text{SF}) = 1.8 \times 10^{11} \text{ yr},$$

(2) 采用 99.7% 浓缩 ^{235}U , 校正了 (α, n, f) 和 ^{234}U 、 ^{236}U 、 ^{238}U 的影响, 但是估计值, 误差较大, 得:

$$\lambda(\text{SF}) \sim 10^{-12} \text{ yr}^{-1}, T_{1/2}(\text{SF}) = 6.9 \times 10^{11} \text{ yr}$$

根据以上情况, 我们推荐 ^{235}U 的自发裂变半衰期为:

$$T_{1/2}(\text{SF}) = 1.8 \times 10^{11} \text{ 年},$$

从而推得其自发裂变分支比为: $\text{SF}\% \sim 4 \times 10^{-6}\%$ 这是与 (77Sc ND21) 相符合。

对于 ^{235}U 的衰变, 推荐以下实用纲图(图1)。

二、 ^{233}U 的各 α 衰变分支的参数

关于 ^{233}U 的 α 分支的能量和强度已有几个编评：(77ScND21)、(78LeTI)、(71Ar48)、(73Ryt1)，它们引证了大量原始数据而得到的编评结果彼此大致相同，只对少数几个分支有分歧，现根据较新的实验(75Val1)(γ 单谱和 $\alpha-\gamma$ 符合确定子核 ^{233}Th 的能级)，对以上几家结果共同之处取出来，而舍弃它们的分歧点，推荐一套 α 分支参数，见(表1)。

(表1) $^{233}\text{U}-\alpha$ 衰变各 α 分支的能量与强度

以所到达子核能级命名的 α 射线分支	$E_{\alpha}(\text{Kev})$	$I_{\alpha}(\%)$
$\alpha_{4,2}$	4150	0.7
$\alpha_{3,8}$	4216	6
$\alpha_{3,3,1}$	4270	0.8
$\alpha_{2,7,8}$	4322	4
$\alpha_{2,7,5}$	(4325)	0.2
$\alpha_{2,4,1}$	4358	0.36
$\alpha_{2,3,7}$	4362	18
$\alpha_{2,2,1}$	(4377)	0.3
$\alpha_{2,0,5}$	4394	55
$\alpha_{1,8,6}$	4412	3
$\alpha_{1,6,2}$	4436	0.7
$\alpha_9,6$	4502 ± 2	1.5
$\alpha_{8,2}$	4556 ± 2	4.2
α_0	4598 ± 2	5.0

特别应指示，根据 $^{233}\text{U}-\alpha$ 能谱并结合部分 $\alpha-\gamma$ 符合实验定出的上述 α 分支比，与根据 $(\gamma+\text{ce})$ 跃迁强度归一推算出的 α 分支强度有较大出

入, 在(77ScND21)中反映了这一情况, 但未能克服其矛盾。影响这一不平衡或称差异的因素不少, 主要是由于内转换系数的不确定性太大所致。所以, 对于 α 分支参数仍采用 α 谱的实验结果的上述综合值, 对于多数 α 分支的能量与强度的推荐值的误差是难于给出的。看来对于 ^{235}U 的衰变, 还需进一步作高分辨率 $\alpha-\gamma$, $\alpha-\alpha\alpha$ 符合谱的实验研究。

三、 ^{235}U 的 γ 跃迁参数:

对于 ^{235}U 的 γ 射线的能量和(相对与绝对)强度主要有四家实验数据: (71KrZH), (74HeYW), (74TeO3)和(76Va11), 它们都是以Ge(Li) γ 谱分析为基础, 并作了Ge(Li)-Ge(Li) $\gamma\gamma$ 符合实验分析。在(77ScND21)和(78LeTI)二大编评中, 综合以上四家, 而以最新的一家(76Va11)为基础, 给出了完全一致的对 ^{235}U 的 γ 射线的能量和绝对强度的推荐值。本编评核查了以上几家数据的情况后, 仍采用相同的推荐值, 列于(表2)。对于 γ 射线的绝对强度的归一, (76Va11)采用了 $\alpha-\gamma$ 符合法, 确定了 $E_{\gamma}=186\text{Kev}$ 的 $\Gamma=64\%$, 其余相对强度值都可通过这一点归一到绝对强度, 这与(64HyO2)引用的归一标准是一致的。表内所列的 γ 射线共26条, 其 $\Gamma>0.01\%$ 。

为了与 α 能谱测到的 α 分支各参数对比, 需要知道各 γ 跃迁的内转换系数, 但对 ^{235}U 这方面的实验数据很缺乏, 现将(60IzF)测得的部分内转换系数值列出来: (用闪烁晶体测 γ 与用电离室测 α 符合法)

对于 $E_{\gamma}=109, 144, 186\text{Kev}$ 三支 γ 射线的“内转换强度与 γ 射线强度之比” $C_{ek}/\Gamma(\Gamma_{1..}+\Gamma_{1..}+\Gamma_{1..})=(0.10\pm0.02)$

$$C_{eL}/\Gamma(\Gamma_{1..}+\Gamma_{1..}+\Gamma_{1..})=(0.07\pm0.06)$$

而对于 $E_{\gamma}=196\text{Kev}$ 的K转换系数

$$\alpha_K=C_{eK}/\Gamma_{1..}=(2.0\pm0.5)$$

(表2) ^{235}U 衰变的 γ 跃迁参数

E_γ (keV)	Γ_γ (%)	α_{th}	$(Ce+\Gamma)$ (%)
3.155	0.016 ± 0.005	700	11
4.14 ± 0.3	0.03 ± 0.02	52	1.6
4.196 ± 0.15	0.04 ± 0.02	600	24
5.130 ± 0.10	0.020 ± 0.015	278	6
72.7 ± 0.2	0.11	52	5.8
74.96 ± 0.03	0.06 ± 0.01	0.26	0.076
96.09 ± 0.02	0.086 ± 0.011	13.9	1.3
109.14 ± 0.02	1.5 ± 0.2	0.095	1.6
115.4 ± 0.2	0.07 ± 0.04		0.10
140.77 ± 0.08	0.22 ± 0.03	0.22	0.27
143.76 ± 0.02	1.05 ± 0.8	0.209	13
150.94 ± 0.02	0.076 ± 0.010	6.1	0.54
163.35 ± 0.02	4.7 ± 0.4	0.156	5.4
182.7 ± 0.2	0.40 ± 0.05	3.5	1.8
185.715 ± 0.005	54	0.115	60
194.94 ± 0.01	0.59 ± 0.06	0.10	0.66
198.90 ± 0.02	0.037 ± 0.006	2.8	0.14
202.12 ± 0.02	1.0 ± 0.1	2.68	3.7
205.311 ± 0.010	4.7 ± 0.4	0.090	5.1
215.28 ± 0.03	0.027 ± 0.003	2.2	0.086
221.38 ± 0.02	0.10 ± 0.01	2.1	0.31
233.50 ± 0.03	0.04 ± 0.01	1.8	0.11
240.93 ± 0.04	0.08 ± 0.02	1.6	0.21
246.83 ± 0.04	0.06 ± 0.02	1.5	0.15
275.30 ± 0.10	0.049 ± 0.005	1.1	0.103
另外条内转换			
19.59			~ 61
120.0			~ 0.9

显然，这组数据太粗，也很不完整，有待于精细测量来澄清。为了求出 γ 跃迁强度($\gamma + Ce$)，只好全面采用(77ScND21)的理论值 α_{th} ，现将 α_{th} 和求出的($\Gamma + Ce$)强度值结果，也列在(表2)内。正如前述，这一组($\Gamma + Ce$)强度值与 α 谱测量结果是对不起来的，在(表2)中就不再列出这一差异或称不平衡的情形(在(77ScND21)中列出了这一差异，但其具体情形与本编评也不完全相同)。这就说明，重测 ^{235}U 衰变的内转换系数，并进行一系列高分辨率的符合实验，对于澄清 ^{235}U 衰变纲图是必须的。

四、 ^{235}U 的X射线参数：

关于 ^{235}U 的X射线的数据是很缺乏的，现有的情况：

- (1)在(64Hy02)书中引用了一个测定值：K-X射线的强度11%；
- (2)在(75Val11)中用 $K_L - \gamma$ 符合法研究了L-X射线，但未给出有关其能量和强度的具体数据；
- (3)在(77ScND21)中采用ORNL-5114(1970)的MEDLIST程序，根据能级纲图系统学，推算出 ^{235}U 的X射线：

K-X射线强度(9.0 ± 0.5)%，

L-X射线强度(4.6 ± 0.6)%

这与(1)没有明显矛盾，可选作推荐值。

参 考 文 献

- (52Sc67) Segre, Phys. Rev., 86 (1952) 21
 (60Ez7) В.Б. АН СССР, Сер. Физ. 24 (1960) 1092
 (64 Hy02) The Nuclear Properties of the Heavy Elements, Vol. II (64) P. 730
 (65De19) Deruytter et al, Nucl. Sci. Eng., 21 (1965) 325
 (65Wh05) J. Nucl. Energy, A/B, 19 (1965) 33
 (66AtEn) Е.М. Александров, Атомная Энергия, 20(66)315

- (71Ar48) Nucl.Data Sheets, B6, 287 (1971)
- (71KrZH) ANCR-1016 (1971) 75
- (73Ryt1) ADNDT 12 (1973) 479
- (74De19) A.J.Deruytter et al., P.R., C10 (1974) 383
- (74 GrZA) Grütter et al., Proc.Symp.Phys.Chem of Fission,
3rd., Vol. I (1973) 305
- (74HeYW) R.L.Heath. ANCR-1000-2 (1974)
- (74 Ja17) P.R., C10 (1974) 386
- (74Te03) N.P., A228 (1974) 432
- (75Va11) N.P., A251 (1975) 225
- (77ScND21) M.R.Schmorak, N.D.S., 21 (1977) 91.
for A=231, 235, 239, 数据收到 1977年 2月.
- (78LeTI) Lederer et al., eds., Table of Isotopes, 7th ed.,
(Lawrence Berkeley Lab, 1978)

[71Ja07] Phys. Rev., C 4 (71) 1889.