

# 铷源中铷同位素及其子体的测定

乔盛忠 刘亨军

关键词  $^{250}\text{Cf}$ ,  $^{252}\text{Cf}$ , 铷子体的测定, 丰度比, 自发裂变衰变比率。

## 一、引言

超铀元素研究是四十年代发展起来的一门较新的学科。元素铷, 特别是核素  $^{252}\text{Cf}$  是能用反应堆辐照生产的最使人感兴趣的超铀同位素之一, 也是目前最具有应用价值的超铀同位素之一<sup>[1]</sup>。它有  $\alpha$  衰变及自发裂变两种衰变方式。1 g  $^{252}\text{Cf}$  能产生 39 W 热量并发射出  $2.34 \times 10^{12}$  n/s。它在原子能工业、采矿、医学以及科学研究等方面都有着重要的用途<sup>[2-5]</sup>。

本工作是将铷源中的铷和衰变子体及其它核素经严格的化学分离后, 用 Si(Au) 面垒型探测器  $\alpha$  谱仪鉴定铷产品的纯度、测定铷产品中  $^{250}\text{Cf}$  与  $^{252}\text{Cf}$  的相对含量、测定  $^{252}\text{Cf}$  的自发裂变衰变比率及铷流分中铷和其它核素的相对含量; 用  $\alpha$ - $\gamma$  符合谱仪测定  $^{238}\text{Pu}$  与  $^{241}\text{Am}$  的相对含量; 用栅网电离室测定铷和铷流分样品的衰变率。还测定了铷源中  $^{250}\text{Cf}$ ,  $^{250}\text{Cf}$ ,  $^{248}\text{Cm}$ ,  $^{245}\text{Pu}$ ,  $^{245}\text{Cm}$ ,  $^{243}\text{Pu}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{241}\text{Am}$  和  $^{238}\text{Pu}$  等核素的相对和绝对含量, 测出了不同时间  $^{250}\text{Cf}$  和  $^{252}\text{Cf}$  的丰度, 结果与理论计算值一致; 测得  $^{252}\text{Cf}$  的自发裂变衰变比率为 3.07%。

## 二、实验装置和样品制备

实验中采用了三种核物理探测仪器, 方框图如图 1 所示。经符合法进行效率标定后的

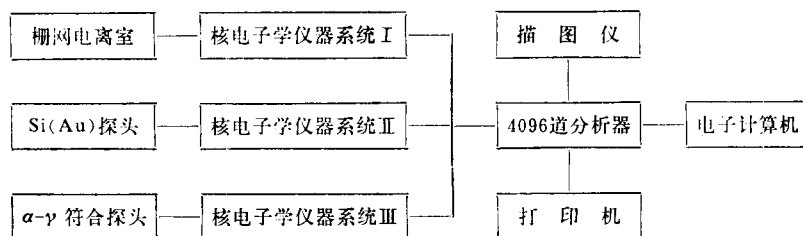


图 1 实验装置方框图

栅网电离室用于衰变率的测定。优点是设备简单、操作方便、性能稳定可靠。Si(Au)面垒型探测器  $\alpha$  谱仪在不改变真空和气压的条件下可连续测定六个放射源, 并在低温(为了降低探测器电流性噪声)下工作, 最佳能量分辨率为 11.9 keV(对 5.486 MeV)。 $\alpha$ - $\gamma$  符合谱仪由 Si(Au)面垒型探测器  $\alpha$  谱仪与井型 NaI(Tl)闪烁探测器  $\gamma$  谱仪组成, 符合谱仪的能量分辨率为 13.8 keV(对 5.486 MeV)。

样品按下法制备: 将铷源用 10 N  $\text{HNO}_3$  + 2 N 浓 HCl 溶解, 经阴离子交换和反相层分离获得铷、铷样品, 制成薄膜衬底源和电沉积源用于测定。

### 三、实验结果和讨论

1.  $^{250}\text{Cf}$  与  $^{252}\text{Cf}$  丰度比值的测定 实验中采用 Si(Au)面垒型探测器  $\alpha$  谱仪对半衰期相差较大的  $^{250}\text{Cf}$  与  $^{252}\text{Cf}$  在不同时间的丰度比值进行了测定, 样品的  $\alpha$  能谱示于图 2。解析  $\alpha$  能谱计算得  $^{250}\text{Cf}$  与  $^{252}\text{Cf}$  的比值, 数据列于表 1。

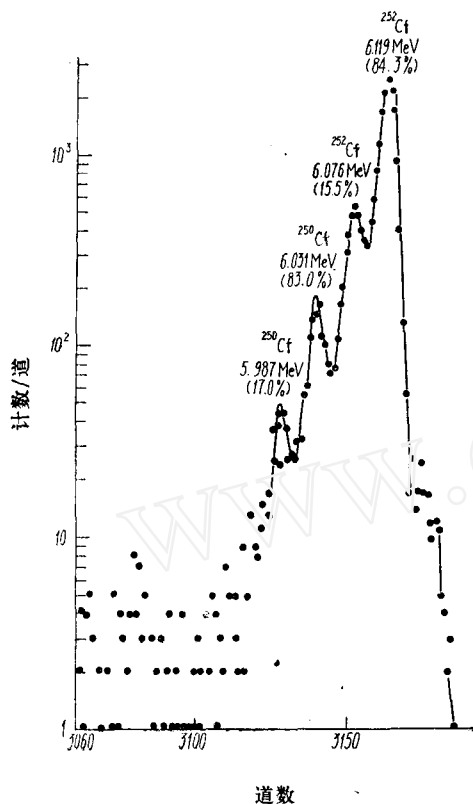


图 2 铈产品的  $\alpha$  能谱

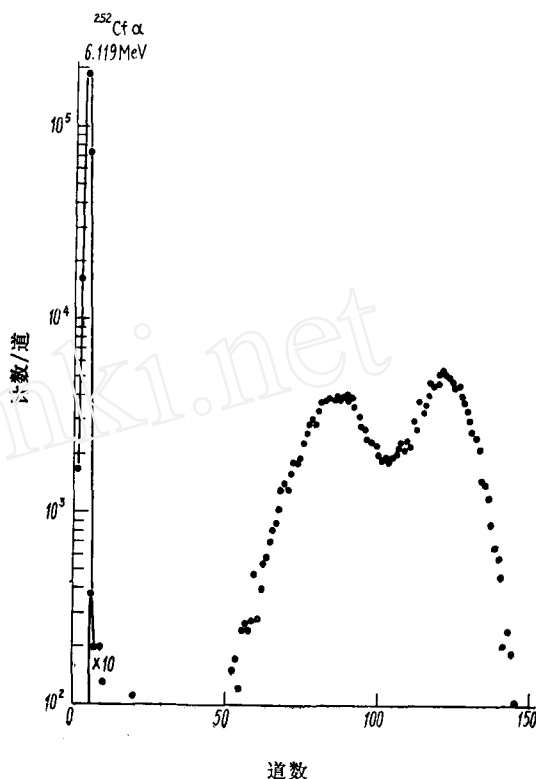


图 3  $^{252}\text{Cf}$  产品的  $\alpha$  衰变及自发裂变碎片能谱

表 1  $^{250}\text{Cf}$  与  $^{252}\text{Cf}$  比值的测定结果

测量次数	$\alpha$ 放射性比, %	重量比, %
1	4.4	$21.5 \pm 0.30$
2	4.8	$23.4 \pm 0.34$

\* 两次测量相隔时间  $t = 135 \text{ d}$ 。

对这个测量数据, 根据衰变规律进行了检验。设  ${}^0N_0, {}^0N_t, {}^0T_{1/2}, \lambda_0; {}^2N_0, {}^2N_t, {}^2T_{1/2}, \lambda_2$  分别为  $^{250}\text{Cf}$  和  $^{252}\text{Cf}$  第一次和第二次测定的丰度、半衰期和衰变常数。设 A, B 分别为第一次和第二次测定时  $^{250}\text{Cf}$  与  $^{252}\text{Cf}$  的丰度比值。

则有

$$A = {}^0N_0 / {}^2N_0,$$

$$B = {}^0N_t / {}^2N_t = \frac{{}^0N_0 e^{-\lambda_0 t}}{{}^2N_0 e^{-\lambda_2 t}} = A e^{-\lambda_0 t} / e^{-\lambda_2 t} \quad (1)$$

由于在  $t$  时间内由  $^{250}\text{Cf}$  俘获自发裂变中子而生成的  $^{252}\text{Cf}$  量很小, 因此在式 (1) 中不考虑此种贡献。式中  $t=135\text{ d}$ ,  $A=21.5\%$ ,  ${}^0T_{1/2}=13\text{ y}$ ,  ${}^2T_{1/2}=2.65\text{ y}$ , 计算得  $B=23.3\%$ , 此值与测量值相符。

2.  $^{252}\text{Cf}$  自发裂变衰变比率的测定  $^{252}\text{Cf}$  在衰变时除了发射  $\alpha$  粒子外, 还发射一定量的自发裂变中子和裂变碎片。本工作采用 Si(Au)面垒型探测器  $\alpha$  谱仪测定  $^{252}\text{Cf}$  的自发裂变碎片放射性  $N_f$  和  $^{252}\text{Cf}$  加  $^{250}\text{Cf}$  的总  $\alpha$  放射性  $N_a$ , 再借助(1)式中所测定的结果, 经计算得  $^{250}\text{Cf}$  与  $^{250+252}\text{Cf}$  的  $\alpha$  放射性比值  $a=4.6\%$ , 便可确定  $^{252}\text{Cf}$  的自发裂变衰变比率  $F$ , 其原理和方法如下:

$$F = \frac{N_f}{2(N_a - aN_a) + N_f} \quad (2)$$

式中未考虑  $^{252}\text{Cf}$  三分裂和  $^{249}\text{Cf}$ 、 $^{251}\text{Cf}$  的  $\alpha$  及  $^{249}\text{Cf}$ 、 $^{250}\text{Cf}$ 、 $^{251}\text{Cf}$  自发裂变碎片的贡献。 $N_a$ 、 $N_f$  为相同时间的计数或计数率。自发裂变产生方向相反的两个碎片, 而实际测得的  $\alpha$  粒子数只是相同立体角下的一半, 故  $\alpha$  计数要乘以 2。测得的能谱示于图 3。测量结果列在表 2。

表 2  $^{252}\text{Cf}$  自发裂变衰变比率的测量结果

样 品	$N_a$ , cpm	$N_f$ , cpm	$b^*$ , %	$F$ , %
1	254070	15406	5.67	$3.08 \pm 0.05$
2	256955	15799	5.79	$3.12 \pm 0.05$
3	68797	4080	5.60	$3.01 \pm 0.06$
4	218470	13118	5.66	$3.05 \pm 0.05$

\*  $b = N_f / N_a + N_f$

3.  $^{252}\text{Cf}$  的定量测定 一般用自发裂变中子测定法对  $^{252}\text{Cf}$  进行定量<sup>[6]</sup>, 本工作通过测定  $^{252}\text{Cf}$   $\alpha$  放射性对  $^{252}\text{Cf}$  进行定量。实验中采用栅网电离室测定  $^{252}\text{Cf}$ 、 $^{250}\text{Cf}$  的  $\alpha$  及  $^{252}\text{Cf}$  自发裂变碎片的总放射性计数率  $N$  (其它贡献忽略不计), 由  $a$  值(4.60%) 和表 2 中的  $b$  值(5.68%)校正  $^{250}\text{Cf}$  的  $\alpha$  衰变和  $^{252}\text{Cf}$  自发裂变碎片放射性计数率, 原理如下:

$$D = 2[(N - bN) - a(N - bN)] \quad (3)$$

$$W = D / S \quad (4)$$

式中  $W$ 、 $D$  和  $S$  分别为  $^{252}\text{Cf}$  的重量、衰变率和  $\alpha$  比放射性( $S=1.25 \times 10^9\text{ dpm}/\mu\text{g}$ )<sup>[7]</sup>。测量和计算的结果列在表 3 中。再根据(1)式的结果, 便可确定钢源中  $^{250}\text{Cf}$  及钢产品的量。

表 3  $^{252}\text{Cf}$  源定量测定结果

样 品	$N$ , cpm	$D$ , dpm	$W$ , $\mu\text{g}$
1	2425	$4365 \pm 79$	$(3.49 \pm 0.06) \times 10^{-8}$
2	2390	$4300 \pm 78$	$(3.44 \pm 0.06) \times 10^{-8}$
3	7437	$13390 \pm 232$	$(1.07 \pm 0.02) \times 10^{-8}$
4	7418	$13350 \pm 230$	$(1.07 \pm 0.02) \times 10^{-8}$
5	61890	$111420 \pm 1805$	$(8.91 \pm 0.14) \times 10^{-8}$
6	62010	$111630 \pm 1808$	$(8.93 \pm 0.14) \times 10^{-8}$

4. 铀的衰变子体及其它核素的测定 经放射分离后, 对铀流分用 Si(Au) $\alpha$  谱仪,

$\alpha$ - $\gamma$  符合谱仪及电离室进行了测定。它的  $\alpha$  和  $\alpha$ - $\gamma$  符合能谱表示在图 4 中，解析  $\alpha$  谱可确定各核素的  $\alpha$  放射性比；由  $\alpha$ - $\gamma$  符合谱可确定  $^{238}\text{Pu}$  与  $^{241}\text{Am}$  的  $\alpha$  放射性比；再由电离室测定的总  $\alpha$  放射性衰变率，便可确定样品中各核素的衰变率，结果列在表 4 中。样品中的  $^{248}\text{Cm}$ ， $^{245+246}\text{Cm}$  分别为  $^{252}\text{Cf}$ ， $^{249+250}\text{Cf}$  的衰变子体； $^{238}\text{Pu}$  为  $^{242}\text{Cm}$  的衰变子体；其它的锔锎核素估计主要是从  $^{252}\text{Cf}$  辐照靶中遗留下来的。

表 4 锔流分中各核素的  $\alpha$  放射性含量

核 素	$^{248}\text{Cm}$	$^{245+246}\text{Cm}$	$^{243+244}\text{Cm}$	$^{242}\text{Cm}$	$^{241}\text{Am}$	$^{238}\text{Pu}$
各核素 $\alpha$ 放射性占总 $\alpha$ 放射性的比, %	14.0 ± 0.4	46.7 ± 1.2	12.2 ± 0.4	1.7 ± 0.1	16.0 ± 0.5	8.9 ± 0.3
各核素衰变率, dpm	541 ± 15	1751 ± 44	457 ± 14	65 ± 4	600 ± 17	333 ± 11

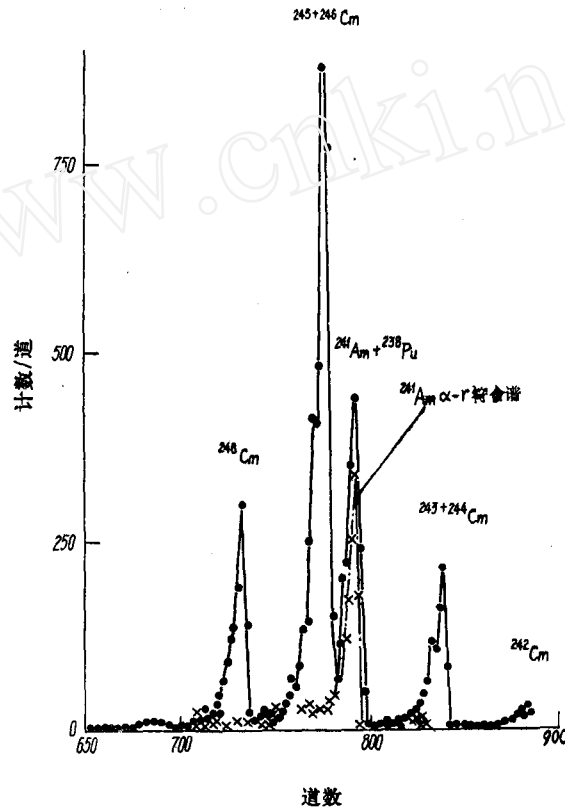


图 4 锔流分的  $\alpha$  能谱及  $\alpha$ - $\gamma$  符合能谱  
 ·—— $\alpha$  能谱; ×—— $\alpha$ - $\gamma$  符合能谱。

#### 四、小 结

1. 本工作通过测定  $\alpha$  放射性对锔源中  $^{252}\text{Cf}$  进行定量，方法的不确定度为 1.5% 左右。在确定了  $^{252}\text{Cf}$  的量后，借助于  $\alpha$  谱仪和解谱技术，便可确定  $^{250}\text{Cf}$  等同位素及锔源的总量。

2. 随着时间的推移,  $^{250}\text{Cf}$  和  $^{252}\text{Cf}$  的相对含量有明显的变化, 但只要准确测得某一时刻的丰度比, 便可计算出任何一时刻的相对比例。

3. 实验测定的  $^{252}\text{Cf}$  的自然裂变衰变比率为 3.07%, 与文献值 3.1% 相符。

4. 所建立的铜流分中各核素的测定方法和所测得的含量, 对于超铀元素的研究及对反应堆辐照情况的了解都是十分有用的。

本工作中化学分离由庄人杰等同志完成; 佟伯庭参加了一些测量工作; 苏树新协作制源。

### 参 考 文 献

- [1] R. D. Baybary, *Atomic Energy Review*, 8(2), 327(1970).
- [2] R. L. Stetson, *Nucleonics*, 24(11), 44(1966).
- [3] J. R. Nichols, *Nucl. Appl.* 4,382(1968).
- [4] 张耀华, 原子能译丛, 3,57(1974).
- [5] C. Keller, *The Chemistry of the Transuranium Elements*, Weinheim, Verlag Chemie, 575(1971).
- [6] R. R. Spencer, CONF-791058-27(1979).
- [7] R. N. Chanda et al., IN-1261(1970).

(编辑部收到日期: 1981年2月28日)

## 阴离子交换纯化与浓缩 2 DW 中铈

秦忠宪 孙中汉 刘智绵

关键词 阴离子交换, 纯化, 浓缩, 2 DW 溶液, 铈。

### 一、前 言

核燃料后处理厂 Purex 流程 2 DW 溶液的主要组分及其浓度为:  $\text{HNO}_3 \sim 1 \text{ N}$ ; Np, U, Pu, Th 分别为 0.16, 30—90, 0.4, 0.05 mg/l; Zr-Nb 及 Ru 的比放  $\sim 4.4 \times 10^{-4}$  eqRa/l。要求提取的铈产品(硝酸溶液)达到如下指标: Th/Np(重量)  $\leq 0.5\%$ , U/Np(重量)  $\leq 2.5\%$ , Pu/Np(重量)  $\leq 0.1\%$ , 比放  $\leq 5 \times 10^{-2}$  meqRa/gNp; 铈收率  $\geq 90\%$ 。

从 2 DW 中提取铈用 TBP 萃取法似乎是容易实现的, 然而还得用离子交换法精制。因此, 我们认为不如单用阴离子交换法处理来得简单。

### 二、实 验 部 分

1. 主要材料与试剂 树脂: 257  $\times$  10, 北京铀矿选冶研究所试制的一种季铵强碱性大孔阴离子交换树脂。使用前用硝酸转为硝酸根型, 经风干、研磨、过筛, 取粒度为 0.2—0.25 mm 部分。

交换柱: 系带有可通恒温循环水夹套的玻璃柱。底部有烧结玻璃砂支承树脂。树脂床高为 400 mm。由于内径不同, 床体积分别为 2.6, 3.6, 4.0 ml。

铈-237 贮液: 未辐照过的  $\text{NpO}_2\text{-Al}$  靶经 10 N  $\text{HNO}_3$ -0.002 M  $\text{Hg}^{2+}$  加热溶解, 经离子交换纯化。铈浓度为 6.5 mg/ml, 硝酸浓度  $\sim 1 \text{ N}$ 。