

工 作 简 讯

γ 闪烁谱仪测定 ^{235}U 含量

王德民 朱芝仙 徐通敏 邓坤杰

(北京大学技术物理系)

一、引 言

用 γ 闪烁谱仪测定经过浓集或贫化的天然铀中的 ^{235}U 含量,虽然准确度不如质谱方法,但有其长处,如仪器简单,实验方法容易掌握等。随着半导体探测器的发展,还可以进一步提高准确度^[1]。

可以选择 ^{235}U 的 184 千电子伏 γ 射线来比较浓集(或贫化)铀样品与天然铀样品(当作参比样品)*的 γ 射线强度,将其比值(我们称丰度比)乘以天然铀(或已知含量的参比样品)中 ^{235}U 含量,就可求得浓集(或贫化)样品中 ^{235}U 的含量。

本工作在文献[2]的基础上作了如下改进:(1)原先用重铀酸铵形式灼烧成的 U_3O_8 呈不规则硬块,很不易碾成细粉,因而就无法做到使待测样品源与参比样品源尽可能平行一致。本工作采取 8-羟基喹啉作铀的沉淀剂,灼烧后的 U_3O_8 非常松软,易形成均匀的细粉末;(2)本工作对样品盘的几何平行性及装源的平行性采取了严格的控制,从而减少了误差;(3)在测量方法上用积分轮换计数方法代替了原先比较面积的方法,使得手续简便、误差减少;(4)在去 ^{234}Th 问题上作了进一步的条件实验。改进后使分析结果的误差从 1.5% 减到 0.43%。

二、实 验

1. 仪器和试剂 单晶 γ 谱仪,探头用 $\phi 50 \times 50$ 毫米 NaI(Tl) 晶体连接聚焦型光电倍增管,对 ^{137}Cs γ 射线分辨率为 12%。整个探头放在 5 厘米厚的铅室中以减少本底。所用化学试剂均为分析纯。

2. 源的制备 先用离子交换法去除样品中的铀子体 (^{234}Th , ^{234}Pa 等),采用国产 732 型($\times 8$) H^+ 型阳离子交换树脂,柱径 13 毫米,柱高 120 毫米。将天然铀样品及待测样品转换成 $\text{pH} \approx 3$ 的铀酰溶液,上柱吸附,用蒸馏水洗涤,然后用 0.6 N HCl 解吸 UO_2^{2+} ,流速为 2 毫升/分。铀被解吸的完全度用 $\text{K}_4[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ 或铀试剂 III 检查。留在柱子上的铀子体用约 10 倍柱体积的 6 N HCl 把它们淋洗下来,再用蒸馏水将树脂洗至中性以待再用。经过几次实验后,树脂要用酸、碱反复处理三次使之再生。

* 当待测样品 ^{235}U 丰度偏离天然铀丰度较大时,则应取丰度接近的参比样品进行对比测量,才不致增加误差。

去子体后的铀溶液，加热至 80°C，加入 8-羟基喹啉 1 克，加浓氨水，调 pH=8~9，此时产生大量疏松状桔红色的 $[\text{UO}_2(\text{OX})_2]_2 \cdot \text{HOX}$ 沉淀，经加热老化后过滤、烘干、灰化，最后在马弗炉 (850°~900°C) 中灼烧 1 小时，即得很松软的黑色 U_3O_8 ，再仔细研成粉末。

为了降低测量误差，对有机玻璃制成的测量盘，用螺旋测微器将其内径、外径及盘底厚度严格检查，挑选数据相同者使用。称取一定量 U_3O_8 (0.4000~0.5000 克) 装入合格的测量盘中，上面盖上与测量盘内径密合的有机玻璃片，再插入圆柱形小铁柱在台钳上均匀压紧，如图 1、2 所示。至此即可用于测量。

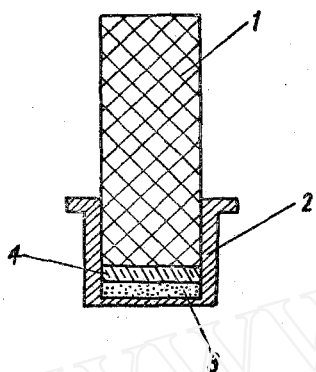


图 1 压源情况
1——铁柱；2——有机玻璃盘；3—— U_3O_8 粉末；4——有机玻璃盖。

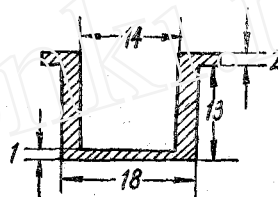


图 2 测量盘形状

全部过程要求在 8~10 小时内完成，此时新生成的 ^{234}Th 约为 1% 左右，对测量结果无影响。

3. 测量方法及实验结果 在 γ 谱仪探头上装置一个圆环，以固定样品盘的位置。将谱仪阈值定在天然铀 γ 能谱的 94 千电子伏与 184 千电子伏两峰之间的谷处 (25 伏)，道宽 20 伏，这样基本上记录的都是 ^{235}U 的 184 千电子伏 γ 射线。

(1) 平行性实验。用天然铀经过相同的平行的化学操作制成两个 (也可三、四个) 源 (400~500 毫克) 进行轮换计数，每源测 5 分钟，约 8000 计数。为了不使统计误差太大，每源一般轮测 50~70 次 (总计数约 50 万)。轮测的原因，一是因 ^{234}Th 在不断增长，如果将一个源连续测 50×5 分钟后，再测第二个源 (或第三、第四个源)，则势必后测的源的计数要比先测的源计数为大；二是仪器长时间的严格保持稳定比较困难，而轮测就可减少各个源彼此的比值的误差，因而更接近理论值 (1.000)。我们用上述方法经过 65 遍重复实验，结果见表 1，两源测量结果的比值为 1.0007 ± 0.0043 。这样，每一遍的标准误差为 0.43%。这里的误差包括了全部的化学操作，源的几何位置，仪器不稳定性及核蜕变统计涨落等方面的误差因素。实验结果还表明，这些误差服从统计分布。

(2) 自身比实验。将一个源进行 5 分钟一次计数，转动位置，重复 100 次，然后将 1, 3, 5, ……99 奇数组的累计数与 2, 4, 6, ……100 偶数组的累计数比，理论上应为 1.000。这样的实验我们做了 100 遍，结果为 0.999 ± 0.0039 ，每一遍的标准误差为 0.39%。这个实验的误差只包括了仪器的不稳定性，几何位置及放射性统计误差，它比前述实验的误差小些，自然是合理的。

(3) 浓集铀样品的测定。按上述 (1) 的办法对几种浓集铀样品进行了测量，结果见

表 1 去钍后 U_3O_8 源的平行性实验结果*

遍 次	两源计数的比值	遍 次	两源计数的比值	遍 次	两源计数的比值	遍 次	两源计数的比值
1	1.0033	18	1.0045	35	0.9930	52	1.0053
2	0.9952	19	1.0050	36	0.9960	53	1.0006
3	0.9952	20	1.0042	37	0.9959	54	1.0037
4	1.0000	21	1.0005	38	1.0067	55	1.0053
5	0.9992	22	1.0030	39	1.0100	56	1.0030
6	0.9995	23	1.0050	40	0.9988	57	1.0047
7	0.9988	24	0.9975	41	0.9942	58	1.0016
8	1.0017	25	1.0070	42	0.9968	59	1.0039
9	0.9958	26	1.0102	43	0.9938	60	0.9937
10	1.0065	27	1.0032	44	1.0083	61	0.9939
11	1.0070	28	1.0019	45	0.9994	62	1.0060
12	1.0014	29	0.9999	46	0.9992	63	0.9995
13	1.0038	30	0.9953	47	0.9988	64	0.9980
14	1.0052	31	0.9972	48	0.9951	65	0.9989
15	0.9979	32	1.0015	49	0.9963		
16	1.0050	33	0.9971	50	0.9935		
17	1.0012	34	0.0976	51	1.0000		

计算结果: 1.0007 ± 0.0043 , 每遍标准误差 $\sigma = \pm 0.43\%$

* 源重 500 毫克, 每源总计数约 50 万。

表 2 浓集铀样品测定结果*

丰 度 比 值		相对于质谱法的 准确度, %
质 谱 法	γ 谱仪法	
1.0202 ± 0.0015	1.0218 ± 0.0043	+0.15
1.0202 ± 0.0015	1.0231 ± 0.0043	+0.28
1.0101 ± 0.0015	1.0082 ± 0.0043	-0.19
1.0101 ± 0.0015	1.0126 ± 0.0043	+0.25

* 参比样品用天然铀。

表 2。从表中可以看到, 其准确度相对于质谱法为 2~3%, 小于本方法的统计误差 (0.43%)。

三、讨 论

1. 在去 ^{234}Th 后的 1~2 天内进行测量, 结果较好。如时间再延长, 则由于 ^{234}Th 的增长, 渐渐地愈益干扰 ^{235}U 184 千电子伏峰的计数。

图 3 表明 ^{234}Th 增长的情况。图中 G_1 表示第一天去 ^{234}Th 后所制得的源的计数, G_2, G_3, \dots 依次表示第二天, 第三天, \dots 所制得的源的计数; $G_1/G_2, G_1/G_3, \dots$ 表示 G_1 相对于 G_2 增长了一天的 ^{234}Th , 相对于 G_3 增长了两天的 $^{234}Th, \dots$ 。 ^{234}Th 多长一天会增加计数约 2%, 故在低浓集度 (如 1%) 的情况下, 会使测量结果随 ^{234}Th 的增长而愈益偏低。

2. ^{238}U 的子体 ^{234}Pa 有硬 β , 能量为 2.3 兆电子伏, 当它与物质 (包括样品本身、铅室等) 相互作用时会产生连续谱的韧致辐射, 其中一部分一定会与 ^{235}U 的 184 千电子伏峰迭加, 在精确测量时将有干扰。可从理论上作出估计, 进行校正 (在本工作的情况下不必校正)。为了减少韧致辐射, 样品盘用有机玻璃制成, 铅室内壁用铝或有机玻璃衬托, 探头的其他部份也尽量采用原子序数小的材料为好。

3. 考虑到交换柱在反复使用过程中可能由于逐次回收 ^{234}Th 不够完全而造成在柱上的 ^{234}Th 的积累, 以致产生对 ^{235}U 分析结果的影响。为此我们做了以下实验:

称取 10 克天然平衡铀样品, 用阳离子交换法将其子体收集起来, 併入 1 克天然铀的试

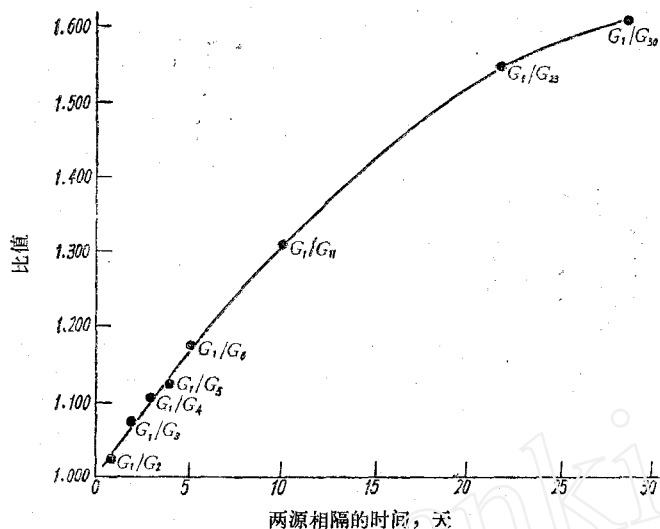


图 3 ^{234}Th 的增长情况

样(B)中, 将它与 1 克天然铀样品 (A) 作同样去 ^{234}Th 处理, 对这两种样品进行对比测量, 考察这额外 ^{234}Th 的存在对分析结果的影响。测量结果如下:

A_1/B_1	A_1/B_2	A_2/B_1	A_2/B_2	$(A_1 + A_2)/(B_1 + B_2)$
1.005	1.001	1.000	0.996	1.001

结果表明, 即使在子体 ^{234}Th 多至平衡量 10 倍的情况下, 采用所述方法去 ^{234}Th 也不会增加分析结果的误差。

黎乐民同志对制源工作提出了改进方法。周志成同志对仪器的改进做了许多工作。李坤、涂洁莹、原思训、王文清、郭花捷、牟西茹、伊敏和王祥云等同志参与了工作并进行了有益的讨论。

参 考 文 献

- [1] Ren Chiba et al., *J. Nucl. Sci. Tech.*, 6, 45 (1969).
- [2] 李坤、王德民等, 原子能科学技术, 5, 377 (1963).

(上接第 276 页)

(Ph' 染色体);。但是, 还没有看到染色体畸变的细胞转化成癌细胞的直接证据。还搞不清楚先有染色体畸变而后导致了癌变呢, 还是染色体畸变可作为恶性肿瘤的伴随病理改变。所以, 今天人们尚不能仅仅依据染色体畸变率的增加而诊断为放射损伤, 更不能依此做出可发生远期效应和遗传效应的推断。

近年来荧光染色和 Giemsa 分带技术的创建, 为深入研究染色体畸变提供了可能。随着分子生物学的发展, 人们必将彻底掌握染色体在遗传和生命中的作用。