

堆照钚靶中钚及超钚核素的 核物理测定方法

乔盛忠 佟伯庭

本文介绍了用 Si(Au) 面垒型探测器 α 谱仪, α - γ 符合谱仪, 高纯锗 γ 谱仪, Si(Li) 谱仪, 栅网电离室 α 谱仪等探测装置, 对在反应堆中辐照钚靶所生成的 ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{242}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{242}Cm , ^{243}Cm 和 ^{244}Cm 等核素进行了定性和定量测定, 描述了这些方法的特点、基本原理和测量装置, 给出了相对和绝对测量的结果。

一、引言

自从 1944 年第一次发现超钚元素镅以来, 世界上人工合成了十二个超钚元素, 一百多种同位素^[1,2]。这些超钚元素的发现及其核性质的研究, 以及在超钚元素生产中的流程控制和定量回收都必须借助于某些化学的或物理的测定方法。在物理测定方面, 有质谱法^[3,4], 光谱法^[5], 量热法^[6], 分光光度法^[7], 控制电位库仑法^[8], 活化分析法^[9], 以及 α , β , γ , X, 中子和裂变碎片等放射性射线测定法。在放射性测定中, 由于大多数重核都具有 α 衰变, 因此 α 能谱测定方法使用得较为普遍^[10,11]。

在原子核的 α 和 β 衰变中, 伴随产生 γ 射线和 X 射线, 它们的穿透能力远强于 α 射线。因此可借助于 γ 和 X 射线的能量和强度确定其超钚核素及其量^[12]。

随着质量数的增加, 越来越多的重核以自发裂变的方式衰变, 除了裂变碎片以外, 有的还释放出裂变中子。因此可借助于中子探测器对超钚核素进行测量和鉴定^[13]。

符合测定法是重元素核素测定中的重要手段之一, 它可克服较强的无关 α , β 和 γ 射线的干扰, 具有较高的选择性, 可以解决一些单一能谱法难于实现的工作^[14]。

本工作是对堆照钚靶中所产生的超钚核素进行综合性的定性、定量测定而建立的有关核物理探测方法。用这些方法通过对靶元件的原始溶解液样品和经简单化学分离的样品直接测定出靶元件中 ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{242}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{242}Cm , ^{243}Cm 和 ^{244}Cm 等核素的相对和绝对含量, 解决了某些单一放化法或质谱法不能解决的问题。这对于超钚元素的提取, 反应堆靶元件辐照情况的了解及其化学处理都是十分有用的。

二、样品的制备

实验中所采用的样品是这样制备的, 3 克 PuO_2 分装在 10 个铝罐中, 在通量为 5×10^{13} 中子/厘米²秒的重水堆中照射 1193 天。辐照靶取出后经长期冷却, 然后进行去壳、溶解和化学处理。本工作所测定的是 1[#], 2[#] 靶元件的未经任何化学分离的原始溶解液样

品, 以及经简单分离去除铀和部分裂变产物的样品和经严格化学纯化的铀、镅、钚产品。 α 能谱、 α - γ 符合能谱和绝对测量的源是采用硅胶抗静电剂混合电喷涂制备的薄底衬 α 源。采用这种技术制备的源薄而均匀, 而且不破坏原始料液中铀、镅、钚各核素的相对含量, 保证了各核素的相对和绝对量的准确测定。 γ 能谱源是制备在带有薄窗 (0.2 毫米) 的密封有机玻璃盒中, 以使低能 γ 射线不被明显的减弱。

三、实 验

1. 实验装置 图 1 中的 B 是半导体 α 谱仪, 是由 $\phi 8$ 毫米的 Si(Au) 面垒型探测器 α 探头和电子学系统组成, 其最佳能量分辨率为 12.2 千电子伏 (对 5.486 兆电子伏)。在本工作中该谱仪主要用于原始溶解液样品和铀、镅、钚产品中的主要重核及同位素的相对比的测定。

图 1 中的 D 是 α - γ 符合谱仪, 它由下列各部分组成: $\phi 8$ 毫米的 Si(Au) 面垒型探测器构成的 α 探头、 $\phi 40 \times 35$ 毫米 (并为 $\phi 20 \times 25$ 毫米) 的井型 NaI(Tl) 探测器构成的 γ 探头及由它们组成的符合探头与电子学系统。在本工作中主要用于测定靶元件中 α 能谱未能解决的 ^{238}Pu 和 ^{241}Am 的定量问题。要在含有大量裂变产物和盐类杂质的原始溶解液样品中, 直接测定 ^{238}Pu 和 ^{241}Am 的量, 这是目前其它单一能谱法、单一质谱法及放射法都无能为力的。

图 1 中的 E 是高纯锗 γ 谱仪, 是由灵敏面积为 1200 毫米², 厚为 5 毫米的高纯锗探测器 Ge(H.P.) 和电子学仪器及计算机系统所组成, 其能量分辨率为 1.93 千电子伏 (对 59.6 千电子伏)。该谱仪主要用于测定经简单化学分离的样品, 解决 ^{243}Am 和 ^{243}Gm 及 ^{244}Gm 的定性、定量问题。该谱仪探测器灵敏面积大, 对低中能 γ 射线探测效率高, 所得数据的准确度较高。

图 1 中的 G 是 Si(Li) 谱仪, 由灵敏面积为 50 毫米², 厚为 3 毫米的 Si(Li) 探测器及电子学系统组成, 其能量分辨率为 900 电子伏 (对 59.6 千电子伏)。该谱仪主要用于测定 ^{243}Am 与 ^{241}Am 的相对比, 以核对高纯锗 γ 谱仪所测数据的可靠性。

图 1 中的 A 是栅网电离室谱仪, 它既可用于放射性强度的绝对测量, 又可鉴定待测样品中的某些杂质成分。本工作主要用于混合源中超铀核素 α 放射性的绝对测量。

2. 样品测量 靶元件去铝壳后, 用 $7\text{NHNO}_3 + \text{F}^-$ 进行溶解, 将溶解液直接取样制成硅胶抗静电剂混合电喷涂薄膜底衬 α 源, 用栅网电离室谱仪进行放射性强度的绝对测量。根据取样体积推算出整块靶元件的 α 放射性的绝对强度 (见表 2)。

用半导体 α 谱仪测定溶解液样品的 α 能谱, 测得了 ^{239}Pu (5.155 兆电子伏等) + ^{240}Pu (5.168 兆电子伏等); ^{238}Pu (5.499 兆电子伏等) + ^{241}Am (5.486 兆电子伏等); ^{243}Gm (5.786 兆电子伏等) + ^{244}Gm (5.806 兆电子伏等); ^{242}Gm (6.115 兆电子伏等) 等四个明显的能峰 (见图 2)。解析 α 能谱, 可计算出上述四者的 α 放射性比 (见表 1), 再根据电离室测定的同一样品的绝对强度, 推算出靶元件中上述四者的 α 放射性绝对强度。

用 α - γ 符合谱仪测定溶解液样品的符合谱, 测出了 ^{241}Am (5.486 兆电子伏等); ^{243}Gm (5.786 兆电子伏) + ^{244}Gm (5.766 兆电子伏) 的能峰以及 ^{242}Gm (6.071 兆电子伏) 的少量符合计数 (见图 2), 解析符合能谱、再根据预先标定 α/α - γ 计数率比, 可确定其 ^{241}Am 的 α

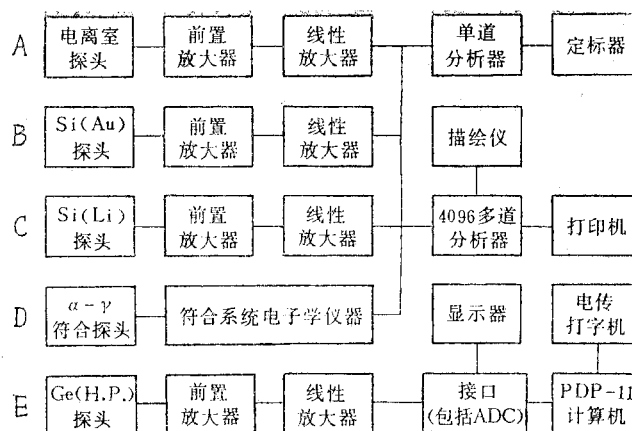


图 1 各种谱仪结构方框图

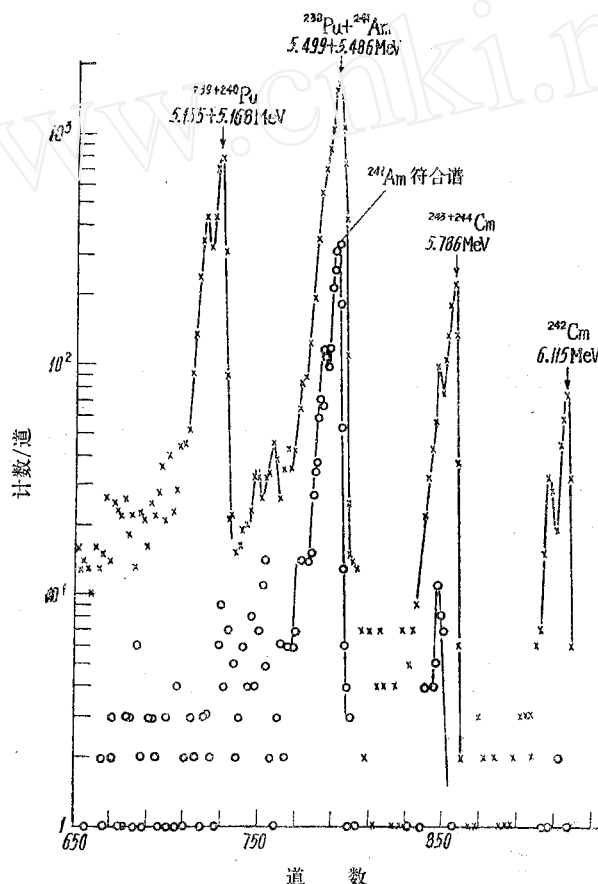


图 2 1 μ 靶元件溶解液样品的 α 及 α - γ 符合谱
 x—— α 能谱；o—— α - γ 符合谱。

放射性的绝对强度，这样靶元件中 ^{238}Pu 的绝对强度亦可求出（见表 2）。用符合法确定元件中的 ^{241}Am 和 ^{238}Pu 的量的基本原理是： ^{241}Am 的 γ 射线主要来自于 5.486 兆电子伏能量的 α 粒子（分支比为 86%），此组 α 粒子从激发态跃迁到基态时发射出 59.6 千电子伏的

γ 射线, 其分支比率为 35.3%; 而 ^{238}Pu 5.499 兆电子伏的 α 粒子占其总 α 的 72% 直接跃迁到基态, 只有分支比为 28% 的 5.456 兆电子伏的 α 粒子, 发射出能量为 43.5 千电子伏的 γ 射线, 其分支比率为 0.038 %。因此 ^{241}Am 总的 γ 射线比 ^{238}Pu 约高 3×10^3 , 于是当 ^{241}Am 和 ^{238}Pu α 放射性相差不大的情况下就可根据电离室, 半导体 α 谱仪, 符合谱仪来确定两者的相对及绝对强度。

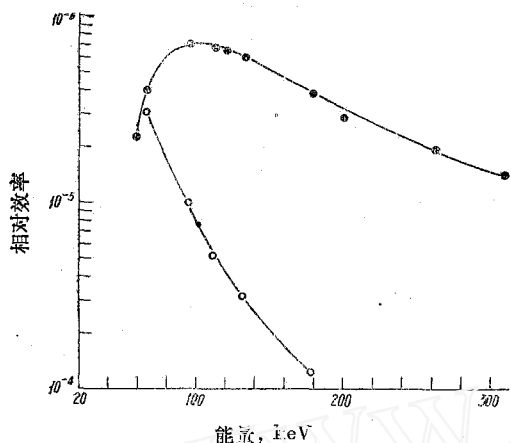


图 3 谱仪相对效率曲线
 ——高纯锗谱仪; ○——Si(Li)谱仪。

用高纯锗 γ 谱仪对经化学分离去除铀和部分裂变产物的原始溶解液样品进行 γ 能谱的测量。测定 ^{243}Am 74.8 千电子伏(61%), ^{243}Cm 99.6 千电子伏(14%) 或 103.8 千电子伏(24%) 的 γ 光子与 ^{241}Am 59.6 千电子伏(35.3%) 的 γ 光子的比, 根据预先用 ^{169}Yb 放射源的 57.6 千电子伏(56%), 63.50 千电子伏(45%), 93.62 千电子伏(2.5%), 110.00 千电子伏(18%), 118.50 千电子伏(2%), 130.70 千电子伏(11%), 177.00 千电子伏(22%), 197.80 千电子伏(40%), 261 千电子伏(1.7%), 307.50 千电子伏(10%) 所标定的效率曲线(见图 3), 解析

γ 能谱(见图 4), 可确定其靶元件中 ^{243}Am , ^{243}Cm 与 ^{241}Am 的相对比例, 再根据已测得的 ^{241}Am 的量亦可计算出元件中 ^{243}Am 和 ^{243}Cm 的绝对 α 放射性强度。由此方可定出 ^{244}Cm 的放射性强度(见表 1 和表 2)。

表 1 堆照铀靶元件中的铀及超铀核素的相对比值

核素相对比	1*靶元件, %			2*靶元件, %		
	Si(Au)谱仪	Ge(H.P.)谱仪	Si(Li)谱仪	Si(Au)谱仪	Ge(H.P.)谱仪	Si(Li)谱仪
$^{239+240}\text{Pu}/\text{总}^*$	24.97 ± 0.75			32.08 ± 0.96		
$^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}/\text{总}^*$	62.22 ± 1.87			59.88 ± 1.80		
$^{243+244}\text{Cm}/\text{总}^*$	8.20 ± 0.25			4.79 ± 0.14		
$^{242}\text{Cm}/\text{总}^*$	4.61 ± 0.14			3.25 ± 0.10		
$^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$	0.56 ± 0.11	0.51 ± 0.05	0.60 ± 0.12		0.45 ± 0.05	0.47 ± 0.10
$^{243}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$	3.76 ± 0.73	4.22 ± 0.42			6.93 ± 0.69	
$^{242}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	0.63 ± 0.12					

* 总 = $^{239+240}\text{Pu} + (^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}) + ^{243+244}\text{Cm} + ^{242}\text{Cm}$ 。

为了给出 ^{243}Am , ^{243}Cm 的另一种方法的对比数据, 本工作采用 Si(Li) 谱仪测定了经过严格化学分离的镅产品的 γ 能谱(见图 5)。同样根据预先用 ^{169}Yb 放射源标定的 Si(Li) 探测器的效率曲线(见图 3), 解析 74.8 千电子伏与 59.6 千电子伏的 γ 能峰, 可定其 ^{243}Am 与 ^{241}Am 的相对比例, 其结果与高纯锗谱仪的结果是一致的(见表 1)。本工作还利用半导体 α 谱仪对经过严格化学分离的铀、镅、镅产品进行了测量。镅产品测量 5.276 等兆电子伏能峰和 5.486 等兆电子伏的能峰的 α 粒子(见图 6); 定其 ^{243}Am 与 ^{241}Am 的比例; 镅产品测量 5.994 兆电子伏, 分支比为 6% 的 α 能峰(图 7) 定其 ^{243}Cm 与 ^{244}Cm 的比

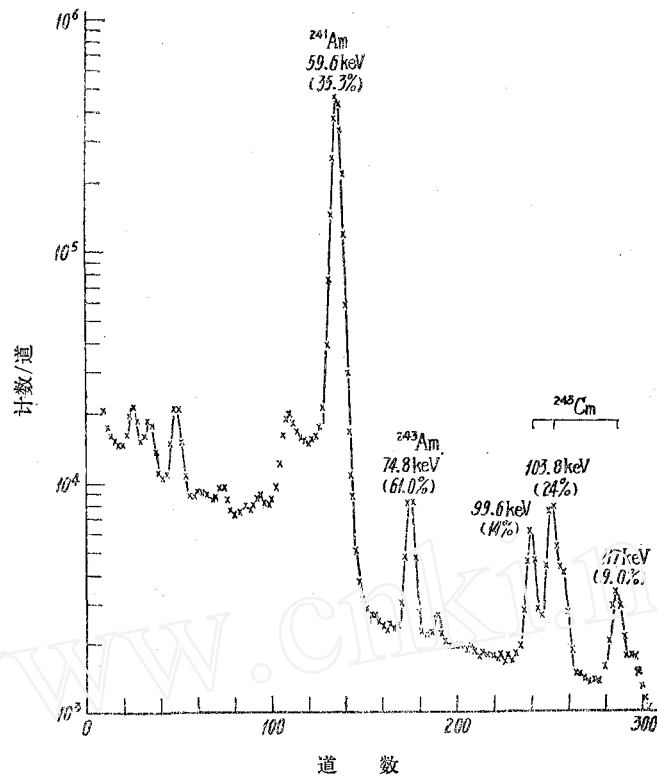


图 4 1#靶元件 Am,Cm 样品的 Ge(H.P.) γ 能谱
Am + Cm 样品, 能量刻度 0.380 千电子伏/道, 源的距离 2 厘米。

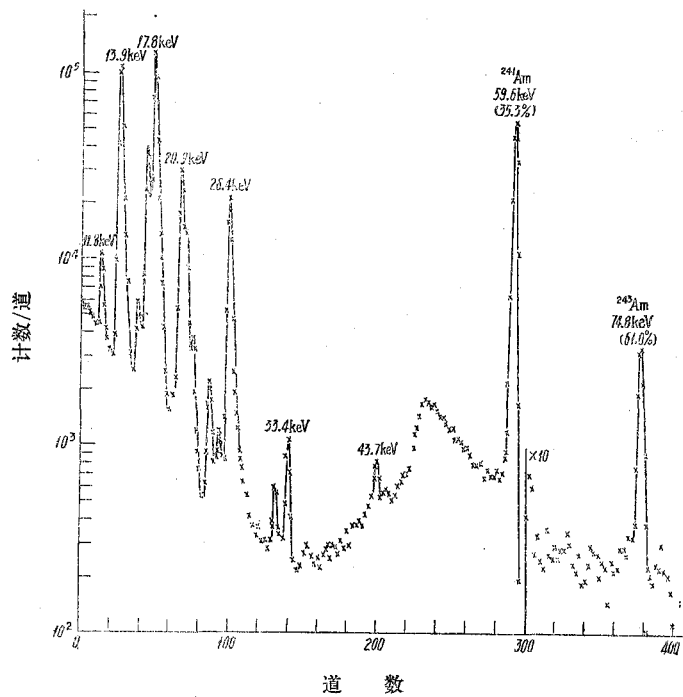
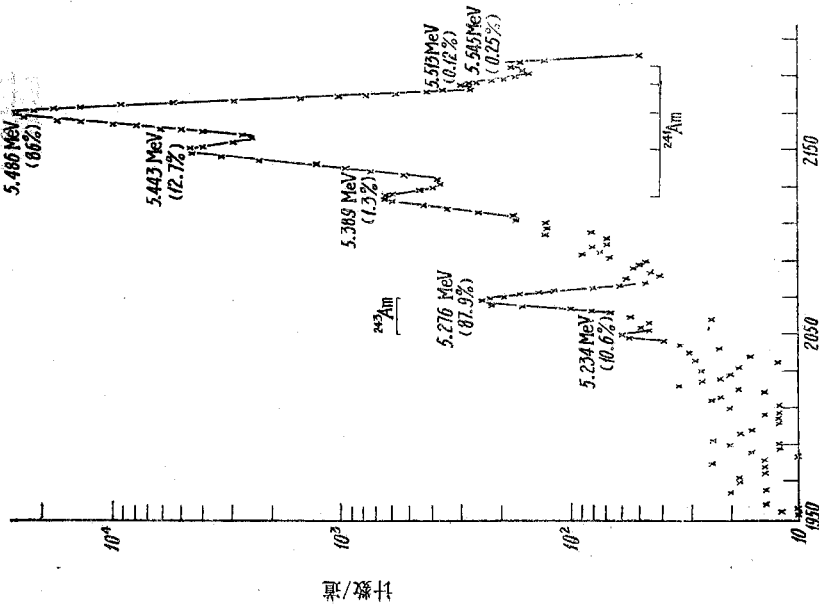


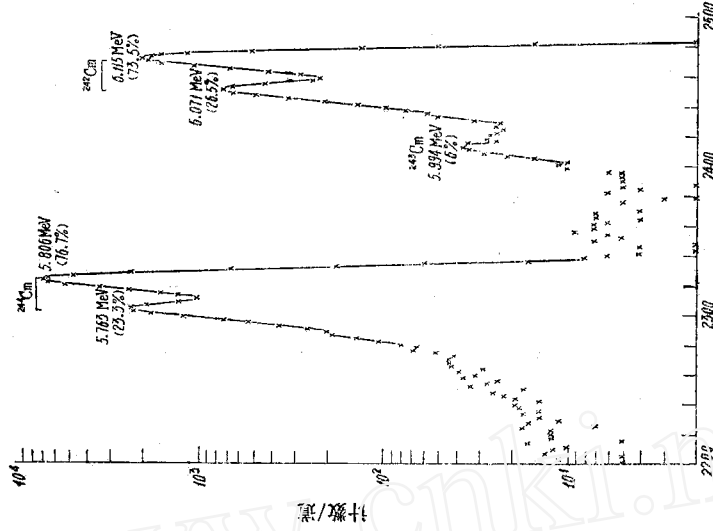
图 5 1#元件 Am 产品 Si(Li) 谱仪 γ 能谱
能量刻度 0.177 千电子伏/道; 源的距离 5 毫米。



道 数

图 6 ^{243}Am 产品 α 谱

能量刻度 1.7 千电子伏/道; 源的距离 10 毫米。



道 数

图 7 ^{244}Cm 产品 α 能谱

能量刻度 1.7 千电子伏/道, 源的距离 10 毫米。

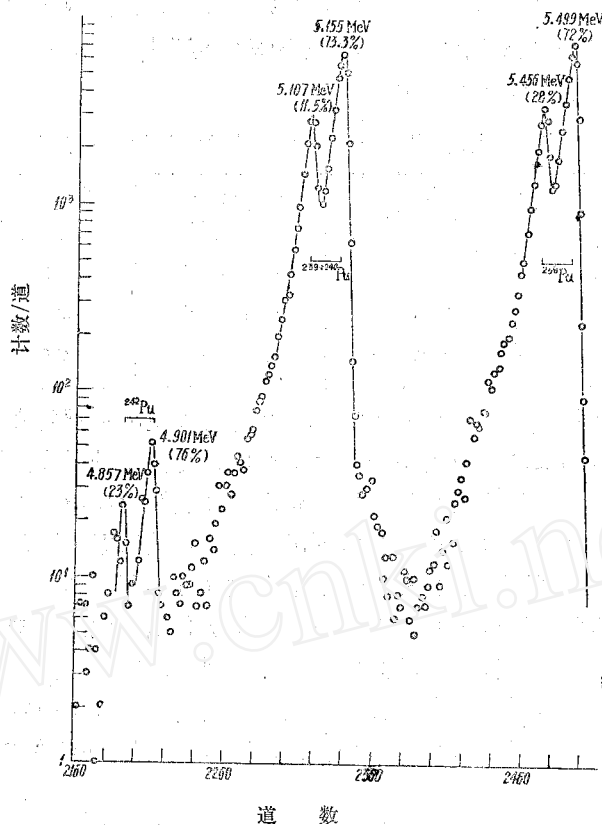


图 8 1#元件 Pu 产品 α 谱

表 2 堆照靶元件中钚及一些超钚核素的 α 放射性比度 (微居/毫克*)

核素 靶元件	总量	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{242}Pu	^{241}Am	^{243}Am	^{242}Cm	^{243}Cm	^{244}Cm
1*	78.485	21.933	19.533	0.123	26.733	0.136	3.600	0.260	6.167
2*	101.663	28.667	32.567		32.133	0.145	3.303	0.315	4.533

* 每毫克钚 (主要为 ^{239}Pu) 所生成的各核素的 α 放射性。

例(见表 1), 其结果与 γ 谱仪测定的结果都是相当符合的。钚产品测其 4.901 兆电子伏等的 α 能峰与 5.155 兆电子伏等加 5.168 兆电子伏等能峰的 α 粒子(见图 8), 定其 ^{242}Pu 与 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比例, 进而定 ^{242}Pu 的含量, 1# 靶元件的结果列在表 1 和表 2 中。

四、结果及其讨论

1. 测量结果 本工作采用几种目前较先进的设备和配以薄而均匀的 α 源, 测定了堆照 ^{239}Pu 靶元件中的一些超钚核素, 其相对和绝对强度的数据列在表 1 和表 2 中。

目前各种测量设备对样品放射性强度的要求为: 电离室以 3×10^{-3} 微居左右为宜; 其精度 $< 1\%$; 半导体 α 谱仪以 0.01 微居为宜; 高纯锗谱仪以 > 5 微居为宜; α - γ 符合谱仪

以 0.05 微居左右为宜；Si(Li) 谱仪以 >20 微居为宜，其精度视各核素的相对含量而定。

2. 绝对测量 为了检验栅网电离室绝对测量的可靠性，用 ^{241}Am 源与 α - γ 符合绝对测量进行了比较，其结果列在表 3 中。

表 3 电离室与 α - γ 符合法对 ^{241}Am 源的测量结果

源号	取样量, 毫克	α - γ 符合法, 衰变数/分	α 比放射性, 衰变数/毫克·分	电离室, 衰变数/分	电离室相对于符合法的平均偏差, %
1	27.730	289342	1.056×10^4	292801	+1.19
2	30.920	328137	1.071×10^4	331020	+0.87
3	40.350	422230	1.067×10^4	430369	+1.91

实验数据表明两种方法在 2% 以内符合，并且电离室的数据均高于 α - γ 符合法的数，其原因可能是源底衬的反散射或由系统偏差所造成，有待于进一步的研究。

本工作所建立的一些核物理测量方法，测定了堆照钚元件中一些主要的超钚核素。对于如此复杂的体系，能获得表 1 和表 2 所列出的定性定量数据，这是综合采用各种核物理探测方法的结果。尤其值得提及的是 α - γ 符合法解决了关键性的 ^{238}Pu 和 ^{241}Am 的测定问题。综合使用这些方法，可代替复杂而费事的放化法和质谱法的某些工作。同时还解决了某些单一放化法无法解决的同位素的分离和测定问题，解决了一些单一质谱法对质量数相同的不同核素无法测定的问题。在超钚元素核素的测定中起到了一定的作用。但是，辐照靶元件中的 ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 的单独量的测定问题， ^{241}Pu (β 放射核) 的定量问题等，尚需进一步的研究和探讨。

本工作中的化学处理及薄膜 α 源的制备，是本研究室八组同志完成的；硅胶抗静电剂混合电喷涂 α 源薄膜底衬是陈庆江制备的；电沉积源由周志宏制备；高纯锗 γ 能谱的测量承有色金属研究院董乃生等同志协作完成。

参 考 文 献

[1] G. N. Fleron et al., *At. Energy Rev.*, **8**, 255 (1970).
 [2] C. Keller, *The Chemistry of the Transuranium Elements*, Weinheim, Verlag Chemie, 1971.
 [3] D. F. Dance, AERE-C/M-366 (1958).
 [4] K. Ueno et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **11**, 8 (1974).
 [5] A. J. Johnson et al., RFP-194 (1960).
 [6] F. L. Oetting, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **29**, 2659 (1967).
 [7] K. Buijs et al., *Anal. Chim. Acta*, **47**, 547 (1964).
 [8] G. Koehly et al., *NSA*, **20**:38854 (1966).
 [9] I. Fujiwara et al., *J. Radioanal. Chem.*, **4**, 19 (1977).
 [10] I. Ahmad et al., *Phys. Rev.*, **C8**, 737 (1973).
 [11] M. G. Kathlsen, *Standrization of Radionuclides* (IAEA Vienna), p. 461 (1976).
 [12] M. A. Wakat et al., *J. Radioanal. Chem.*, **4**, 109 (1970).
 [13] G. A. Burney et al., *Radiochim. Acta*, **2**, 63 (1971).
 [14] Б. Ф. Мясоедов и др., *ЖАХ*, **23**, 294 (1973).