

α 能谱法测定Pu材料中 $^{241}\text{Am}/\text{Pu}$ α 活度比

杨吉纯 赵焕珍 李庚卯 陈忠对 刘国兴 袁产生 孙芝南

(西北核技术研究所, 西安, 710024)

文章介绍用 α 能谱法测定Pu材料中 $^{241}\text{Am}/\text{Pu}$ α 活度比的原理、方法及结果。该测定结果与用NaI(Tl) γ 能谱法测定的结果相一致。

关键词 α 能谱法 Pu材料 α 活度比 Am-Pu源 纯Pu源

Pu材料经过一定时间放置后, 含有 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu 及 ^{241}Am 等核素。其中 ^{241}Am 是 ^{241}Pu 经 β 衰变生成的。当需要定量分析Pu材料中各种核素的含量时, 除了用 α 能谱法测定 ^{238}Pu 与($^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$) α 活度比和用质谱法测定 ^{240}Pu 与 ^{239}Pu 及 ^{241}Pu 与 ^{239}Pu 的原子数比之外, 还须测定出 ^{241}Am 与Pu α 活度比。后者的测定方法主要是用 α 能谱法和 γ 能谱法。本文将采用 α 能谱法测定Pu材料中 ^{241}Am 与Pu α 活度比。

1 原理

用Pu材料溶液制成Am-Pu混合源后, 用 α 谱仪测量 R_1

$$R_1 = \frac{A_\alpha(^{241}\text{Am} + ^{238}\text{Pu})}{A_\alpha(^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu})} \quad (1)$$

将该溶液中的 ^{241}Am 除尽后, 制成纯Pu源, 用 α 谱仪测量 R_2

$$R_2 = \frac{A_\alpha(^{238}\text{Pu})}{A_\alpha(^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu})} \quad (2)$$

以 R 表示 ^{241}Am 与Pu($^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$)的 α 活度比, 即

$$R = \frac{A_\alpha(^{241}\text{Am})}{A_\alpha(^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu})} \quad (3)$$

式(3)的分子中加减一项 ^{238}Pu 后, 再将分子和分母同时除以 $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$, 则得

$$R = \frac{R_1 - R_2}{1 + R_2} \quad (4)$$

2 方法

收稿日期: 1994-10-26 收到修改稿日期: 1994-12-12

2.1 Pu 材料的溶解

采用可抑制水解、聚合反应含 HF 的混合酸(HCl、HClO₄、HNO₃、HF)溶液,逐步溶解 Pu 材料,得到制备测量源所需的溶液。

2.2 源的制备

2.2.1 Am-Pu 源 选用 ϕ 25 mm 的硬质玻璃片做底衬。将其洗净晾干后用石蜡-苯饱和溶液涂于玻璃片外缘,其宽度约为 5 mm。将一定量的 Pu 材料溶液滴于玻璃片中央,再加入 1 滴 10% 甘露醇-1.0 mol/l HCl 溶液,在室温下晾干后,再在 600℃ 下灼烧 2 h,便制成既可供 α 能谱法又可供 γ 能谱法测量用的 Am-Pu 源。

2.2.2 纯 Pu 源 取一定量的 Pu 材料溶液,用 Fe^{2+} 和 NaNO_2 调节 Pu 的价态到三价,通过 Dowex 1 \times 2 离子交换柱,除去 ^{241}Am 得到纯 Pu 溶液。将该溶液在 0.03 mol/l $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$ -0.5 mol/l NaNO_3 介质中恒温电镀在 ϕ 25 mm 的不锈钢片底衬上,制得纯 Pu 源。用 NaI(Tl) γ 谱仪测量纯 Pu 源中 ^{241}Am 的 59.51 keV 能量峰的计数,以确定该溶液中 ^{241}Am 的比活度,用 2π - α 栅网电离室测量该溶液的 α 比活度。两者之比若小于 1×10^{-5} ,则确认该溶液为纯 Pu 溶液。

3 测量

用 α 谱仪分别测量 Am-Pu 源及纯 Pu 源的 α 能谱,用几何级数法^[1]计算活度比 R_1 和 R_2 。 $^{241}\text{Am} + ^{238}\text{Pu}$ 及 ^{239}Pu 的峰面积能区为 5330—5538 keV, $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ 的峰面积能区为 4992—5220 keV。

α 能谱测量采用 PD-150-17-100 型金硅面垒半导体探测器和 7404 型 α 谱仪。用 Series 90 多道分析器获取 α 谱数据。用 $^{244}\text{Cm} + ^{238}\text{Pu} + ^{239} + ^{240}\text{Pu} + ^{237}\text{Np}$ 混合 α 源进行能量刻度。

γ 能谱采用 ϕ 76 mm \times 76 mm 阱式 NaI(Tl) 探测器(阱尺寸 ϕ 16.7 mm \times 39.3 mm)测量,用 Series 35 多道分析器获取 γ 谱数据,用 ^{137}Cs 和 ^{60}Co 2 个源进行能量-效率刻度。

Series 90 和 Series 35 多道分析器均配带分析软件。

4 结果及讨论

用 6 个 Am-Pu 源测得 6 个 R_1 值,用 2 个纯 Pu 源测得 2 个 R_2 值。用式(4)计算 R 值。结果列于表 1。

表 1 Pu 材料中 ^{241}Am 与 Pu α 活度比的测量及计算结果

Table 1 Measurement results of $^{241}\text{Am}/\text{Pu}$ α activity ratio in the plutonium material

$R_1(n=6)/\%$		$R_2(n=2)/\%$		$R/\%$	
平均值	标准偏差	平均值	标准偏差	平均值	标准偏差
4.284	0.012	1.122	0.003	3.127	0.013

NaI(Tl) γ 能谱是经过严格检验的准确可靠的方法,用该方法测得此种材料的 ^{241}Am 与 Pu γ 活度比为 3.123%,其总不确定度好于 1%^[2]; α 能谱法测定的结果为 3.127%。2 种方法的测定结果相当一致,说明 α 能谱法同样是 1 种准确可靠的方法。

α 能谱法所测 ^{241}Am 与 Pu α 活度比的结果的随机不确定度为 0.42%,系统不确定度为 0.2%,合成不确定度为 0.47%,总不确定度为 0.94%。所以, α 能谱法测量该比值的总不确

定度好于1%。

γ 能谱法的测量原理是:用NaI(Tl) γ 谱仪和 2π - α 栅网电离室分别在相同条件下测量纯 ^{241}Am 、纯Pu及 $^{241}\text{Am} + \text{Pu}$ 溶液单位质量的 γ 计数率与 α 比活度之比 A 、 P 和 C ,则 ^{241}Am 与Pu α 活度比 R 为

$$R = (C - P)/(A - C) \quad (5)$$

由此可见, α 能谱法与 γ 能谱法相比,不但测量条件要求不高,而且除了用NaI(Tl) γ 谱仪对Am-Pu分离后的纯Pu溶液进行鉴定之外,再用半导体 α 谱仪测量2个 α 活度比 R_1 和 R_2 就足矣。所需测量的数据少,方法更为简单方便。

上述2种方法都能准确测定Pu材料中 ^{241}Am 与Pu α 活度比,本实验室一般把2种方法同时应用,以便相互对比,给出较为准确可靠的数据。

参 考 文 献

- 1 杨吉纯,赵焕珍. α 放射性比的测量方法.原子能科学技术,1993,27(1):36.
- 2 常永福,陈忠对,李庚卯,等.用NaI(Tl) γ 谱仪测定钚中的 ^{241}Am .试验与研究,1983,(3):296.

DETERMINATION OF $^{241}\text{Am}/\text{Pu}$ α ACTIVITY RATIO IN PLUTONIUM MATERIAL USING α SPECTROMETRY

Yang Jichun Zhao Huanzhen Li Gengmao Chen Zhongdui
Liu Guoxing Yuan Chansheng Sun Zhinan

(Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an, 710024)

ABSTRACT

The principle and method of determination of $^{241}\text{Am}/\text{Pu}$ alpha activity ratio in plutonium material using alpha spectrometry are introduced. The result of determination of $^{241}\text{Am}/\text{Pu}$ alpha activity ratio is consistent with that obtained from gamma spectrometry.

Key words Alpha spectrometry Plutonium material α activity ratio Pure plutonium source Americium-plutonium source