

α 能谱法测定 $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}^{g,m}$ 的反应分支比

倪建忠, 代义华, 张海涛, 鲁 樵, 施艳梅, 常永福

(西北核技术研究所, 陕西 西安 710024)

摘要: 研究建立了 1 种利用 α 能谱测定 $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}^{g,m}$ 的反应分支比 K_1 和 K_2 的方法。利用 $^{242}\text{Am}^m$ 与 $^{242}\text{Am}^g$ 半衰期差别很大的特点, 分两次测量 ^{241}Am 辐照样品种中的 ^{242}Cm 含量, 分别推算 $^{242}\text{Am}^g$ 与 $^{242}\text{Am}^m$ 的生成量, 从而得到 K_1 和 K_2 。实际分析了某反应堆辐照的样品, 测得了该反应堆中子能谱对应的 K_1 和 K_2 值。

关键词: ^{241}Am ; 中子俘获反应; 分支比; α 能谱法

中图分类号: O571.4

文献标识码: A

文章编号: 1000-6931(2007)06-0671-03

Determination of Branching Ratio of $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}^{g,m}$ With α -Spectrometry

NI Jian-zhong, DAI Yi-hua, ZHANG Hai-tao, LU Lei, SHI Yan-mei, CHANG Yong-fu

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

Abstract: A method to determine the branching ratio K_1 and K_2 of $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}^{g,m}$ with α -spectrometry was established. Based on the fact that the half-life of $^{242}\text{Am}^m$ and $^{242}\text{Am}^g$ are quite different, the ^{242}Cm activity of sample irradiated in a reactor was measured at two different moments, then the production amount of $^{242}\text{Am}^g$ and $^{242}\text{Am}^m$ during irradiation was calculated, finally the K_1 and K_2 were obtained.

Key words: ^{241}Am ; neutron capture reaction; branching ratio; α -spectrometry

^{241}Am 发生中子俘获反应生成 $^{242}\text{Am}^g$ 的同时, 还会生成激发态的 $^{242}\text{Am}^m$ 。反应及产物的衰变示于图 1。

$^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}^{g,m}$ 反应分支比 K_1 和 K_2 随入射中子的能量而变化。R. M. Harbour^[1]、Y. Shinohara^[2] 分别于 1973 年和 1997 年测量了 K_1 和 K_2 (表 1)。目前, 国内尚未进行有关 $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}^{g,m}$ 反应分支比的测定工作。

本工作研究建立 1 种利用 α 能谱同位素稀释法测定 K_1 和 K_2 的方法, 并获得某反应堆中子能谱对应的 K_1 和 K_2 。

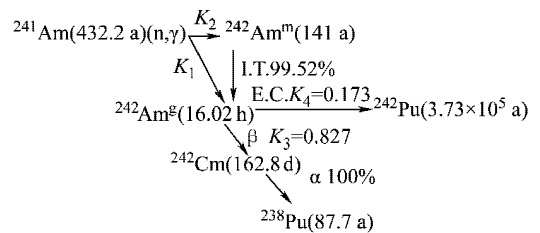


图 1 $^{241}\text{Am}(n, \gamma)$ 反应及其产物的衰变

Fig. 1 Reaction of $^{241}\text{Am}(n, \gamma)$ and its products

表 1 $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}^{g,m}$ 反应比 K_1 和 K_2 的文献值Table 1 K_1 and K_2 valuesof $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}^{g,m}$ from references

作者	年代	中子能量	K_1	K_2
R. M. Harbour	1973	热	0.899	0.101
		超热	0.865	0.135
Y. Shinohara	1997	热	0.924	0.076

1 原理

$^{242}\text{Am}^m$ 与 $^{242}\text{Am}^g$ 的半衰期差异大,分别为 141 a 和 16.02 h。在 ^{241}Am 俘获中子生成 ^{242}Am 后,在较短的时间内, $^{242}\text{Am}^g$ 很快衰变成 ^{242}Cm ,而 $^{242}\text{Am}^m$ 几乎不衰变。这时,称取部分样品,放化分离出 ^{242}Cm ,并进行测量,即可推算出反应中 $^{242}\text{Am}^g$ 的生成量。

将剩余样品妥善保存数年,由 $^{242}\text{Am}^g$ 衰变生成的 ^{242}Cm 已全部衰变成 ^{238}Pu ,而 $^{242}\text{Am}^m$ 通过递次衰变生成 ^{242}Cm ,该衰变链处于长期平衡,此时,样品中的 ^{242}Cm 来自于 $^{242}\text{Am}^m$,这时,测量样品的 ^{242}Cm 含量,即可推算出辐照结束时刻 $^{242}\text{Am}^m$ 的生成量。

由先后两次分别测得的 $^{242}\text{Am}^g$ 与 $^{242}\text{Am}^m$,即可计算 K_1 和 K_2 ,有:

$$\begin{cases} K_2/K_1 \\ K_1 + K_2 \end{cases} = R_{m/g} \quad (1)$$

其中, $R_{m/g}$ 为辐照结束时刻 $^{242}\text{Am}^m$ 和 $^{242}\text{Am}^g$ 的原子核数比。

由式(1)解得:

$$\begin{cases} K_1 = \frac{1}{1 + R_{m/g}} \\ K_2 = \frac{R_{m/g}}{1 + R_{m/g}} \end{cases} \quad (2)$$

按照不确定度传递律可得:

$$\begin{cases} u_{K_1,r} = K_2 u_{R_{m/g},r} \\ u_{K_2,r} = K_1 u_{R_{m/g},r} \end{cases} \quad (3)$$

其中: $u_{K_1,r}$ 、 $u_{K_2,r}$ 分别为 K_1 和 K_2 的相对标准不确定度; $u_{R_{m/g},r}$ 为 $R_{m/g}$ 的相对标准不确定度。

2 实验

1996年7月1日,在反应堆上辐照 100 mg 纯度为 99.9%的 ^{241}Am ,放置 30 d 后,称取部分样品,加入 ^{244}Cm 稀释剂,经放化流程分离提纯出 Cm,采用 α 能谱同位素稀释法测定出样品中 ^{242}Cm 的含量为 1 281 Bq/g(1±1.4%),推算

出辐照结束时刻 $^{242}\text{Am}^g$ 的生成量(以原子个数计)为 $3.5708 \times 10^{10} \text{ g}^{-1}$ (1±1.4%)。

2006年1月,利用 α 能谱同位素稀释法再次分析该辐照样中 ^{242}Cm 的含量,并推算得到辐照结束时刻 $^{242}\text{Am}^m$ 的生成量。

1996年和 2006年两次分析的实验过程是相同的,均利用 ^{244}Cm 作稀释剂,通过半导体 α 谱仪上测定 ^{242}Cm 和 ^{244}Cm 的比值得到样品中 ^{242}Cm 的含量。

2006年的实验分析过程详情如下。

2.1 ^{244}Cm 稀释剂的标定

^{244}Cm 稀释剂标定在本实验室的 2π α 栅网电离室上进行。把 ^{244}Cm 溶液滴在玻璃底衬上,制成待测源。6个玻璃片源的比活度标定结果列于表 2,不确定度分析列于表 3。

表 2 ^{244}Cm 溶液比活度标定结果Table 2 Activity of ^{244}Cm solution

源号	质量/mg	$a(^{244}\text{Cm})/(\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1})$
1#	87.26	1 799.5
2#	68.26	1 788.2
3#	48.05	1 788.2
4#	144.52	1 786.8
5#	78.37	1 783.8
6#	79.2	11 797.3 (1 790.6)

注:括号内为平均值

表 3 ^{244}Cm 溶液比活度的不确定度Table 3 Uncertainty of the activity of ^{244}Cm solution

不确定度分量	相对不确定度/%
A类	0.35
B类称重分量	0.1
B类自吸收和反散射校正分量	0.5
合成标准不确定度	0.62

样品中 ^{242}Cm 含量低,向样品中加入的稀释剂量又不能太强,为此,对 ^{244}Cm 稀释剂分两次进行稀释(表 4)。

表 4 ^{244}Cm 溶液的稀释Table 4 Dilution of ^{244}Cm solution

稀释	$a(\text{母液})/(\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1})$	$a(\text{稀释后})/(\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1})$
第 1 次	1 791	87.20
第 2 次	87.20	4.23

2.2 测量源制备

将 ^{244}Cm 稀释剂溶液加入样品中,并用 HNO_3 溶液溶解样品,将溶液用CL-P204M萃淋树脂柱纯化。解析液蒸干后,用0.1 mol/L $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ -0.1 mol/L HNO_3 溶解,将 $\text{Am}(\text{III})$ 氧化到 $\text{Am}(\text{V})$,再经CL-P204M萃淋树脂柱进行 Am 、 Cm 分离,解析得到纯 Cm 溶液,以不锈钢片为底衬,用电沉积法制成测量源。

2.3 样品中 ^{242}Cm 含量的测定

用ORTEC PLUS 半导体 α 谱仪测量 ^{242}Cm 和 ^{244}Cm 的 α 放射性比 $R_{2/4}(\alpha)$,探头面积 150 mm^2 ,能量分辨率(FWHM)约为20 keV。样品中 ^{242}Cm 含量低,经72 h测量, ^{242}Cm 能峰计数达到10 450个。测得的能谱如图2所示。测量数据列于表5,其中, $^{242}\text{Am}^m$ 含量已推算到样品辐照时刻(1996年7月1日)。

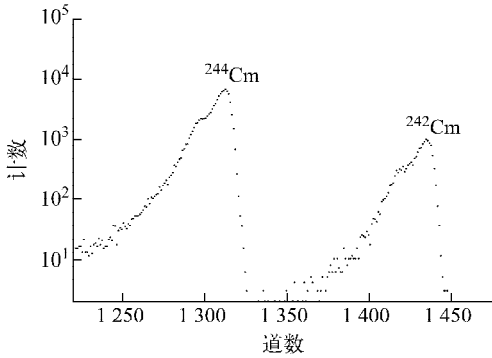


图2 样品的 ^{242}Cm 与 ^{244}Cm α 能谱

Fig. 2 Spectra of ^{242}Cm and ^{244}Cm

表5 样品中 $^{242}\text{Am}^m$ 含量的测定结果

Table 5 $^{242}\text{Am}^m$ content in measured sample

样品量/g	^{244}Cm 加入量/g	$R_{2/4}(\alpha)$	^{242}Cm 比活度/ ($\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$)	$^{242}\text{Am}^m$ 含量/ g^{-1}
0.049 5	0.055 3	0.181 5	0.857 7	$6.954 1 \times 10^9$

注: $^{242}\text{Am}^m$ 含量以原子个数计

样品中 ^{242}Cm 含量的测量不确定度主要来源包括 ^{244}Cm 稀释剂、半导体 α 谱仪测定 $^{242}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ 比值的不确定度(表6)。

表6 样品中 ^{242}Cm 含量的不确定度

Table 6 Uncertainty of ^{242}Cm content

不确定度分量	相对不确定度/%
^{244}Cm 稀释剂	0.62
$^{242}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ 比值	1.0
合成标准不确定度	1.2

$^{242}\text{Am}^m$ 的生成量由样品中 ^{242}Cm 含量通过衰变规律推算得到,半衰期、分支比等核参数的不确定度可忽略。于是, $^{242}\text{Am}^m$ 生成量的不确定度即为 ^{242}Cm 含量的不确定度。

在辐照结束时刻, $^{242}\text{Am}^m$ 的生成量(以原子个数计)为 $6.954 1 \times 10^9 \text{ g}^{-1} (1 \pm 1.2\%)$ 。

3 K_1 和 K_2 的计算

由两次分析结果得 $R_{m/g} = 0.1947 (1 \pm 11.8\%)$ 。代入式(2)、(3),计算得到 $K_1 = 0.837 (1 \pm 0.3\%)$, $K_2 = 0.163 (1 \pm 1.5\%)$ 。

4 结论

本工作研究建立了利用 α 能谱同位素稀释法测量 $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}^{g,m}$ 反应的分支比 K_1 和 K_2 的方法。利用 $^{242}\text{Am}^m$ 与 $^{242}\text{Am}^g$ 半衰期的大差异,分两次测量 ^{241}Am 辐照样品中的 ^{242}Cm 含量,分别推算 $^{242}\text{Am}^g$ 与 $^{242}\text{Am}^m$ 的生成量,从而测得 K_1 和 K_2 。

分析样品在反应堆上辐照获得,测得的 K_1 和 K_2 值与该堆的中子能量有关。如采用不同能量的单能中子源照射 ^{241}Am ,利用本工作提供的方法进行样品分析,则可得到 K_1 和 K_2 随中子能量的变化关系。

参考文献:

[1] HARBOUR R M, MACMURDO K W, McCROSSON F J. Thermal-neutron capture cross section and resonance integrals of americium-241 [J]. Nucl Sci Eng, 1973, 50: 364-369.

[2] SHINOHARA Y. Radiochemical determination of neutree capture cross section of ^{241}Am [J]. Nucl Sci Technol, 1997, 34: 613.