

应用几种谱仪测定大量²⁴²Cm 中的少量²⁴¹Am

乔盛忠 佟伯庭 吕 峯 朱荣保 杨留成 徐颖璞

本文介绍了用 Si(Li) 谱仪, Ge(Li) 谱仪和 α - γ 符合谱仪测定大量 ²⁴²Cm 中少量 ²⁴¹Am 杂质的方法。描述了三种方法的特点, 并比较了它们的测量灵敏度和准确度。

引 言

随着原子能事业的发展, ²⁴²Cm 的应用被提上了日程。²⁴²Cm 是用堆照 ²⁴¹Am 经化学分离而制备的^[1]。²⁴²Cm 的应用需要一定的纯度, 特别是对 ²⁴¹Am 杂质的含量有一定的要求。因此, 对 ²⁴²Cm 产品中 ²⁴¹Am 的含量必须进行准确的鉴定。本工作所用到的 ²⁴¹Am 和 ²⁴²Cm 的一些核数据列在表 1 中。

由表 1 可知, ²⁴²Cm 比 ²⁴¹Am 的半衰期短, 它们的 α 比放射性前者比后者高约 10^3 ,

表 1 ²⁴¹Am 和 ²⁴²Cm 的部分核数据

内 容	²⁴¹ Am	²⁴² Cm
半衰期	458 年	163 天
α 比放射性 ^[2]	7.26×10^8 衰变/分·微克	7.35×10^9 衰变/分·微克
γ 比放射性	2.56×10^6 光子/分·微克 (对 59.6 千电子伏)	2.87×10^6 光子/分·微克 (对 44.03 千电子伏)
α 能量, 兆电子伏(强度, %) ^[3]	5.545(0.25%)	6.115(73.5%)
	5.513(0.12%)	6.071(26.5%)
	5.486(86%)	5.971(0.030%)
	5.443(12.7%)	5.814(4.6×10^{-8} %)
	5.389(1.30%)	
γ 能量, 千电子伏(强度, %) ^[4]	26.4(2.5%)	44.03(0.039%)
	33.2(0.20%)	101.8(0.0035%)
	43.4(0.07%)	157.6(0.0023%)
	59.6(35.3%)	
	98.9(0.029%)	
	102.9(0.032%)	

而²⁴¹Am在产品中的含量一般要比²⁴²Cm低10—10²,则在产品中²⁴²Cm和²⁴¹Am的α放射性至少相差10⁴—10⁵;同时,²⁴¹Am的主要α能峰(5.486兆电子伏)处于²⁴²Cm主要α能峰(6.115兆电子伏)的谱尾上。在这种情况下,要用α能谱法进行测量,就遇到了难于克服的困难。从1975年以来,我们采用了Si(Li)谱仪法,Ge(Li)谱仪法和α-γ符合谱仪法,测定了α放射性相差10⁴以上的²⁴²Cm中²⁴¹Am的含量。现将这些方法分别介绍如下。

一、Si(Li)谱仪法

Si(Li)谱仪法,是测定²⁴²Cm 44.03千电子伏与²⁴¹Am 59.6千电子伏的能峰,因为²⁴²Cm的α比放射性虽比²⁴¹Am高10³,但²⁴²Cm 44.03千电子伏能量的γ光子比²⁴¹Am 59.6千电子伏能量的γ光子的分支比率却约低10³。因此,γ放射性对重量的比强度接近。只要借助于Si(Li)探测器的效率曲线^[5,6],方能准确地鉴定出²⁴²Cm中²⁴¹Am的含量。简单的数学计算如下。

$$W_{^{241}\text{Am}}/W_{^{242}\text{Cm}} = mA_{^{241}\text{Am}}/A_{^{242}\text{Cm}}$$

式中 $W_{^{241}\text{Am}}$ 、 $W_{^{242}\text{Cm}}$ 分别为²⁴¹Am和²⁴²Cm的重量; $A_{^{241}\text{Am}}$ 、 $A_{^{242}\text{Cm}}$ 分别为²⁴¹Am 59.6千电子伏和²⁴²Cm 44.03千电子伏能峰的γ放射性; m 为一常数,其值 $m=k \cdot l$; l 为²⁴¹Am 59.6千电子伏与²⁴²Cm 44.03千电子伏的γ比放射性比; k 为Si(Li)探测器探测44.03千

电子伏光子与探测59.6千电子伏光子的效率比。

为了确定 k 值,我们采用²⁴¹Am源的26.4千电子伏,33.2千电子伏及59.9千电子伏三个能峰刻度了Si(Li)探测器该能区的相对效率曲线(见图1)。由此定出谱仪探测44.03千电子伏与59.6千电子伏能量的γ光子的效率比。

实验中所采用的Si(Li)谱仪,分辨率FWHM=157电子伏(对MnK_α5.9千电子伏)。谱仪由7816 S-460型Si(Li)探测器系统和低噪声前置放大器,716 A型线性放大器及6200型1024多道分析器等电子学仪器组成,其谱仪方框图如下。

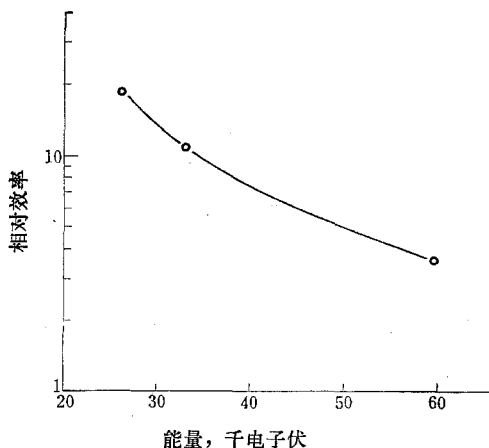


图1 Si(Li)探测器谱仪效率曲线
12.6毫米²×4.12毫米Si(Li)的相对光电峰效率,
Be窗厚度0.008毫米,源至探测器的距离1厘米。

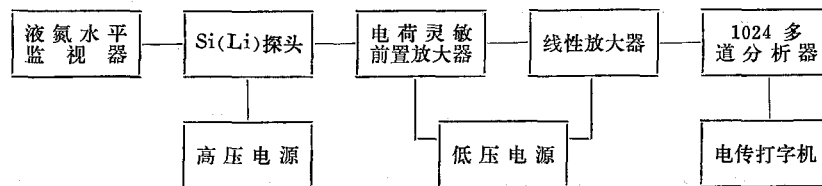


图2 Si(Li)谱仪方框图

用Si(Li)谱仪测量⁴#源的X射线和低能γ能谱如图3,所测得的部分结果列在后面的表2中。影响该方法测量准确度的因素,其一是Si(Li)探测器效率曲线标定中44.03千电

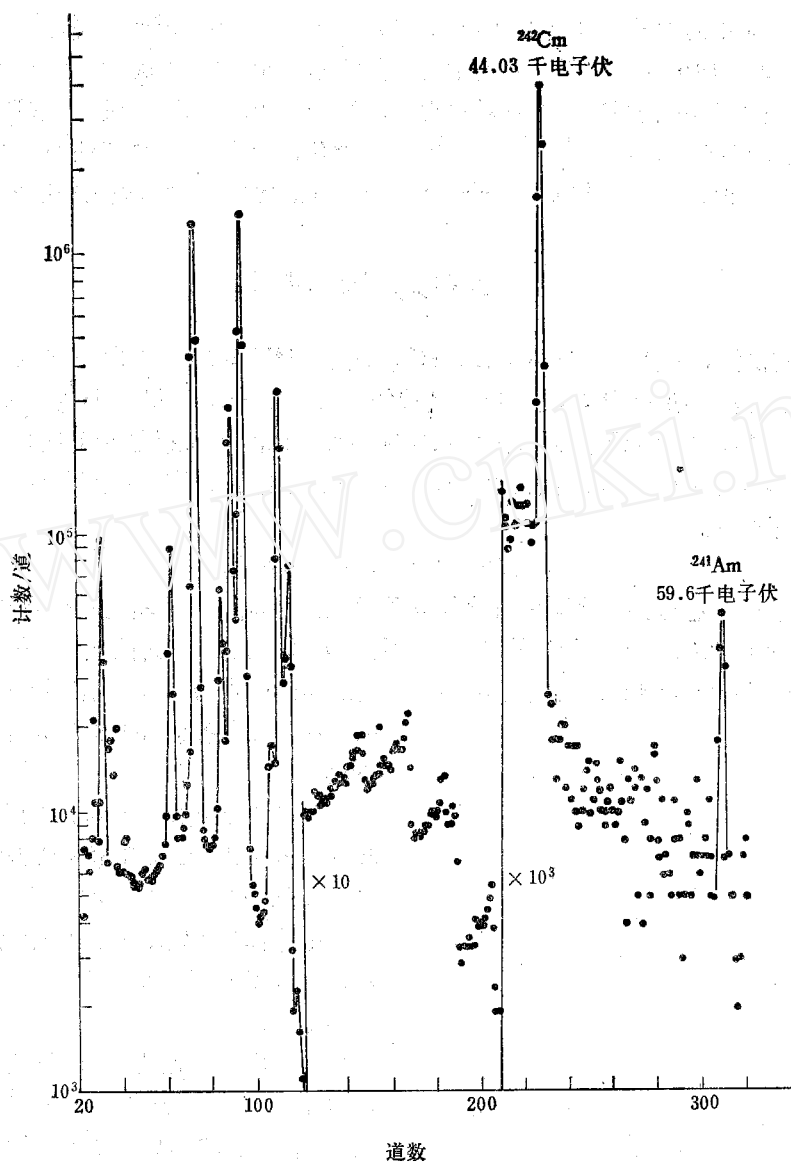


图3 ^{241}Am 源 Si(Li) 低能 γ 和 X 射线谱
 $^{241}\text{Am}/^{242}\text{Cm}$ (重量比): 2.98%

子伏能量与 59.6 千电子伏能量的效率比 k 值所引起的误差；其二是目前所使用的 Si(Li) 谱仪探测效率较低，其计数统计涨落偏差较大。

二、Ge(Li) 谱仪法

用 Ge(Li) 谱仪测定 ^{242}Cm 中含有少量 ^{241}Am 的方法，是测定 ^{241}Am 59.6 千电子伏的低能 γ 和 ^{242}Cm 157.6 千电子伏的 γ 光子，再利用效率曲线，类似于 Si(Li) 谱仪法，经简单的数学计算，方可得到 ^{241}Am 和 ^{242}Cm 的重量比。

测量设备是由 27 厘米³的 Ge(Li) 探测器，电荷灵敏前置放大器，线性放大器，4096

多道分析等组成的 Ge(Li) 谱仪, 分辨率 FWHM=2.8 千电子伏(对 ^{241}Am 59.6 千电子伏), 其谱仪方框图如下。

实验中用 ^{169}Yb 的 63.5 千电子伏(163.9), 93.6 千电子伏(5.65), 110.0 千电子伏(50.8), 118.6 千电子伏(4.92), 130.7 千电子伏(31.97), 177.0 千电子伏(57.4), 197.8

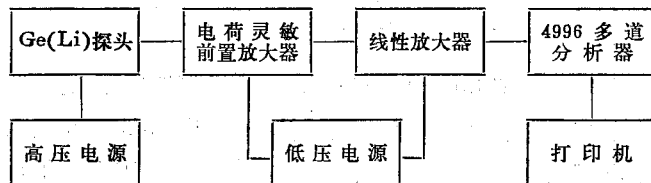


图 4 Ge(Li) 谱仪方框图

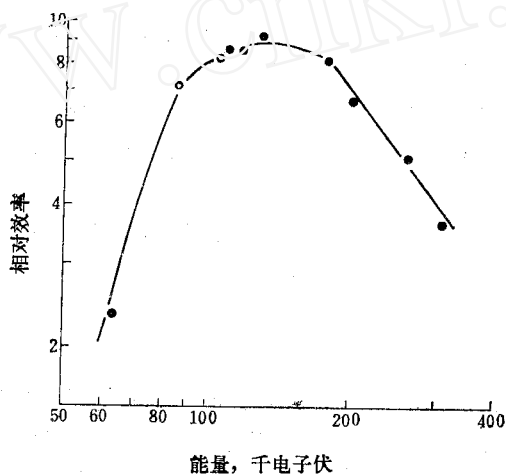


图 5 27 厘米⁸ Ge(Li) 效率曲线
●— ^{169}Yb , ○— ^{155}Eu .

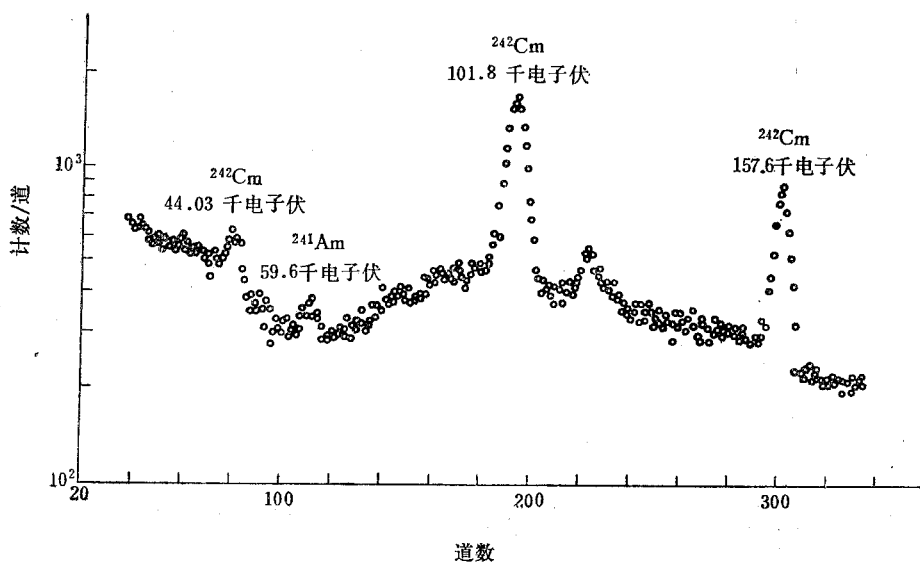


图 6 4π 源 Ge(Li) 谱仪 γ 能谱
 $^{241}\text{Am}/^{242}\text{Cm}$ (重量比): 3.85%。

千电子伏(100), 261.2 千电子伏(4.59), 307.5 千电子伏(30.82)和 ^{155}Eu 的 86.6 千电子伏(32.0), 105.5 千电子伏(22.4), 标定了 Ge(Li) 谱仪在此段能区的相对效率曲线(见图 5)。

用 Ge(Li) 谱仪测得 $4^{\#}$ 源的 γ 能谱如图 6, 所测得的部分数据列在后面的表 2 中。

三、 α - γ 符合谱仪法

α - γ 符合谱仪法测定大量 ^{242}Cm 中少量 ^{241}Am 是利用 ^{242}Cm 6.071 兆电子伏的 α 粒子与它在衰变中所发射的 44.03 千电子伏的 γ 光子符合, ^{241}Am 5.486 兆电子伏的 α 粒子与它在衰变中所发射的 59.6 千电子伏的 γ 光子符合的 ^{241}Am 和 ^{242}Cm 的 α - γ 符合谱^[7,8] (其特点仍是利用 ^{241}Am 的 γ 分支比率远比 ^{242}Cm 高), 再经能谱计算, 确定其 ^{241}Am 和 ^{242}Cm 的相对含量, 简单的数学计算如下。

$$N_{\alpha-\gamma}^{241\text{Am}} / N_{\alpha}^{242\text{Cm}} = n \cdot N_{\alpha-\gamma}^{241\text{Am}} / N_{\alpha}^{242\text{Cm}}$$

式中 $N_{\alpha-\gamma}^{241\text{Am}}$, $N_{\alpha}^{242\text{Cm}}$ 分别为测得的 ^{241}Am 的 α - γ 符合计数和 ^{242}Cm 的 α 计数; n 为一常数, 其值 $n = h \cdot a$; h 为纯 ^{241}Am 在积分或微分状态下, α 计数与 α - γ 符合计数的比 (在本工作中, 在积分条件下 $h = 18.3$); a 为 ^{242}Cm 与 ^{241}Am 的 α 比放射性比 (实验中采用 1.012×10^3)。

α - γ 符合测量装置的 α 单谱部分是由 $\phi 20$ 毫米 Si(Au) 面垒型探测器和电子学仪器组成的半导体 α 谱仪, 分辨率 FWHM = 0.4% (对 ^{241}Am 5.486 兆电子伏); γ 单谱部分是由 $\phi 40 \times 10$ 毫米的 NaI(Tl) 晶体和 6097 S 光电倍增管及电子学仪器组成的闪烁 γ 谱仪, 其分辨率 FWHM = 20% (对 ^{241}Am 59.6 千电子伏)。

谱仪采用了通用的前置放大器, 线性放大器, 单道分析器, 延迟电路, 符合电路, 符合线性门, 4096 多道分析器等电子学设备。符合电路分辨时间采用 1 微秒, 符合线性门是用 α - γ 符合脉冲去开 α 单谱的门, 测得符合的 α 谱。其谱仪装置方框图如下。

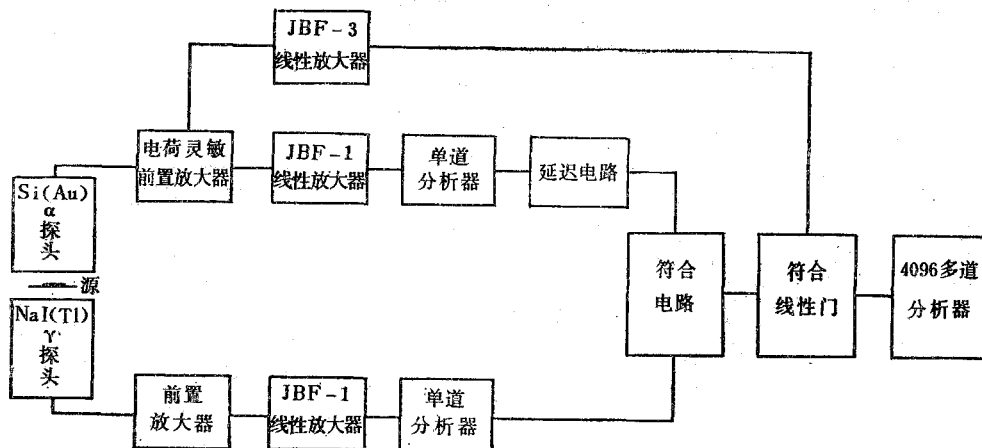


图 7 α - γ 符合谱仪方框图

该谱仪已用于大量 ^{242}Cm 中少量 ^{241}Am 的测定, 测得 $3^{\#}$ 源的 α - γ 符合谱如图 8, 所测得的部分数据列在后面的表 2 中。

影响谱仪测量结果的主要因素有:

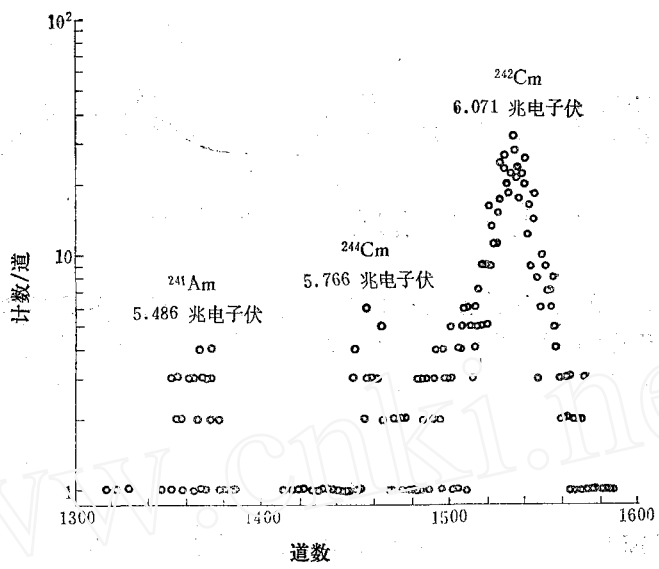


图 8 α - γ 符合的 α 能谱
 $3^{\#}$ 源积分符合谱, $^{241}\text{Am}/^{242}\text{Cm}$ (重量比): 9.6%。

(1) 前置放大器和线性放大器的计数率响应太低(≤ 1 千周), 则符合计数率太低, 故统计涨落引起的误差较大。目前只能测定 5×10^4 计数/分的 ^{242}Cm 样品, 如果计数率再增大, 一则产生堆积现象, 二则谱形变坏, 直至无法测量。

(2) 样品中 γ 光子的发射率较低, 加之薄闪烁晶体探测效率低, 显然符合计数率就很低, 故引起较大的统计涨落偏差。

α - γ 符合谱仪法, 只做了一些初步的工作, 有待于进一步改进和完善。

上述三种方法, 对于大量 ^{242}Cm 中少量 ^{241}Am 杂质的鉴定, 目前 Si(Li) 谱仪法较为理想, Ge(Li) 谱仪法可提供另一个途径的对照数据, α - γ 符合谱仪法较为有发展前途, 该方法不仅测量灵敏度远比 Si(Li) 谱仪法和 Ge(Li) 谱仪法高, 而且基本上不受较高无关 γ 射线干扰的影响。

上述方法已用于一些科研生产任务, 现将一些样品的测量结果比较如下。

表 2 三种方法测量结果的比较

源号	$^{241}\text{Am}/^{242}\text{Cm}$, %(重量)			$^{241}\text{Am}/^{242}\text{Cm}$ (α 放射性比)
	Si(Li)谱仪法	Ge(Li) 谱仪法	α - γ 符合谱仪法	Si(Li)谱仪法
1 [#]	91.2 \pm 9.54		93.5 \pm 6.40	1.12 $\times 10^{-3}$
2 [#]	67.4 \pm 2.68		77.5 \pm 4.55	8.30 $\times 10^{-4}$
3 [#]	8.35 \pm 0.35	11.5 \pm 1.97	9.6 \pm 1.85	1.03 $\times 10^{-4}$
4 [#]	2.98 \pm 0.28	3.85 \pm 0.97	2.7 \pm 0.85	3.67 $\times 10^{-5}$
5 [#]	2.63 \pm 0.31	3.6 \pm 1.21	3.0 \pm 0.87	3.23 $\times 10^{-5}$

从表中看出, 三种方法的测量结果基本上是一致的。目前, Si(Li) 谱仪法能测定 100 微居的 ^{242}Cm 中含量 $\geq 1\%$ 的 ^{241}Am , 其测量误差 $\leq \pm 10\%$ 。如果采用活性面积更大(现用的为 12 毫米²) 的 Si(Li) 探测器谱仪, 可进一步提高测量灵敏度和准确度。Ge(Li) 谱仪法能测定 100 微居的 ^{242}Cm 样品中含量 $\geq 2\%$ 的 ^{241}Am , 其误差 $\leq \pm 25\%$ 。如果采取措施降低

(下转第 359 页)

差为 $\pm 1.1\%$ ，分离出的样品经 Ge(Li) γ 谱仪鉴定，从分离后几小时至 25 天未发现 ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 以外的放射性杂质。

我们用重复两次的 α -安息香肟-乙酸乙酯萃取程序，从裂变产物溶液中分离出无载体的 ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 。最后的反萃液蒸干，经 Ge(Li) γ 谱仪鉴定有 ^{131}I 的严重沾污。再经 HNO_3 - $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 蒸干和 HClO_4 蒸干，处理以后得到纯的 ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 。

参 考 文 献

- [1] M. El-Garny et al., *J. Radioanal. Chem.*, **10**, 35 (1971).
- [2] M. K. Shehata et al., *J. Radioanal. Chem.*, **8**, 231 (1971).
- [3] L. Wish, *Anal. Chem.*, **31**, 326 (1959).
- [4] J. O. Kazttunen, *Anal. Chem.*, **35**, 1044 (1963).
- [5] Hazuo Natsume et al., *J. Nucl. Sci. & Technology*, **9**, 737 (1972).
- [6] Р. Ф. Бригевич Р. А. Кузнецов, *Радиохимия*, **12**, 412 (1970).
- [7] W. J. Maeck et al., *Anal. Chem.*, **33**, 237 (1961).
- [8] L. Wish, *Anal. Chem.*, **34**, 625 (1962).
- [9] 吉田等, *分析化学(日)*, **13**, 818 (1970).
- [10] J. W. Arden et al., *AERE-AM 88* (1962).
- [11] S. F. Marsh, *Anal. Chem.*, **39**, 696 (1967).
- [12] G. Wilkinson et al., *Nucleonics*, **9**, No. 3 52 (1951).
- [13] D. R. Wiles et al., *Phys. Rev.*, **96**, 696 (1954).
- [14] W. T. Elwell et al., *Analytical Chemistry of Molybdenum and Tungsten*, New York (1971).
- [15] H. Yoshida et al., *J. Radioanal. Chem.*, **5**, 201 (1970).
- [16] V. Pfeifer et al., *Solvent Extraction Chemistry*, Amsterdam (1967).
- [17] G. W. Reed et al., *Phys. Rev.*, **92**, 1473 (1953).

(上接第 365 页)

本底，方能得到进一步的改善。 α - γ 符合谱仪法能测定 0.1 微居的 ^{242}Cm 样品中含量 $\geq 3\%$ 的 ^{241}Am ，其误差 $\leq \pm 30\%$ 。如果采用高计数率的前置放大器和线性放大器或者行进抗堆积电路，以及采用井型 NaI(Tl) 探测器或者活性面积较大的 Si(Li) 探测器，方能使谱仪得到很大的提高和改进。

参 考 文 献

- [1] Kaoru Ueno et al., *J. Nucl. Sci. Tech.*, **11**, 8 (1974).
- [2] R. N. Chanda et al., *IN-1261* (1970).
- [3] C. M. Lederer et al., *Table of Isotopes*, Sixth Edition, 1967.
- [4] G. Erdtmann et al., *J. Radioanal. Chem.*, **27**, 264 (1975).
- [5] R. J. Gehrek, et al., *Nucl. Instrum. Methods*, **97**, 219 (1971).
- [6] D. Berenyi et al., *Nucl. Instrum. Methods*, **124**, 505 (1975).
- [7] Б. Ф. Мясоедов, *ЖАХ*, **28**, 294 (1973).
- [8] L. C. Nelson, *NBL-188* (1962).