

放化法测量 ^{79}Se 的半衰期

余润兰 郭景儒 崔安智
唐培家 李大明 刘大鸣

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

长寿命裂变产物核素 ^{79}Se 的半衰期还没有被准确地测量过, 文献中一直引用1949年测定的值:
 $T_{1/2} \leq 6.5 \times 10^4 \text{a}$ 。本工作应用放化法测量了 ^{79}Se 的半衰期。从中子照射的铀靶中分出放化纯的
 ^{79}Se , 并用液闪谱仪测量其活度。利用 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 作为监测核计算出铀靶的裂变数, 然后根据裂变产
额得到 ^{79}Se 核数。得到的 ^{79}Se 的半衰期为 $(4.8 \pm 0.4) \times 10^5 \text{a}$ 。

关键词 ^{79}Se 半衰期 裂变监测核

^{79}Se 是一个长寿命裂变产物核素。因为它在核废物处置中有可能对环境造成显著危害, 近
年来日益受到人们的重视^[1]。当估算核废物中存在的 ^{79}Se 含量以及 ^{79}Se 迁移到生物圈所造成
的辐射剂量时, 都要用到 ^{79}Se 的半衰期。但是迄今没有准确的数值可以应用。

在美国研制核武器的曼哈顿计划中, Glendenin^[2]曾在裂变产物中寻找长寿命的硒同位素。
从裂变产物分出的硒样品中, 他只观察到略高于本底的放射性, 得到的结论是, 如果存在长寿
命的 ^{79}Se , 它的半衰期将大于 $7 \times 10^6 \text{a}$ 。1949年 Parker 等^[3]测量过 ^{79}Se 的半衰期。借助于 Se 载
体, 他们从裂变产物中分出 ^{79}Se , 应用 G-M 端窗计数管对 ^{79}Se 进行绝对测量, 然后用质谱法测
量 ^{79}Se 核数。由于分出的硒样品中存在 ^{79}Br 的严重干扰, 所以只能给出 ^{79}Se 核数的上限值, 因此
他们只能给出半衰期的上限值—— $6.5 \times 10^4 \text{a}$ 。在 Parker 工作之后的几十年间, 再没有新的工
作发表。直到现在核数据文献中^[4-6]仍引用 Parker 的数据。本文试图应用放化法准确测量 ^{79}Se
的半衰期。

1 实验原理

在反应堆中辐照一个铀靶, 靶中发生的裂变数 N_f 可以通过测量一些裂变产物核素的放射
性活度按式(1)计算得到。这些裂变产物核素被称为裂变监测核, 它们的半衰期和裂变产额必
须准确已知。本工作选取的监测核为 ^{90}Sr 和 ^{137}Cs 。

$$N_f = \frac{A't}{Y_i(1 - e^{-\lambda t})} \quad (1)$$

收稿日期: 1994-03-16 收到修改稿日期: 1994-09-05

式中: A' 为辐照结束时裂变监测核的放射性活度, Bq; λ 为监测核的衰变常数, s^{-1} ; t 为辐照时间, s; Y_i 为 ^{235}U 热中子裂变中监测核的产额。

在铀靶中裂变生成的 ^{79}Se 的原子数 N , 可由总裂变数乘以 ^{79}Se 的裂变产额 Y_i 得到:

$$N = N_f \cdot Y_i \quad (2)$$

将 ^{79}Se 从铀靶中分离出来, 测量 ^{79}Se 的放射性活度 A , ^{79}Se 的半衰期 $T_{1/2}$ 可按下式计算:

$$T_{1/2} = \frac{N \ln 2}{A} \quad (3)$$

2 实验部分

2.1 铀靶的制备

取大约 1mg 核纯 U_3O_8 粉末, 用高纯铝箔包裹, 然后封入石英安瓿中, 铀的同位素组成为: 90.2% ^{235}U , 8.4% ^{238}U , 1.1% ^{234}U , 0.3% ^{236}U 。石英安瓿外面包上铝箔, 再放入照射铅桶中密封。

2.2 铀靶的照射和溶解

在我院重水反应堆的反射层中照射铀靶, 共辐照 9 个月。辐照的中子注量大约为 $5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-2}$ 。

照射过的铀靶冷却 15.5a 后, 进行溶解。剥掉外面铝箔后, 将石英安瓿外表面用稀 HNO_3 仔细清洗。然后将安瓿浸入 6mol/l HNO_3 中, 在液面下夹碎。用镊子将包裹 U_3O_8 的铝箔剥开。在沸水浴中加热溶解 U_3O_8 半小时, 溶解液吸入塑料小壶。洗涤安瓿碎片及残留铝箔两次。洗涤液与溶解液合并, 摇匀, 总体积大约 6ml。

2.3 ^{137}Cs 的测量

未经化学分离, 直接测量裂变产物中的 ^{137}Cs , 准确称取靶子溶解液 (40—90mg) 于铺有滤纸片的聚四氟乙烯测量盘中, 烘干。用 HPGc γ 谱仪测量 γ 谱, 解谱后得到 ^{137}Cs 的峰面积。校正探测效率、 ^{137}Cs 的衰变和取样系数后, 得到辐照结束时 ^{137}Cs 的放射性活度。

本院核技术应用研究所制造的 HPGc 探测器连接美国 CANBERRA 公司的 S-90 多道计算机系统组成 HPGc γ 谱仪。探测器体积 140cm^3 , 分辨率对于 ^{60}Co 1332keV 的 γ 射线的 FWHM 为 1.9keV。 ^{137}Cs 的探测效率是用 ^{137}Cs 标准溶液制成的、具有和上述测量源相同条件的标准源刻度的。 ^{137}Cs 标准溶液来自我院同位素研究所, ^{137}Cs 的比活度的不确定度为 1%。

2.4 ^{90}Sr 的测量

对裂变产物中的 ^{90}Sr 未经化学分离, 直接进行切连科夫液闪计数测量。准确称取铀靶溶解液 (10—30mg) 于盛有 5ml 0.5mol/l HNO_3 的 10ml 玻璃液闪测量瓶中。在选定的条件下进行切连科夫液闪计数。在扣除其它裂变产物核素的贡献 (主要为 ^{137}Cs), 并校正 ^{90}Sr - ^{90}Y 探测效率、 ^{90}Sr 的衰变及取样系数后, 得到 ^{90}Sr 放射性活度。应用天津医疗电子仪器厂制造的 YS-A 型双道液闪计数器测量。用来自我院放射性计量站的标准溶液 (不确定度 1%) 在相同测量条件下刻度 ^{90}Sr - ^{90}Y 的探测效率。

2.5 ^{79}Se 的放化分离和测量

应用稍加变更的 Leddicotte^[7] 的蒸馏-沉淀程序分离硒。将剩下的铀靶溶解液称重后转移到烧杯中, 准确加入已标定过的硒载体溶液 (含 Se 大约 20mg), 缓慢加热赶尽 HNO_3 。加浓 HCl , 用 NaHSO_3 溶液沉淀 Se。用浓 HNO_3 溶解 Se 沉淀, 然后赶尽 HNO_3 , 用浓 HCl 和浓 HBr 各

10ml 溶解残渣并转移到蒸馏瓶中。加入 Sr、Cs、Zr 反载体各5mg, 蒸馏 SeBr₄ 半小时, 馏份收集于含有10ml 蒸馏水并置于冰水浴的试管中。然后, 通 SO₂ 再次沉淀 Se, 离心、洗涤。沉淀溶解后重沉淀一次。分别用浓 HCl、水、乙醇洗涤 Se 后, 在110℃下烘半小时。冷却后称重, 计算化学回收率。

用少许 HNO₃ 溶解 Se, 赶尽 HNO₃ 后用1ml 水溶解。用15ml 闪烁液将溶解液转移到20ml 聚乙烯液闪测量瓶中。用美国 Beckman 公司的 LS-6000LL 液闪谱仪测量⁷⁹Se。闪烁液的组成为: 100g 萘、6gPPO、0.3g POPOP, 用二氧六环稀释到1000ml。仪器对⁷⁹Se 的探测效率和淬灭都作了校正, 测量持续到计数 1×10^4 以上。

3 结果和讨论

3.1 ⁷⁹Se、⁹⁰Sr 和¹³⁷Cs 的活度

本工作共照射两个铀靶。各取了3个平行样品进行⁹⁰Sr 和¹³⁷Cs 的测量。⁷⁹Se 在裂变产物中含量甚微, 因此需要有去污能力很强的放化流程进行分离。我们选择了 Leddicotte^[7] 的蒸馏-沉淀流程, 并做了一些修改。示踪实验表明流程对其它裂片核素的去污因数 $>10^7$ 。经检验分出的⁷⁹Se 样品是放化纯的。表1列出⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 和⁷⁹Se 的放射性活度测量结果。⁷⁹Se 的测量结果已经化学回收率校正, 靶1为74.7%, 靶2为63.9%。

表1 铀靶中⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、⁷⁹Se 放射性活度(Bq)

铀靶	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	⁷⁹ Se
1	1.468×10^7	1.558×10^7	7.46
2	1.264×10^7	1.225×10^7	5.72

3.2 (n,r)反应的影响

利用⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、⁷⁹Se 放射性测量结果计算总裂变数和⁷⁹Se 的半衰期时, 必须考虑照射过程中(n,r)反应的影响。在照射过程中, 裂变生成的⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 及⁷⁹Se 核会吸收中子, 生成⁹¹Sr、¹³⁸Cs、⁸⁰Se 而损失; 同时, 裂变产物(A-1)核⁸⁹Sr、¹³⁶Cs 及⁷⁸Se 会吸收中子而生成⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 和⁷⁹Se。

文献[4]给出了这些核素的热中子活化截面:⁹⁰Sr 为 $1.4 \times 10^{-30} \text{m}^2$, ⁸⁹Sr 为 $4.2 \times 10^{-29} \text{m}^2$, ¹³⁷Cs 为 $2.5 \times 10^{-29} \text{m}^2$, ⁷⁸Se 为 $3.8 \times 10^{-29} \text{m}^2$, 截面都很小, ¹³⁶Cs 的截面为 $1.3 \times 10^{-28} \text{m}^2$, 但是它是屏蔽核, 独立裂变产额很低。因此, 这些核素(n,r)反应引起的校正都可忽略。⁷⁹Se 的截面文献中没有实验数据, JENDL-3数据库中的理论估算值为 $5.0 \times 10^{-29} \text{m}^2$ 是比较大的, 经计算⁷⁹Se 经(n,r)反应的校正系数为1.4%。

3.3 裂变数和⁷⁹Se 半衰期

在计算裂变数和⁷⁹Se 半衰期时所应用的核数据列入表2。靶子的裂变数和⁷⁹Se 的半衰期列入表3。表3中给出的⁷⁹Se 核数已经减去了1.4%, 这是由于(n,r)反应引起的⁷⁹Se 的减少。从表3中数据可以看出, 利用⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 作为监测核所得到的总裂变数相互符合得较好。

表2 本工作中应用的核数据

核素	半衰期/a	^{235}U 热中子裂变产额 ^[10] /%
^{79}Se		0.04712
^{90}Sr	28.6 ^[8]	5.835
^{137}Cs	30.1 ^[9]	6.236

表3 ^{79}Se 半衰期测量结果

铀靶	总裂变数	^{79}Se 核数	^{79}Se 活度/Bq	^{79}Se 半衰期/a
1	(^{137}Cs) 3.46×10^{17}	1.57×10^{14}	7.46	4.62×10^5
	(^{90}Sr) 3.29×10^{17}			
	平均 3.38×10^{17}			
2	(^{137}Cs) 2.71×10^{17}	1.29×10^{14}	5.72	4.96×10^5
	(^{90}Sr) 2.85×10^{17}			
	平均 2.78×10^{17}			

两个靶得到的半衰期平均值为 $(4.79 \pm 0.17) \times 10^5 \text{a}$, 平均偏差为 3.5%。其它源项的不确定度为: ^{79}Se 放射性绝对测量为 3%, ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 裂变产额各为 1%, ^{79}Se 的裂变产额为 7.9%, 总不确定度是将平均值的偏差的平方及其它源项的不确定度的平方相加, 取其平方根, 大约为 9%。因此, 我们最终给出 ^{79}Se 的半衰期为 $(4.8 \pm 0.4) \times 10^5 \text{a}$ 。

4 结 论

本工作中中子照射的铀靶中分出放化纯的 ^{79}Se , 测量其放射性活度, 同时利用裂变监测核计算出 ^{79}Se 的原子数, 得到 ^{79}Se 的半衰期为 $(4.8 \pm 0.4) \times 10^5 \text{a}$ 。

在本工作中 ^{79}Se 的核数是间接测量的, 引入了 ^{79}Se 裂变产额的误差, 是误差的主要来源。我们正在应用另一种方法测量 ^{79}Se 的核数, 即应用串列加速器质谱法。这种方法比较准确, 不引入裂变产额的误差。

参 考 文 献

- 1 刘元方. 当前核素迁移研究的若干进展. 核化学与放射化学, 1990, 12(1): 1.
- 2 Glendenin I.E. Absence of Long-Lived Selenium in Fission I Search for ^{79}Se . In: Coryell CD, Sugarman N eds. Radiochemical Studies The Fission Products. New York: McGraw Hill, 1951. 596.
- 3 Parker GW, Creek GE, Hebert GM, et al. Radiations and Half-Life of Long-Lived Fission Selenium; ORNL-499. 1949. 45.
- 4 Lide DR. Handbook of Chemistry and Physics. 73rd ed. Boca Raton: CRC Press, 1991. 11-28.
- 5 Singh B, Viggars DA. Nuclear Data Sheets for $A = 79$. Nucl Data Sheets, 1982, 37: 393.
- 6 Browne E, Firestone RB. Table of Radioactive Isotopes. New York: John Wiley and Sons, 1980. 79-84.
- 7 Leddicotte GW. The Radiochemistry of Selenium; NAS-NS-3030. 1960. 21.
- 8 Kocher DC. Nuclear Data Sheets for $A = 90$. Nucl Data Sheets, 1975, 16: 55.
- 9 Peker LK. Nuclear Data Sheets for $A = 137$. Nucl Data Sheets, 1990, 59: 767.
- 10 James MF, Mills RW, Weaver DR. A New Evaluation of Fission Product Yields and the Production of a New Library (UKFY2) of Independent and Cumulative Yields. Part I Tables of Measured and Recom-

mended Fission Yields, Appendix B Chain Data Tables;AEA-TRS-1018, 1991.

MEASUREMENT OF HALF LIFE OF ^{79}Se USING RADIOCHEMICAL METHOD

YU RUNLAN GUO JINGRU CUI ANZHI

TANG PEIJIA LI DAMING LIU DAMING

(China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(26), Beijing 102413)

ABSTRACT

^{79}Se is a long lived fission product nuclide. Scientists gradually pay attention to ^{79}Se owing to its importance in radiowaste disposal. Its half life value must be known accurately in order to calculate its content in radiowaste and the radiation dose of ^{79}Se migrated to biosphere. Up to now, however, there is no accurate value in literature. In 1949 Parker et al. measured the half life of ^{79}Se , but they only obtained an upper limit, $T_{1/2} \leq 6.5 \times 10^4 \text{a}$, which is still used at present in nuclear data literatures.

In the present work, the half life of ^{79}Se has been measured using radiochemical method. Radiochemically pure ^{79}Se is separated from irradiated ^{235}U targets and its activity is measured by a liquid scintillation spectrometer. According to its fission yield the number of ^{79}Se nuclei is calculated by means of fission monitors. ^{137}Cs and ^{90}Sr are selected as monitors. The activity is measured using HPGe γ spectrometer for ^{137}Cs and Cherenkov liquid scintillation counting for ^{90}Sr . The half life of ^{79}Se is obtained to be $(4.8 \pm 0.4) \times 10^5 \text{a}$.

Key words ^{79}Se Half life Fission monitors