

^{235}Th β 衰变端点能量测定中的放化分离*

张天梅 李文新 袁双贵 徐树威

(中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

采用 PMBP- CHCl_3 溶剂萃取法从 ^{238}U (n, α) ^{235}Th 反应的靶材料、裂变产物及其它反应产物中分离钍, 以测定其 β 端点能量。结果表明, ^{235}Th 的半衰期为 $(7.3 \pm 0.2) \text{ min}$, 与文献值吻合。此流程的分离时间约 27 min , 化学产额约 25%, ^{235}Th 源的 γ 谱中仅有少量的碘和碲沾污。测得的 ^{235}Th 的 β 端点能量为 $(1.44 \pm 0.04) \text{ MeV}$, 从而确定其 $Q_{\beta} = (1.47 \pm 0.07) \text{ MeV}$ 。

关键词 ^{235}Th β 端点能量 萃取 PMBP

迄今为止, ^{235}Th 的 β 端点能量尚未被确定。为此, 选用 ^{238}U (n, α) ^{235}Th 反应产生 ^{235}Th , 并测定其 β 衰变端点能量。由于在作为靶物质的硝酸铀酰中, 天然铀母子体平衡时含有的大量 ^{234}Th 子体会干扰 ^{235}Th 的 β 测量; 同时, 反应产物中除 ^{235}Th 之外, 还共存有大量的靶物质铀及裂变产物, 这些裂变产物的产额比 ^{235}Th 的产额大 3-4 个数量级(其截面比约为 3×10^{-4} , 即 $0.6 \times 10^{-27} \text{ cm}^2 / 2 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$), 如不除去, 将严重干扰 ^{235}Th 的 γ 测量。为此, 本工作在文献[1]基础上, 拟定一个用 PMBP- CHCl_3 萃取纯化 ^{235}Th 的程序并用于 ^{235}Th 的 β 衰变端点能量测定。

1 实验部分

1.1 主要试剂和仪器

$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$; 1-苯基-3-甲基-4-苯酰基吡唑啉酮-5^[5] (PMBP), 分析纯, 使用时用 CHCl_3 (分析纯) 配制成 0.05 mol/L ; K-600 kV 高压倍加器, 上海先锋厂出品; HPGe 探测器, 相对效率 18%, 对 ^{60}Co 1.332 MeV 处的能量分辨率为 1.9 keV; 半导体望远镜 β 谱仪^[2]; PC-CAMAC 多参数获取系统^[3]。

选用 $\text{UX}_1(^{234}\text{Th})$ 作钍的放射性指示剂。该同位素半衰期为 24.1 d, 子体 $\text{UX}_2(^{234}\text{Pa}^m)$ 的 $E_{\beta} = 2.29 \text{ MeV}$, 易于测量并可以从天然铀中制得。

1.2 化学分离流程的建立

1.2.1 铀靶 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 中总 γ 放射性的测定 按图 1 所示流程将 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 转化成 $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ 并测量其总 γ 放射性(以 N_{γ} 表示), 以此作为未分离 Th 的计数标准。

* 国家自然科学基金资助项目

收稿日期: 1996-05-20 收到修改稿日期: 1996-12-24

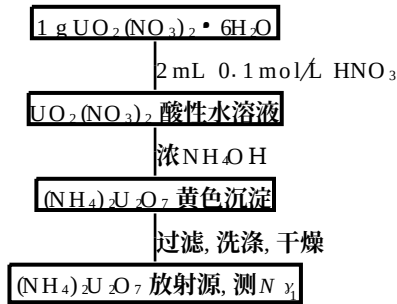


图 1 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 转化为 $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ 的流程框图

1.2.2 PMBP- CHCl_3 萃取 ^{234}Th 按图 2 所示流程将 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 用 PMBP- CHCl_3 萃取二次后, 在不同步骤制源测其放射性 N_{γ_2} 、 N_{γ_3} 和 N_{γ_4} 。将图 1、2 各步测量结果列入表 1。由表 1 看出, 第一次萃取, Th 的萃取率为 93%, 二次萃取, Th 的萃取率可提高到 98%。

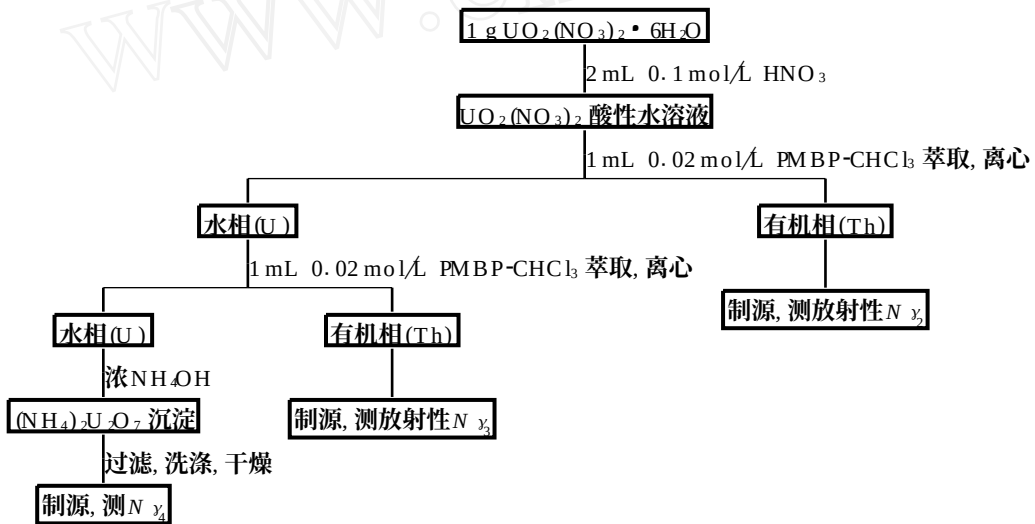


图 2 PMBP- CHCl_3 二次萃取 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 的流程

表 1 PMBP- CHCl_3 萃取 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 前后的 γ 放射性测量结果

	$N_{\gamma_1}/\text{m in}^{-1}$	$N_{\gamma_4}/\text{m in}^{-1}$	$N_{\gamma_4}/N_{\gamma_1}$	$N_{\gamma_2}/\text{m in}^{-1}$	$N_{\gamma_3}/\text{m in}^{-1}$
93 keV	18780	1006	~ 5%	17325	420
1001 keV	340	3	0.8%		

1.2.3 ^{235}Th 的纯化 辐照后的靶子经 PMBP- CHCl_3 一次萃取后, 大量的靶物质铀和裂变碎片被分离除去。但干扰 ^{235}Th β 衰变端点能量测量的核素除了 ^{234}Th 外, 还有 ^{101}Mo 、 $^{101, 104}\text{Tc}$ 、 ^{134}I 和 ^{131}I 等。为此, 实验将硝酸铀酰转化为重铀酸铵(图 3)后进行辐照, 然后将辐照后的重铀酸铵溶解, PMBP 萃取纯化 ^{235}Th (图 4)。 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 转化成 $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ 后, 不仅除去了大量 ^{234}Th , 而且也使铀靶中的铀含量由 47.40% 增加到 76.20%, 从而提高了核反应的有效靶量。用

PMBP 萃取法将辐照过的铀靶进行萃取分离, 将极微量的反应产物 ^{235}Th 从大量的靶物质铀及裂变产物中分离、纯化出来, 进行 γ 测量。由 γ 射线的能量、半衰期及分支比等关系, 确认了 ^{235}Th 的存在。将分离纯化后的 ^{235}Th 制成 β 源, 即可进行 β 端点能量的测量。

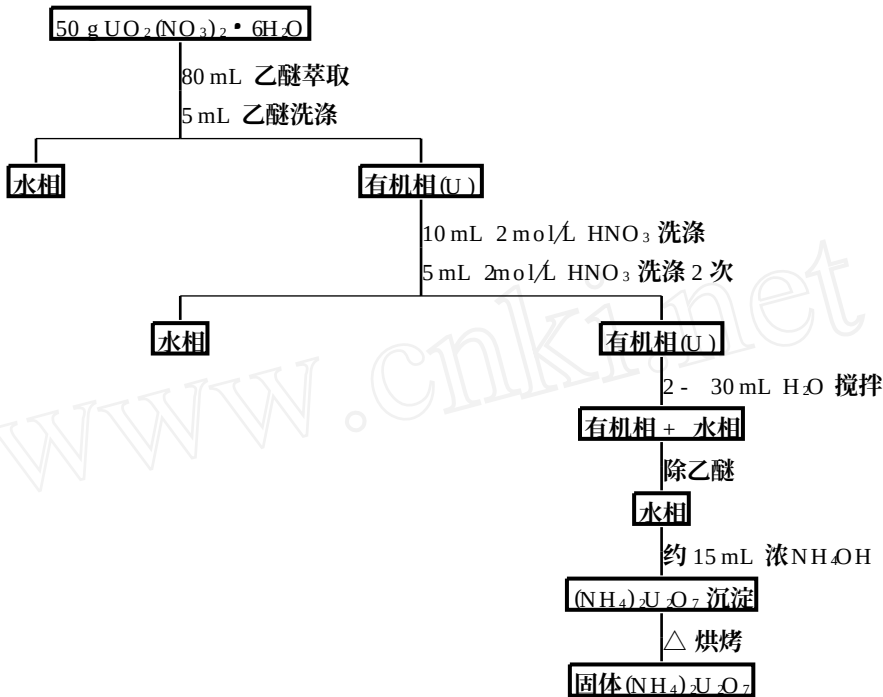


图 3 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 转化为固体 $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ 流程图

2 结果与讨论

约 7 g $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ 在中国科学院近代物理所高压倍加器上用 14 MeV 中子照射 20 min。照射之后立即用图 4 给出的流程对样品进行化学分离并制成 β 源, 用一台半导体望远镜 β 谱仪和一台 HPGe 探测器分别探测 β 和 γ 放射性, 用 M-20 多道分析器获取了时间序列谱并记录于磁带上。测到了文献[1]中给出的所有 17 条 γ 峰。图 5 和图 6 分别给出了所测 ^{235}Th 源最强峰 417.0 keV 的 γ 射线衰变曲线和部分 γ 谱。为了对 β 谱进行分解, 测量时间持续了约 5 h (^{235}Th 的半衰期约为 7 min)。在所测得的 β 谱中仅包含 ^{235}Th 及其子体 ^{235}Pa 和少量的 ^{234}Th 及其子体 ^{234}Pa , 利用它们半衰期不同的特点, 可以对测得的 β 谱进行分解。 β 测量的结果及对 ^{235}Th 和其子体 ^{235}Pa 的 Fermi-kurie 标绘参见文献[4]。由 γ 测量得到的 ^{235}Th 的半衰期值 (7.3 ± 0.2) min 与 β 测量得到的结果相符合, 与文献[5]给出的值也吻合很好, 进而得到了 417 keV γ 射线对跃迁到 ^{235}Th 子体基态区域的 γ 射线的分支比为 $2\% \pm 1\%$, 这一结论支持了由 Mirzadeh 等^[1]用其它方法给出的 ^{235}Th 的部分能级图。根据这个衰变纲图, 确定了 ^{235}Th 的 $Q_\beta = (1.47 \pm 0.07)$ MeV。这个结果与由 Asghar 等^[6]根据 Q_α 测定值推出的 Q_β 值 (1.44 ± 0.08) MeV 符合得很好。

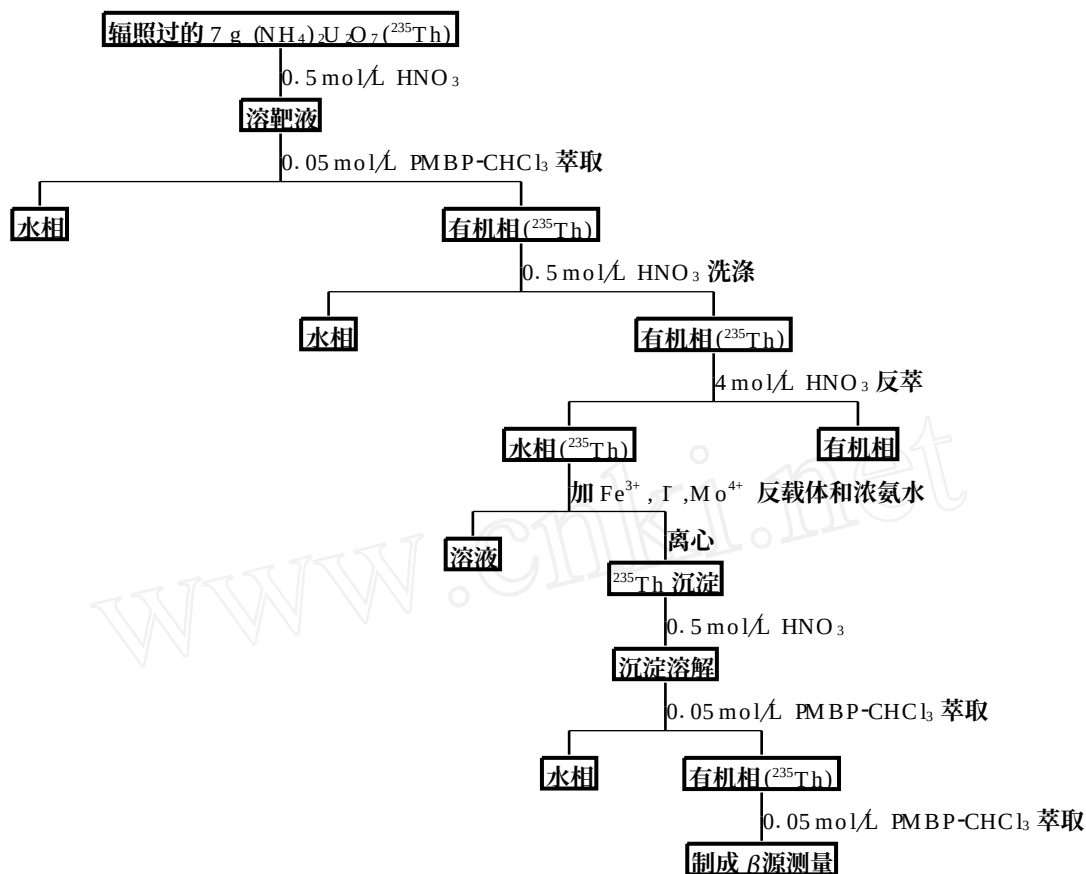


图 4 $^{238}\text{U} (n, \alpha) ^{235}\text{Th}$ 反应中 ^{235}Th 的化学分离流程

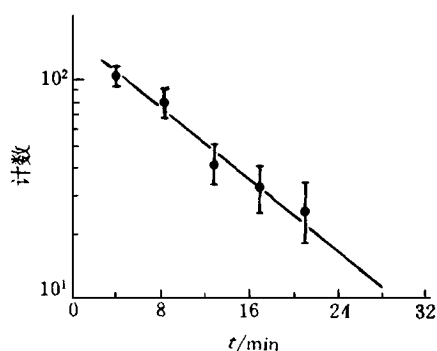


图 5 ^{235}Th 417 keV γ 射线衰变曲线

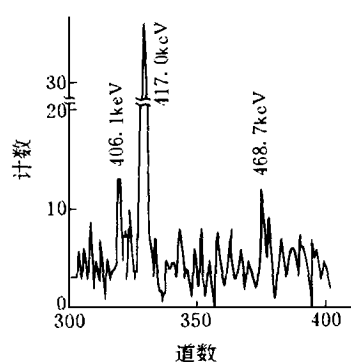


图 6 ^{235}Th 的部分 γ 谱

3 结 论

此流程的分离时间约 27 min (包括照射结束靶子被传出及制源后开始测量)。由于分离后的样品是用于测量 β 放射性, 即必须制成对自吸收和散射作用可忽略不计的薄源, 实验采用了 PMBP 萃取法, 其化学产额约 25%。尽管 ^{235}Th 源的 γ 谱中有少量的碘和碲的沾污, 但用此化学分离流程得到的 ^{235}Th 样品完全能满足 ^{235}Th β 端点能量的测量要求。

参 考 文 献

- 1 武汉大学化学系等编著 稀土元素分析化学(上). 北京: 科学出版社, 1981. 149
- 2 袁双贵, 徐树威, 张天梅, 等 半导体望远镜 β 射线谱仪 核技术, 1989, 12(5), 273
- 3 Du Yifei PC-CAMAC Multiparameter Data Acquisition System. Annual Report of Institute of Modern Physics 1990, 123
- 4 Yuan Shuanggui, Zhang Tianmei, Xu Shuwei, et al Determination of the ^{235}Th β Decay Endpoint Energy. Phys Rev C, 1989, 39 (1): 256
- 5 Mirzadeh S, Chu YY, Katcoff S, et al Decay of 7.3 min ^{235}Th and 24.6 min ^{235}Pa Phys RevC, 1986, 33: 2159
- 6 Asghar M, Em sallen A, Chery R, et al The ^{238}U (n, α) ^{235}Th Reaction With Thermal Neutrons Nucl Phys A, 1976, 259: 429

RADIOCHEMICAL SEPARATION AND IDENTIFICATION IN THE DETERMINATION OF ^{235}Th β DECAY ENDPOINT ENERGY

Zhang Tianmei Li Wenxin Yuan Shuanggui Xu Shuwei

(Institute of Modern Physics, the Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000)

ABSTRACT

A radiochemical method of solvent extraction with PMBP- CHCl_3 has been used to separate thorium from the fission products and irradiated target material in ^{238}U (n, α) ^{235}Th reaction for determination β decay endpoint energy of ^{235}Th . The results indicate that the half-life of ^{235}Th is (7.3 ± 0.2) min in which is in good agreement with the reference value. The separation time of this procedure is about 27 min and the chemical yield is close to 25%. Measured β decay endpoint energy of ^{235}Th is (1.44 ± 0.04) MeV and Q_{β^-} (1.47 ± 0.07) MeV.

Key words ^{235}Th β decay endpoint energy Solvent extraction PMBP