

# 用于超铀元素测定的高分辨率 $\alpha-\gamma$ 符合谱仪的研制

乔盛忠 陈恒良 佟伯庭 吕峰 刘亨军

(原子能研究所)

本文描述了高分辨率 $\alpha-\gamma$ 符合谱仪的结构、性能指标及其在重元素核素的相对和绝对含量测定中的应用。目前该谱仪的符合 $\alpha$ 能谱的能量分辨率为0.25%（对5.486兆电子伏，FWHM=13.8千电子伏）；稳定性在八小时内能峰漂移为±0.05%；4—8兆电子伏区间能量非线性<0.2%。文中还简略地叙述了一些实际应用的测量原理及其方法。

## 一、引言

符合技术是射线物理测量方法中的一种重要手段，它具有较高的选择性和一般谱仪所不具备的抗干扰能力。符合谱仪的种类很多，如 $\alpha-\gamma$ 、 $\beta-\gamma$ 、 $\gamma-\gamma$ 、 $\alpha-X$ 、 $\alpha-e^-$ 等种符合谱仪，它们各有其不同的特点和用途。

$\alpha-\gamma$ 符合谱仪早在五十年代初期就开始研制并用于超铀元素核素的测量和核性质的研究<sup>[1,2]</sup>。早期是用ZnS(Ag)、正比计数器、电离室、液体闪烁计数器等种探测器与NaI(Tl)探测器组成符合装置<sup>[3,4]</sup>。随着核探测技术的发展以及在六十年代半导体探测器的研制成功和应用，使符合测量技术有了很大的提高，随后出现了Si(Au)探测器与NaI(Tl)探测器组成的 $\alpha-\gamma$ 符合谱仪<sup>[5,6]</sup>以及Si(Au)探测器与Ge(Li)、Si(Li)、高纯锗等探测器组成的 $\alpha-\gamma$ 符合谱仪<sup>[7,8]</sup>。这些符合谱仪的建立，为重元素核素的探测和研究提供了重要的手段<sup>[9-12]</sup>。1969年法国全国科学研究中心核谱和质谱中心的A.Peghaire<sup>[6]</sup>研制了一台 $\alpha-\gamma$ 符合谱仪， $\alpha$ 探头采用有效面积为1厘米<sup>2</sup>的Si(Au)面垒型探测器，其分辨率为30至40千电子伏； $\gamma$ 探头采用 $\phi 1\frac{3}{4} \times 2$ 英吋的井型NaI(Tl)探测器，井为 $\phi 6 \times 32$ 毫米，铍窗厚度为2毫米。

1973年苏联杜布纳联合核子研究所B.Ф.Мясоедов等人<sup>[6]</sup>发表了相似的另一个工作， $\alpha$ 探头采用有效面积为1.5厘米<sup>2</sup>的Si(Au)面垒型探测器，其能量分辨率为1%； $\gamma$ 探头采用的是 $\phi 40 \times 10$ 毫米的平面NaI(Tl)探测器。1973年美国阿贡国立实验室P.R.Fields等人<sup>[12]</sup>用 $\phi 6$ 毫米的Si(Au)面垒型探测器和 $\phi 76 \times 76$ 毫米的NaI(Tl)探测器组成的 $\alpha-\gamma$ 符合谱仪

1980年8月8日收到。

对<sup>252</sup>Es的某些核性质进行了研究，其符合能谱的分辨率为14.5千电子伏左右。

本工作的 $\alpha$ 探头采用的是 $\phi 8$ （或 $\phi 20$ ）毫米的Si(Au)面垒型探测器，为了降低探测器的电流性噪声、提高谱仪的能量分辨率，在原已研制的低温高分辨率半导体 $\alpha$ 谱仪（FWHM=12.2千电子伏，对5.486兆电子伏）的基础上<sup>[1,3]</sup>，采用了半导体致冷装置对符合探头的Si(Au)面垒型探测器进行冷却，使其Si(Au)探测器的漏电流约降低两个数量级。 $\gamma$ 探头采用的是专门试制的 $\phi 40 \times 35$ 毫米的井型NaI(Tl)探测器，井为 $\phi 20 \times 25$ 毫米，井壁为0.5毫米厚的铝窗。符合谱仪的能量分辨率对5.486兆电子伏，采用 $\phi 8$ 探测器为0.25%（13.8千电子伏），采用 $\phi 20$ 毫米探测器为0.40%（21.9千电子伏）。

## 二、 $\alpha$ - $\gamma$ 符合谱仪

本 $\alpha$ - $\gamma$ 符合谱仪既能用于重元素核素的绝对测量，又能用于重元素核素的符合 $\alpha$ 能谱测量。谱仪装置如图1所示，谱仪结构方框图表示在图2中。符合谱仪的 $\alpha$ 道由 $\phi 8$ 或 $\phi 20$ 毫

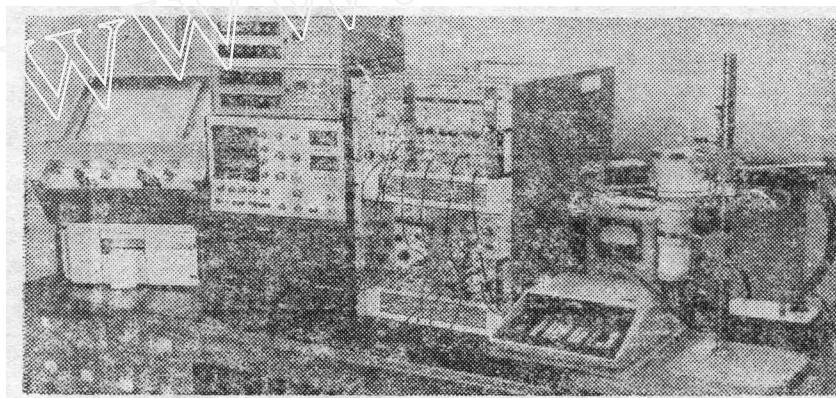


图1  $\alpha$ - $\gamma$ 符合谱仪

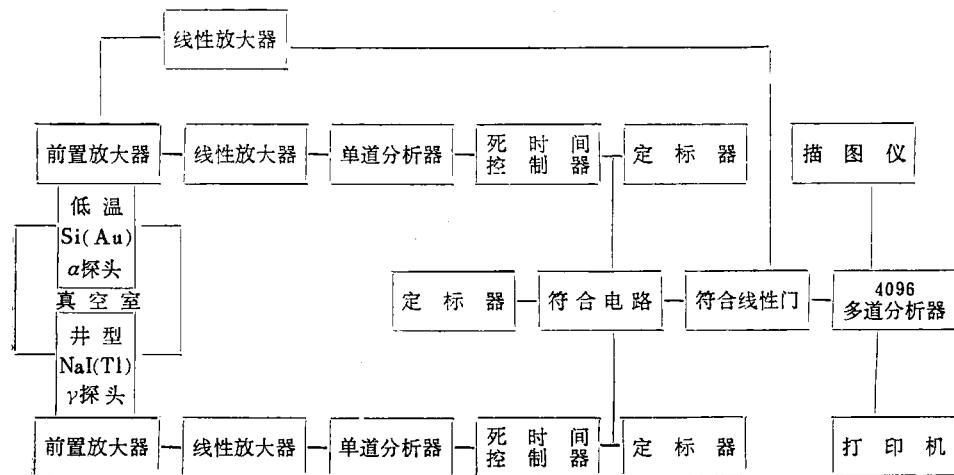


图2  $\alpha$ - $\gamma$ 符合谱仪方框图

米的 Si(Au)面垒型探测器的  $\alpha$  探头和电子学仪器组成。Si(Au)探测器用半导体致冷装置进行了冷却，其温度可从室温(25℃)降至-25℃，漏电流约降低两个数量级，使分辨率得到了进一步的改善，探测器越大，低温效果越显著(见表1)。 $\gamma$  道由  $\phi 40 \times 35$  毫米(井为  $\phi 20 \times 25$  毫米)的井型 NaI(Tl)探测器、6097S 光电倍加管的  $\gamma$  探头和电子学仪器组成。其符合探头的结构如图3所示。 $\gamma$  探头采用井型晶体，封装外壳的井壁为0.5毫米厚的铝窗，目的是，第一，提高  $\gamma$  射线的几何探测效率，(一般井型晶体比同样体积的平面型晶体几何效率约高三倍左右)；第二，可根据不同的核素，选择源在井中的位置，以获得最高的符合计数率。 $^{243}\text{Am}$  的  $\alpha$ ,  $\gamma$  和  $\alpha-\gamma$  符合计数率及  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$  和  $^{242}\text{Cm}$  的符合计数率随放射源在井中位置变化的关系曲线分别表示于图4的(a)和(b)中；第三，NaI(Tl)井晶体周围的厚度均约为10毫米，能满足于一般大多为中低能  $\gamma$  射线的重元素核素的探测，同时可使环境  $\gamma$  射线保持较低的计数效率，从而减小  $\gamma$  射线的本底。

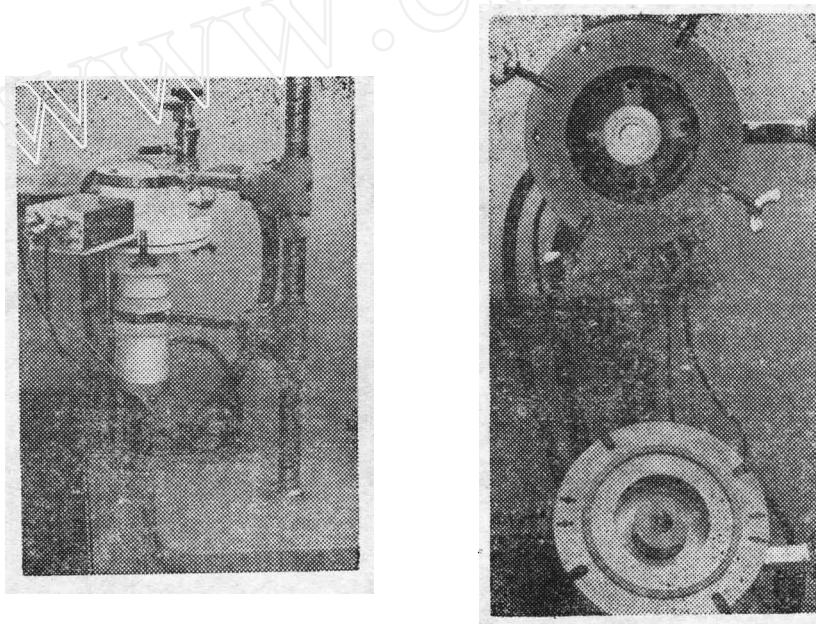


图3  $\alpha-\gamma$  符合探头结构图

符合谱仪是按如下方式实现测量的。 $\alpha$  粒子在 Si(Au) 面垒型探测器中产生电子-空穴对，并在电极上收集到电荷，经前置放大器转换为一电压脉冲并加以功率放大，再经线性放大器放大后输入单道脉冲分析器，单道分析器的输出进入门脉冲产生器，门脉冲产生器的输出分为两路，一路进入定标器记录  $\alpha$  脉冲，另一路进入符合电路与  $\gamma$  道来的由  $\alpha$  衰变伴随产生的  $\gamma$  射线脉冲进行符合； $\alpha$  衰变到激发态的核退激时所放出的  $\gamma$  射线被 NaI(Tl) 晶体所探测，经光电倍增管的光电转换，在阳极上形成一电压脉冲，经前置放大器阻抗匹配和功率放大后，同  $\alpha$  脉冲一样依次被输入线性放大器、单道分析器以及门脉冲产生器，其后同样被分为两路，一路输入定标器记录  $\gamma$  脉冲，另一路输入符合电路与  $\alpha$  道来的相关联的  $\alpha$  脉冲进行符合。符合道的输出分为两路，一路输入定标器记录符合计数，另一路输入符合线性门作为控制门的开门信号。从  $\alpha$  道的前置放大器的输出端再引出一路信号(见图2)，经另一线性放大器放大以后直接输入符合线性门，在开门信号的控制下，只让相关联的  $\alpha$  脉冲有输出，并

进入模拟数字转换器进行脉冲数字转换，然后输入多道分析器进行符合的 $\alpha$ 能谱分析。

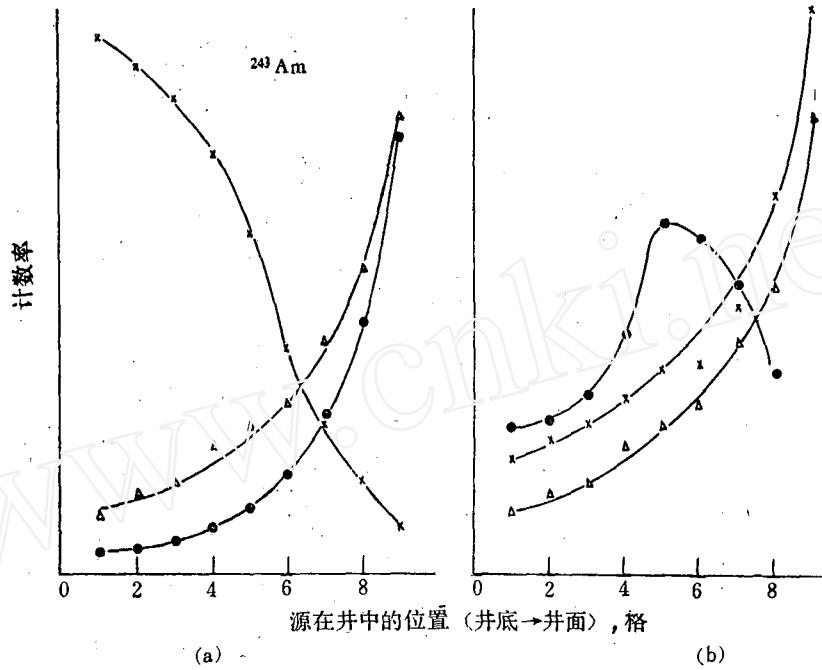


图4  $\alpha, \gamma, \alpha-\gamma$ 计数率随源在井中位置的变化

- (a)  $\alpha, \gamma, \alpha-\gamma$ 符合计数随源位置的变化;  $\times$ — $\gamma$ ;  $\Delta$ — $\alpha-\gamma$ ;  $\bullet$ — $\alpha$ 。  
 (b) 不同核素的 $\alpha-\gamma$ 符合计数随源位置的变化;  $\times$ — $^{241}\text{Am}$ ;  $\Delta$ — $^{243}\text{Am}$ ;  $\bullet$ — $^{242}\text{Cm}$ 。

### 三、谱仪性能指标的测试

(1) 谱仪能量分辨率的测定 采用 $^{241}\text{Am}$ 电沉积源在室温和低温下测定谱仪的 $\alpha$ 能谱和 $\alpha-\gamma$ 符合谱的能量分辨率, 其结果列在表1中。1#探测器的 $\alpha-\gamma$ 符合能谱表示在图5中。目前最佳能量分辨率对于5.486兆电子伏,  $\text{FWHM} = 13.8$ 千电子伏。

表1 Si(Au)探测器的能量分辨率

| 探 测 器 |                 |                          | $\alpha$ 能 谱 分 辨 率 |      | $\alpha-\gamma$ 合 符 能 谱 分 辨 率 |      |
|-------|-----------------|--------------------------|--------------------|------|-------------------------------|------|
| 序号    | 活性区 $\phi$ , mm | 工作温度, $^{\circ}\text{C}$ | FWHM, keV          | %    | FWHM, keV                     | %    |
| 1#    | 8               | 25                       | 15.4               | 0.28 | 16.4                          | 0.30 |
|       |                 | -25                      | 13.4               | 0.24 | 13.8                          | 0.25 |
| 2#    | 8               | 25                       | 15.6               | 0.28 | 16.2                          | 0.30 |
|       |                 | -25                      | 14.3               | 0.26 | 14.6                          | 0.27 |
| 3#    | 20              | 25                       | 27.0               | 0.49 | 27.2                          | 0.50 |
|       |                 | -25                      | 21.7               | 0.40 | 21.9                          | 0.40 |
| 4#    | 20              | 25                       | 33.2               | 0.61 | 34.7                          | 0.63 |
|       |                 | -25                      | 27.1               | 0.49 | 28.2                          | 0.51 |

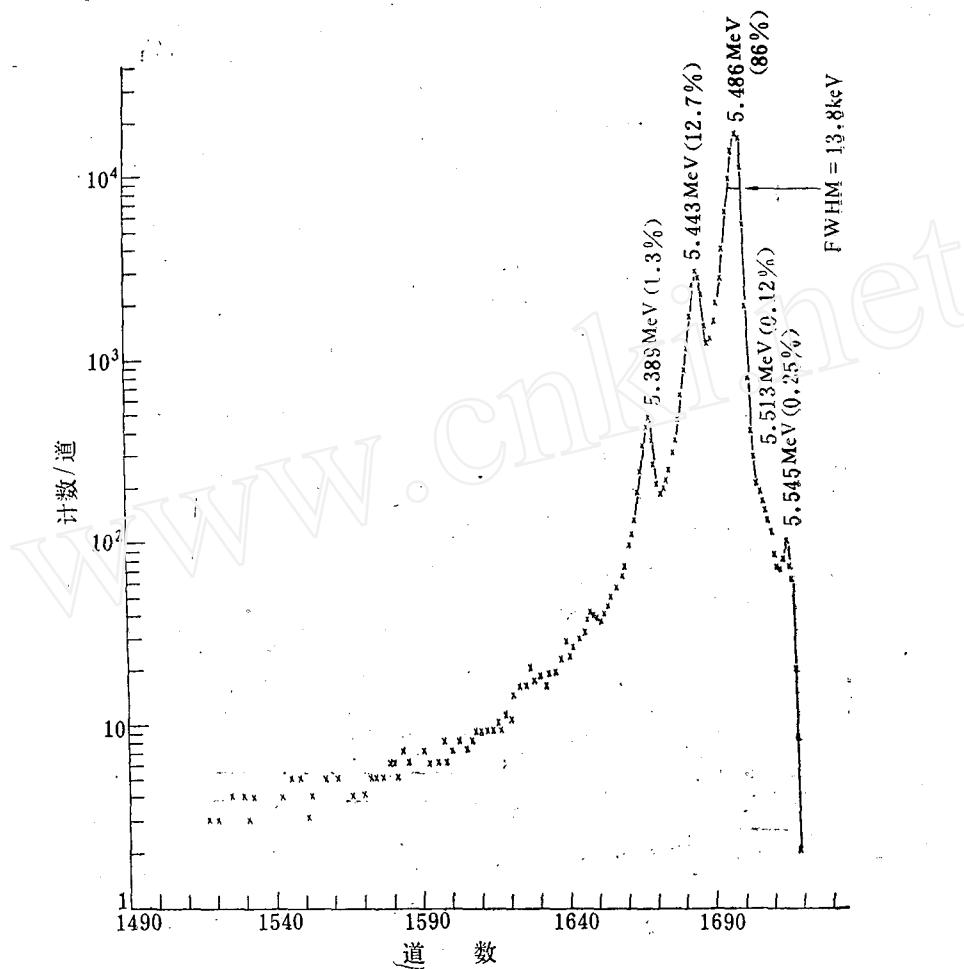


图 5 1#探测器的 $^{241}\text{Am}$   $\alpha$ - $\gamma$ 符合能谱  
源至探测器的距离10mm，能量刻度2.6keV/道。

(2) 谱仪稳定性的测定 采用 $^{241}\text{Am}$ 源对谱仪的稳定性进行了测定，对于5.486兆电子伏的 $\alpha$ 粒子在八小时内能峰漂移为±2.7千电子伏，相对于5.486兆电子伏的能量漂移为±0.05%。

(3) 谱仪能量线性的测定 采用 $^{242}\text{Pu}$ 的4.863、4.903兆电子伏， $^{239}\text{Pu}$ 的5.107、5.157兆电子伏， $^{241}\text{Am}$ 的5.389、5.443、5.486兆电子伏； $^{243}\text{Cm}$ 的5.742、5.786兆电子伏； $^{244}\text{Cm}$ 的5.763、5.806兆电子伏； $^{242}\text{Cm}$ 的6.071、6.115兆电子伏等能峰对 $\alpha$ 谱及 $\alpha$ - $\gamma$ 符合谱的能量线性进行了测定。其符合能谱最大能量偏离小于0.2%。

(4) 符合电路分辨时间的测定 采用偶然符合法对符合电路的分辨时间进行了测定。 $\alpha$ 源采用 $^{242}\text{Cm}$ ， $\gamma$ 源采用 $^{60}\text{Co}$ 。测得符合电路的分辨时间1微秒和2微秒档分别为1.02和1.99微秒，实验中固定为1微秒档。

(5)  $\alpha$ 道和 $\gamma$ 道死时间的测定 采用双脉冲法在所用系统条件下测得 $\alpha$ 道和 $\gamma$ 道的死时间为3微秒和2微秒。实验中用门脉冲产生器将死时间均固定为3微秒。

#### 四、 $\alpha$ - $\gamma$ 符合谱仪的应用

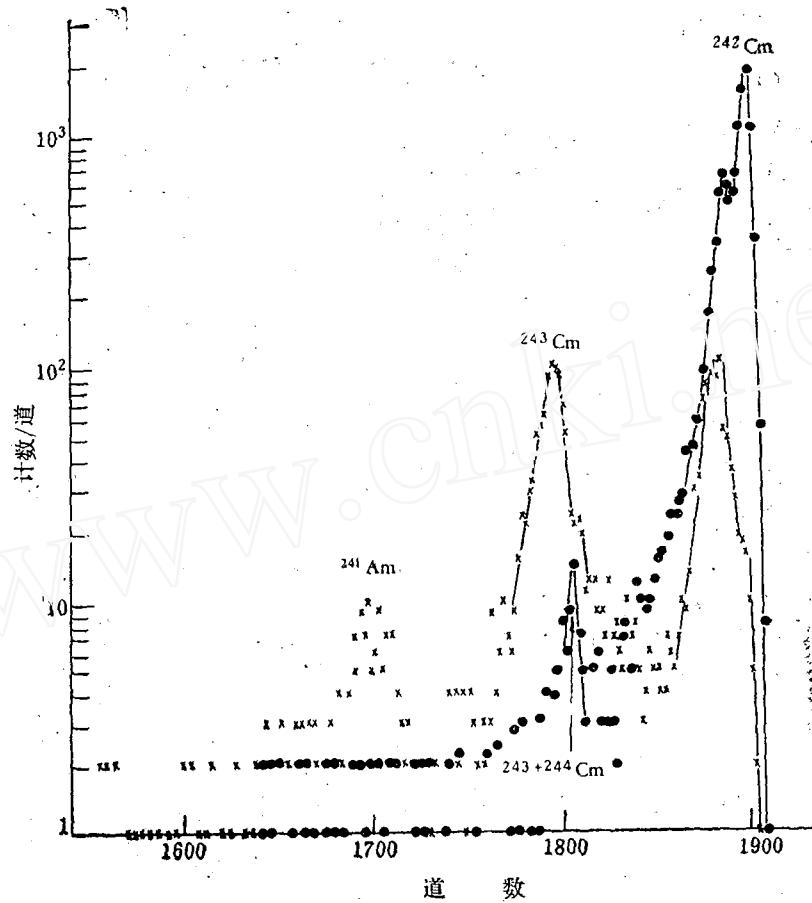
(1) 大量 $^{242}\text{Cm}$ 中少量 $^{241}\text{Am}$ 的测定  $^{241}\text{Am}$ 和 $^{242}\text{Cm}$ 主要为 $\alpha$ 衰变核素, 由于 $^{241}\text{Am}$ 的5.486, 5.443兆电子伏等组 $\alpha$ 能峰处于 $^{242}\text{Cm}$ 的6.115, 6.071兆电子伏等组 $\alpha$ 能峰的低能谱尾上, 在 $^{241}\text{Am}$ 的含量很低时应用 $\alpha$ 能谱分析时就产生了测定的困难。目前较高分辨率的半导体 $\alpha$ 谱仪, 可测定 $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ 二者的 $\alpha$ 放射性的比例约为 $10^{-3}$ , 比值再高,  $\alpha$ 能谱法就无法进行测定。高分辨率的 $\gamma$ 谱仪(尤其是Si(Li)谱仪)可以测定 $^{242}\text{Cm}$ 中 $\alpha$ 放射性含量约为 $10^{-5}$ 的 $^{241}\text{Am}$ , 但裂片元素核素的干扰必须加以考虑, 并且取样量要相当大(一般要求取几十微居的 $^{242}\text{Cm}$ )。若采用 $\alpha$ - $\gamma$ 符合谱仪, 则可较好地解决这个问题。其优点是 $\alpha$ - $\gamma$ 符合谱仪不仅利用了这两个核素 $\gamma$ 分支比率相差悬殊(约为 $10^3$ )的特点, 而且具有较强的抗裂片 $\gamma$ 射线干扰的能力; 同时, 测量的取样量可以小到1微居或更低, 这从剂量、操作安全、经济上都为分析工作带来很大的好处。

测量方法是利用 $^{242}\text{Cm}$ 6.071兆电子伏等能量的 $\alpha$ 粒子与在 $\alpha$ 衰变中伴随发射的44.03千电子伏(0.039%)等能量的 $\gamma$ 射线产生符合;  $^{241}\text{Am}$ 5.486兆电子伏等能量的 $\alpha$ 粒子与59.6千电子伏(35.3%)等能量的 $\gamma$ 射线产生符合, 测得符合的 $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ 的 $\alpha$ - $\gamma$ 符合能谱, 经解谱计算求得 $^{241}\text{Am}$ 的符合计数率, 再根据预先测定的 $^{241}\text{Am}$ 的 $\alpha/\alpha$ - $\gamma$ 计数比值, 求出混合源中的 $^{241}\text{Am}$ 的 $\alpha$ 计数率。另外从 $\alpha$ 道的定标器上可以同时获得混合源的总 $\alpha$ 计数率, 这两个值的比值就是 $^{241}\text{Am}$ 与 $^{242}\text{Cm}$ 的测量结果<sup>[6, 14, 15]</sup>(在 $\alpha$ 放射性相差不悬殊时, 要从混合源的总 $\alpha$ 计数中减去 $^{241}\text{Am}$ 的计数)。表2中列出了测量结果的部分数据, 作为比较的Si(Li)谱仪法的测量数据也列在表中, 2#样品的 $\alpha$ 及 $\alpha$ - $\gamma$ 符合能谱如图6所示。

表2  $^{242}\text{Cm}$ 中 $^{241}\text{Am}$ 的部分测量结果

| 样 品 | $\alpha$ - $\gamma$ 符合法, $^{241}\text{Am}/^{242}\text{Cm}$ |                       | Si(Li)谱仪法, $^{241}\text{Am}/^{242}\text{Cm}$ |                       |
|-----|--|-----------------------|--|-----------------------|
|     | 重量比, %   | $\alpha$ 放射性比         | 重量比, %                                       | $\alpha$ 放射性比         |
| 1#  | 93±6.4   | $1.15 \times 10^{-3}$ | 91±9.5                                       | $1.12 \times 10^{-3}$ |
| 2#  | 25±2.5   | $3.03 \times 10^{-4}$ | —  | —                     |
| 3#  | 10±1.9   | $1.18 \times 10^{-4}$ | 8.4±0.85                                     | $1.03 \times 10^{-4}$ |
| 4#  | 2.7±0.85   | $3.35 \times 10^{-5}$ | 3.0±0.28                                     | $3.67 \times 10^{-5}$ |

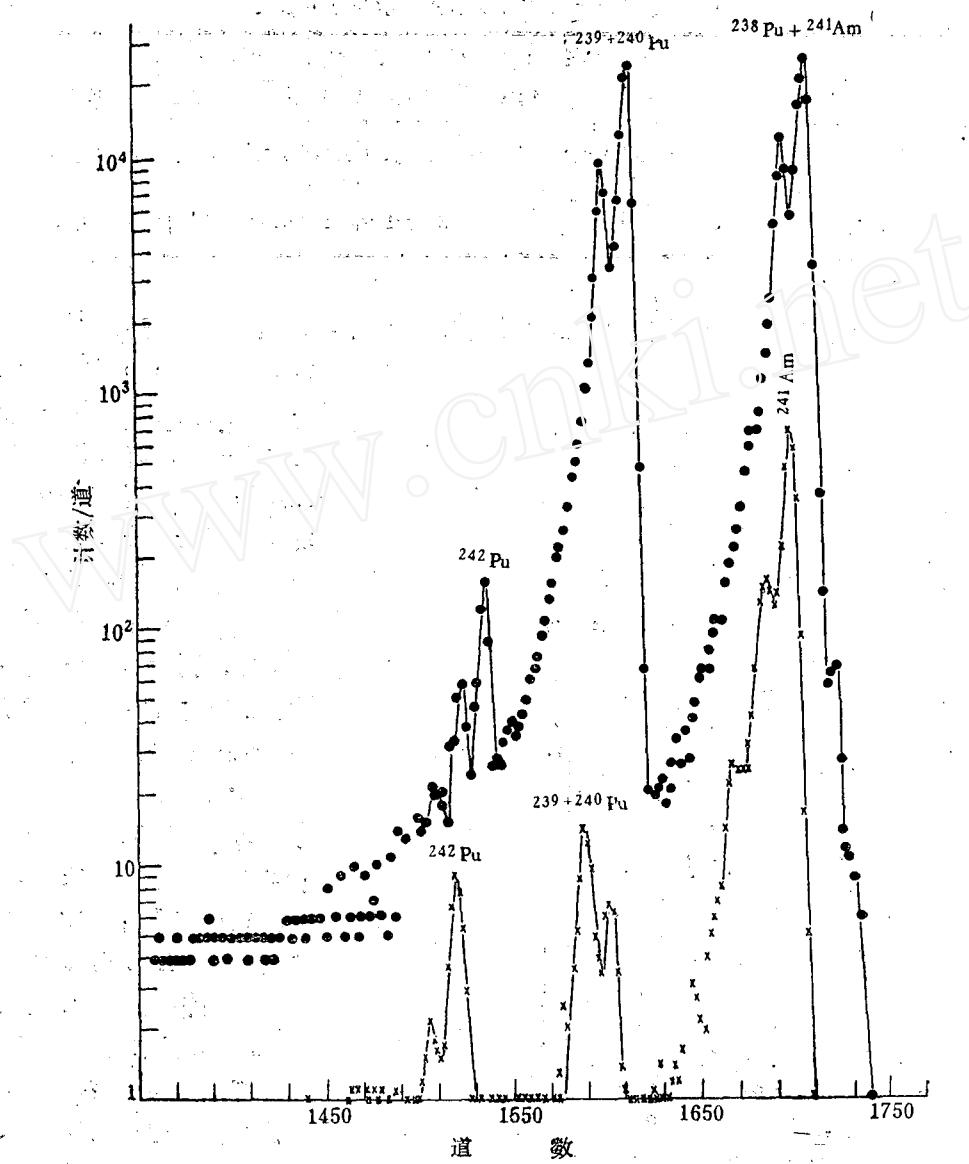
(2)  $^{238}\text{Pu}$ 和 $^{241}\text{Am}$ 的测定  $^{238}\text{Pu}$ 和 $^{241}\text{Am}$ 一样, 也是 $\alpha$ 衰变核素, 但 $^{241}\text{Am}$ 的5.486兆电子伏(86%), 5.443兆电子伏(12.7%)等 $\alpha$ 组分与 $^{238}\text{Pu}$ 的5.499兆电子伏(72%), 5.456兆电子伏(28%) $\alpha$ 组分的能量相隔很近, 因此用半导体 $\alpha$ 谱仪准确测定 $^{241}\text{Am}$ 和 $^{238}\text{Pu}$ 的相对含量是非常困难的<sup>[16]</sup>。当 $^{238}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性高于 $^{241}\text{Am}$ 的 $\alpha$ 放射性时, 可采用 $\gamma$ 能谱法测定 $^{238}\text{Pu}$ 42.3千电子伏(0.02%)的 $\gamma$ 射线和 $^{241}\text{Am}$ 59.6千电子伏的 $\gamma$ 射线, 确定其二者的相对含量; 但当 $^{238}\text{Pu}$ 和 $^{241}\text{Am}$ 二者的 $\alpha$ 放射性强度相差不多或 $^{241}\text{Am}$ 更大时, 由于 $^{238}\text{Pu}$ 的 $\gamma$ 射线的强度比 $^{241}\text{Am}$ 的 $\gamma$ 射线的强度至少低3—4个数量级, 因此用 $\gamma$ 能谱法进行测量

图 6 2#样品的 $\alpha$ 及 $\alpha-\gamma$ 符合能谱

●——样品的 $\alpha$ 能谱；×——样品的 $\alpha-\gamma$ 符合能谱。

也是很困难的。 $\alpha-\gamma$ 符合谱仪法对于在一定范围内 ( $^{238}\text{Pu}$  和  $^{241}\text{Am}$  的  $\alpha$  放射性比例为 0.01 — 50) 的  $^{238}\text{Pu}$  和  $^{241}\text{Am}$  的测定是比较方便的, 因为当  $^{238}\text{Pu}$  与  $^{241}\text{Am}$  的  $\alpha$  放射性比值在 0.01 — 50 范围时,  $^{238}\text{Pu}$  对符合计数率的贡献可以忽略不计。其测量方法是: 首先, 用单一的  $^{241}\text{Am}$  源在多道分析器的某一道域范围内测得其  $\alpha$  和  $\alpha-\gamma$  计数率的比值; 第二, 在多道分析器的同一道域范围内测得样品中的  $^{238}\text{Pu}$  和  $^{241}\text{Am}$  总的  $\alpha$  计数率; 第三, 在多道分析器的同一道域范围内测得样品中的  $^{241}\text{Am}$  的  $\alpha-\gamma$  符合计数率 ( $^{238}\text{Pu}$  的符合计数率忽略不计); 第四, 根据标定的  $^{241}\text{Am}$  的  $\alpha/\alpha-\gamma$  值, 求出样品中  $^{241}\text{Am}$  的  $\alpha$  计数率; 最后, 从总的  $\alpha$  计数率中减去  $^{241}\text{Am}$  的  $\alpha$  计数率即获得样品中  $^{238}\text{Pu}$  的  $\alpha$  的计数率。图 7 表示了含有一定  $^{241}\text{Am}$  量的一种钚样品的应用实例, 其  $^{241}\text{Am}$  与  $^{239}\text{Pu}$  的  $\alpha$  放射性比值的测定结果为 6.12% (图中  $\alpha-\gamma$  符合谱为示意图)。

实验中还对另一种钚样品进行了分析, 其结果是  $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$  ( $\alpha$  放射性) = 2.07%, 由半导体  $\alpha$  谱仪测得  $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$  ( $\alpha$  放射性) = 3.00%, 则  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  = 0.93%。用质谱法测得的结果是 (均换算为  $\alpha$  放射性比例),  $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$  = 2.07%,  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  = 1.6%, 前一比值完全一致, 后一比值差别较大。

图 7 含一定 $^{241}\text{Am}$ 的钚样品的 $\alpha$ 及 $\alpha-\gamma$ 符合能谱

●—— $\alpha$ 能谱；×—— $\alpha-\gamma$ 符合能谱。

(3) 辐照钚靶元件料液中 $^{241}\text{Am}$ 的测定 在辐照钚靶料液中，含有钚、镅、锔各种超钚核素及大量的裂变产物和盐类杂质。其中 $^{241}\text{Am}$ 的含量直接影响到 $^{243}\text{Am}$ 、 $^{243}\text{Cm}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ 等核素的定性定量测定。靶料液不经化学分离，用 $\text{Si}(\text{Au})\alpha$ 谱仪能测得如图 8 所示的各种核素的能峰，解析 $\alpha$ 能谱可确定各核素的相对含量，但对于 $^{241}\text{Am}$ 和 $^{238}\text{Pu}$ ，只能测定它们的总 $\alpha$ 放射性。在这种情况下，采用质谱仪也无法测定 $^{241}\text{Am}$ 的含量，因为靶料液中含有 $^{241}\text{Pu}$ ；采用 $\gamma$ 能谱法又会受到料液中大量裂变产物 $\gamma$ 放射性的干扰。本工作采用 $\alpha-\gamma$ 符合法测定了靶料液中 $^{241}\text{Am}$ 的含量。结果见表 3。

表3 堆照靶元件中钚及超钚核素的测定结果

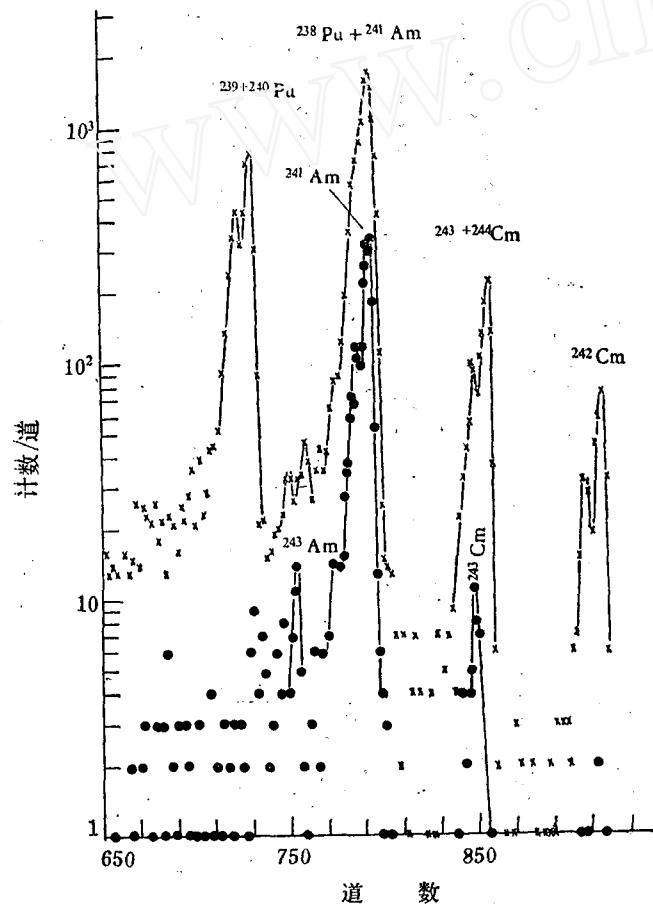
| 元件号 | 辐照 $^{239}\text{Pu}$ 靶元件中各核素的 $\alpha$ 放射性比度, $\mu\text{Ci}/\text{mg}^{239}\text{Pu}$ |                   |                       |                   |                   |                   |                   |                   |                   |
|-----|---|-------------------|-----------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
|     | 总量  | $^{238}\text{Pu}$ | $^{239+240}\text{Pu}$ | $^{242}\text{Pu}$ | $^{241}\text{Am}$ | $^{243}\text{Am}$ | $^{242}\text{Cm}$ | $^{243}\text{Cm}$ | $^{244}\text{Cm}$ |
| 1#  | $78 \pm 1.6$  | $21.9 \pm 0.7$    | $19.5 \pm 0.6$        | $0.12 \pm 0.01$   | $26.7 \pm 0.8$    | $0.14 \pm 0.01$   | $3.6 \pm 0.2$     | $0.26 \pm 0.01$   | $6.2 \pm 0.3$     |
| 2#  | $102 \pm 2.0$   | $28.7 \pm 0.9$    | $32.6 \pm 1.0$        |                   | $32.1 \pm 1.0$    | $0.15 \pm 0.02$   | $3.3 \pm 0.2$     | $0.32 \pm 0.02$   | $4.5 \pm 0.2$     |

$^{241}\text{Am}$ 含量的确定, 为靶料液中不少核素的测定提供了条件: 如上所述, 由 $\alpha$ 能谱法所

测得的 $^{241}\text{Am} + ^{238}\text{Pu}$ 总 $\alpha$ 放射性, 就可由扣除 $^{241}\text{Am}$ 的值而求得 $^{238}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性; 又如为了测定辐照钚靶中 $^{243}\text{Am}$ 和 $^{243}\text{Cm}$ 的量, 通常只能在经化学分离后用 $\text{Ge}(\text{H}, \text{P})$ 、 $\text{Si}(\text{Li})$ 谱仪测得 $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ 和 $^{243}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 的相对值, 由于 $\alpha-\gamma$ 符合法解决了 $^{241}\text{Am}$ 的定量问题, 因而 $^{243}\text{Am}$ 及 $^{243}\text{Cm}$ 的量也就随之得出, 同时, 因 $^{243}\text{Cm} + ^{244}\text{Cm}$ 的总 $\alpha$ 放射性可由 $\text{Si}(\text{Au})$ 谱仪测出, 故由此又可获得 $^{244}\text{Cm}$ 的 $\alpha$ 放射性; 至于钚靶中 $^{242}\text{Pu}$ 的含量, 则可由 $\text{Si}(\text{Au})$ 谱仪测得 $^{242}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ 的相对值后, 通过上述 $^{238}\text{Pu}$ 的数据求出; 最后将测得的钚靶中上述各核素的相对 $\alpha$ 放射性, 根据电离室测量的样品的 $\alpha$ 衰变率, 计算出各核素的绝对 $\alpha$ 放射性。其结果列在表3中。

#### (4) 其它较高 $\gamma$ 分支比率重

**元素核素的测定** 从图7中的 $\alpha$ 能谱可看出,  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性约比 $^{242}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性高 $10^3$ 。在这种情况下, 利用高分

图8 靶溶解液样品的 $\alpha$ 及 $\alpha-\gamma$ 符合能谱

$\times$ — $\alpha$ 能谱; ●— $\alpha-\gamma$ 符合能谱。

分辨率半导体 $\alpha$ 谱仪和解谱技术, 可以较准确地测定 $^{242}\text{Pu}$ 的含量; 但当样品中 $^{242}\text{Pu}$ 的含量更低(如 $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ 低于 $10^{-4}$ ), 半导体 $\alpha$ 谱仪则无法解决。从图7中的 $\alpha-\gamma$ 符合能谱可知,  $^{242}\text{Pu}$ 和 $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ 的符合计数相差不多(这是由于 $^{242}\text{Pu}$ 的44.9千电子伏的 $\gamma$ 射线的分支比率为22.5%<sup>[17]</sup>, 比其它钚同位素的均高 $10^3$ 以上)。利用这一特点, 可采用 $\alpha-\gamma$

符合谱仪准确地测定大量 $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ 中少量的 $^{242}\text{Pu}$ 。

从图8的 $\alpha$ - $\gamma$ 符合能谱可知，除了 $^{241}\text{Am}$ 的符合能峰以外，还可看出 $^{243}\text{Am}$ 和 $^{243}\text{Cm}$ 的符合能峰。同理，可采用 $\alpha$ - $\gamma$ 符合能谱法，从大量 $^{242}\text{Cm}$ 或 $^{244}\text{Cm}$ 中测出少量的 $^{243}\text{Am}$ 和 $^{243}\text{Cm}$ 的含量。

(5)  $^{241}\text{Am}$ 衰变速率的测定 本工作采用 $\alpha$ - $\gamma$ 符合装置对 $^{241}\text{Am}$ 溶液的比度进行了测量。同时取样后用液体闪烁计数器和栅网电离室两种测量方法进行了比对，其结果列在表4中。从表中的数据可知三种方法的结果一致。

表4  $^{241}\text{Am}$ 源的溶液比度测定结果

| 测 量 方 法                                | $\alpha$ - $\gamma$ 符 合 | 电 离 室 | 液 体 闪 烁 |
|--|-------------------------|-------|---------|
| 平均比度， $\times 10^6 \text{ dpm/min.ml}$ | 1.614                   | 1.619 | 1.610   |

## 五、小 结

本 $\alpha$ - $\gamma$ 符合谱仪自建成以来，在超钚元素核素的测定和研究中发挥了重要的作用。解决了某些单一能谱法、单一质谱法和放化法解决不了、或难于解决的问题。实践表明，谱仪稳定可靠、性能良好。

重元素核素大多为 $\alpha$ 衰变核素， $\gamma$ 分支比率一般较低。因此，测量时符合计数率的高低，不仅取决于 $\alpha$ 粒子的计数率，更主要的还在于 $\gamma$ 射线的计数率。为此本工作的 $\gamma$ 探头采用了薄窗井型NaI(Tl)探测器。符合谱仪的 $\alpha$ 探头采用Si(Au)面垒型探测器，还利用半导体致冷装置使探测器在低温条件下工作。这不仅使谱仪具有较高的能量分辨率，而且对 $\gamma$ 射线不灵敏，还可以将 $\beta$ 射线和内转换电子与 $\alpha$ 粒子严格分开，从而提高了谱仪的选择性和抗干扰能力。

张德群、李河萍参加了设计和审图；周志宏、卢佰铿、陈庆江协作制源；姚历农、钱绍钧等人提供了液体闪烁测量和质谱分析的比对数据；郭景儒、金荣华分别对本文做了具体修改和提出了宝贵的意见。

## 参 考 文 献

- [1] L. B. Magnusson, *Phys. Rev.*, **107**, 161 (1957).
- [2] J. Legrand et al., *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **26**, 179 (1975).
- [3] L. C. Nelson et al., NBL-188 (1962).
- [4] J. K. Beling et al., *Phys. Rev.*, **86**, 797 (1952).
- [5] A. Peghaire, *Nucl. Instrum. Methods*, **75**, 66 (1969).
- [6] Б.Ф.Мясоедов и др., *ЖАХ*, **28**, 294(1973).
- [7] С. А. Баранов, *Ядерн. Физ.*, **4**, 1108(1966).
- [8] C. E. Bemis et al., *Phys. Rev.*, **C16**, 1146(1977).
- [9] I. Ahmad et al., *Phys. Rev.*, **C8**, 737 (1973).
- [10] В.И.Вакатов и др., *ПТЭ*, **1**, 26(1978).
- [11] L. C. Nelson et al., Standardization of Radionuclides, IAEA, Vienna, 211 (1967).
- [12] P. R. Fields et al., *Nucl. Phys.*, **A208**, 269 (1973).
- [13] 陈恒良等, 科技, **2**, 118 (1977).

- [14] M. A. Wakat et al., *J. Radioanal. Chem.*, **4**, 109 (1970).
- [15] 乔盛忠等, 科技, **4**, 360 (1977).
- [16] B. Maurice et al., CEA-R-3925 (1969).
- [17] R. W. Durham et al., *Can. J. Phys.*, **48**, 716 (1970).

## THE HIGH RESOLUTION $\alpha$ - $\gamma$ COINCIDENCE SPECTROMETER USED FOR TRANSURANIUM NUCLIDE MEASUREMENT

QIAO SHENGZHONG CHEN HENGLIANG TONG EOTING  
LU FENG LIU HENGJUN

*(Institute of Atomic Energy, Academia Sinica, P.O. Box 275, Beijing)*

### ABSTRACT

The structure and property of the high resolution  $\alpha$ - $\gamma$  coincidence spectrometer and its applications in determining heavy nuclide qualitatively and quantitatively are described. At present, the energy resolution of the spectrometer is 0.25% (for 5.486MeV  $\alpha$  particle, FWHM is 13.8keV); the energy shift of peak is 0.05% during eight hours; nonlinearity is less than 0.2% for the energy region from 4 to 8 MeV.

The  $\alpha$  probe of the spectrometer mainly consists of a silicon-gold surface barrier detector with active area  $50\text{ mm}^2$  or  $314\text{ mm}^2$ . The detector is cooled by thermoelectric technique with a low-power Peltier element. Its temperature is decreased form room temperature ( $25^\circ\text{C}$ ) to  $-25^\circ\text{C}$ . Thus its leakage-current is decreased by 2 orders of magnitude and the system noise is also decreased; the energy resolution of the spectrometer is thus raised.

A  $40 \times 35$  mm well type NaI (Tl) scintillation crystal with 20 mm in well diameter and 25mm in well depth is employed in the  $\gamma$  probe of the spectrometer. The well wall of crystal is covered with 0.5mm thick aluminium. The crystal active thickness is about 10mm. Thus both the loss of low energy  $\gamma$ -rays and the background of high energy  $\gamma$ -rays are decreased. At the same time, the nuclide measurement sensitivity and accuracy of mixture source are raised by changing source position to be measured in the well.

In this paper, the method is being applied to the determination of  $^{241}\text{Am}$  in the presence of large amount of Cm and fission products, for example, when the ratio of  $^{241}\text{Am}/^{242}\text{Cm}$  equals  $2 \times 10^{-5}$  ( $\alpha$  activity). It is convenient and accurate to measure  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  in which the ratio of  $\alpha$  activity is in the region of  $10^{-2}$ —50. Besides, it can be applied to the absolute measurement of transplutonium nuclides. Its accuracy is better than  $\pm 1\%$ .