

电沉积钍同位素 α 源中 ^{215}Po 测量方法的研究^①

陈英强^②

核工业长沙二三〇研究所 长沙 410011

摘要 讨论了电沉积钍同位素 α 源中 ^{215}Po 测量中存在的问题。证实了 ^{215}Po 测量结果偏低的主要原因是 ^{223}Ra 的逃逸。采用封膜技术使得 ^{215}Po 的测量方法获得成功。

关键词 电沉积 钍同位素 α 源 封膜 ^{215}Po

在天然放射系核素不平衡的研究及其应用中, ^{231}Pa 是重要的测定对象^[1~3]。钍同位素 α 源中主要原始 α 辐射体有 ^{232}Th 、 ^{230}Th 、 ^{228}Th 和 ^{227}Th 。在利用钍同位素 α 源来间接测定 ^{231}Pa 的方法中,目前多采用通过 ^{231}Pa 的子核 ^{227}Th 来测定 ^{231}Pa ,但这种方法在 α 能谱测量时受到干扰较多^[3,4]。实际上源中 ^{227}Th 的第3代子核 ^{215}Po 的 α 衰变只给出一条谱线,能量为 7.386 MeV,在源中不存在任何对其干扰的谱线。因此,通过 ^{215}Po 测定 ^{231}Pa 的方法(简称“ ^{215}Po 法”)不失为一种较理想的 ^{231}Pa 的间接测定方法。曾有工作者^[2]对此方法做过尝试,但其实验表明,所得结果多数偏低,且认为这是 ^{215}Po 的母核 ^{219}Rn 从源片上逃逸造成的。笔者则认为 ^{219}Rn 的半衰期仅 3.96 s,与通常对 α 源测量的长时间($10^3\sim 10^4$ s)相比,其影响应该是很有限的。为此作者观测了 ^{215}Po 测量中存在的问题,证实了 ^{215}Po 测量结果偏低的主要原因是 ^{223}Ra 的逸失,并研究了一种封膜技术,防止了 ^{223}Ra 的逸失,使 ^{215}Po 的测量获得成功。

1 实验部分

1.1 测量装置

由美国 CANBERRA 公司的 S-85 多道分析器和两套国产部件 FH 1002 A 线性放大器、FH 1047 A 电荷灵敏前置放大器、FH 445- α 探头真空室、FH 1063 A-300 V 电源、GM-1101 型金硅面垒探测器等组成的双路 α 能谱分析系统。每路总道数为 1 000 道。 α 能量分辨率为 0.6% (对 ^{210}Po , 5.3045 MeV)。能量线性好于 0.1%。8 h 峰位漂移 $< \pm 0.1\%$ 。

1.2 α 源的制备方法

按文献^[5]提供的流程制备钍同位素 α 源。样品用 Na_2O_2 熔融分解。用 P_{350} 作萃取剂,DA-201 型大孔吸附树脂作载体,进行色层分离。上柱试液为 4.4 mol/L HNO_3 -0.13 mol/L 酒石酸溶液,钍用 3 mol/L HCl 洗脱。然后将钍的洗脱液转型,用电沉积的方法制成薄源。源沉积在不锈钢基片上,活性面直径为 20 mm。

2 结果与讨论

2.1 ^{215}Po 测量中存在的问题

2.1.1 测量稳定性差

用双路测量系统分别测量两个钍同位素 α 源,并且在同一源中当 ^{227}Th 和 ^{215}Po 的计数大致相同时进行测量,以便对比。连续测

① 本课题为核工业总公司科研项目(Y 11313910701),参加人员还有张庆文、谭复文和林朝。

② 陈英强 男,高级工程师,从事放射性核素分析及其应用的研究工作。

量12次,每次测量时间 2×10^3 s,同时测得 ^{227}Th 和 ^{215}Po 的计数列于表1。从表1可见, ^{215}Po 测量的相对标准误差($\sigma_{n-1}/\bar{x}$)比 ^{227}Th 的大,其测量稳定性明显比 ^{227}Th 差。两路测量结果均如此。这是因为源中母核 ^{227}Th 的测量误差仅由其 α 衰变的统计涨落产生;而 ^{215}Po 是 ^{227}Th 经3次 α 衰变产生的,多次衰变统计涨落迭加的结果使 ^{215}Po 测量的误差增大。对此可通过延长测量时间或多次测量得到改善。

表1 测量稳定性的对比

项目	第1号探测室		第2号探测室	
	^{227}Th 计数	^{215}Po 计数	^{227}Th 计数	^{215}Po 计数
分次测定	114	119	128	153
	114	130	140	160
	115	129	125	166
	121	97	126	132
	124	121	123	150
	137	101	115	134
	117	117	142	163
	110	97	119	160
	116	99	141	176
	134	109	148	204
	114	88	132	161
	115	114	133	152
$\bar{x}$	119.3	110.1	131.0	159.3
$\sigma_{n-1}/\bar{x}$	0.070	0.124	0.077	0.118

2.1.2 测量结果系统偏低

对同一样品(已知该样 ^{231}Pa 的含量 $w_1=0.194\%$ eU)在不同时间10次制源,每次制源后放置一定的时间(约20 d)积累子核,然后测量 ^{215}Po ,经积累时间和回收率校正后,计算 ^{231}Pa 含量(w_2)。结果列于表2。 ^{231}Pa 的含量均用与该 ^{231}Pa 处于平衡时的 ^{235}U 所对应的天然铀同位素丰度情况下的 ^{238}U 质量分数来表示。由表2可见,该样品10次分析 ^{231}Pa 的结果均偏低,偏低的程

度为12%~38%。显然这是母核 ^{227}Th 衰变成子核 ^{215}Po 的过程中有部分核素逸失的结果。进一步的试验将证实这一点。

表2 样品中 ^{231}Pa 的分析结果

序号	w_2 ①	w_2/w_1	序号	w_2	w_2/w_1
1	0.146	0.75	6	0.121	0.62
2	0.156	0.80	7	0.166	0.86
3	0.168	0.86	8	0.157	0.81
4	0.171	0.88	9	0.156	0.80
5	0.157	0.81	10	0.158	0.81

①结果单位:% eU。

2.2 ^{215}Po 测量结果偏低的主要原因

2.2.1 ^{215}Po 的测量与 ^{219}Rn 逸失的关系

用 ^{215}Po 的母核 ^{219}Rn 的逸失来解释 ^{215}Po 测量结果偏低,这是人们首先考虑到的一种解释^[2]。为证实这一点,作者对源作封膜试验,以期阻止 ^{219}Rn 逸失。试验中所用的钍同位素 α 源积累子核已有21 d,在封膜前测量了 ^{215}Po 和 ^{230}Th , 4×10^3 s的计数分别为297和15 295(^{215}Po 的计数偏低10%)。封膜后又立即测量两次, 4×10^3 s计数的平均值分别为296和15 246(试验中同时测量 ^{230}Th 是为了监测系统的稳定性和封膜厚度的影响)。如果测量 ^{215}Po 偏低的原因仅为 ^{219}Rn 逸失所致,那么封膜后 ^{215}Po 的计数率定会有所提高(即使封膜尚不能全部阻止 ^{219}Rn 的逸失)。但测量结果表明 ^{215}Po 的计数率几乎不变。由此可见 ^{219}Rn 的逸失并非 ^{215}Po 测量结果偏低的主要原因。

此试验并不说明 ^{219}Rn 不逸失,而仅说明 ^{219}Rn 逸失与否在本研究工作的时空条件下对测量 ^{215}Po 而言并无明显影响。也就是说, ^{219}Rn 的半衰期(3.96 s)相对于测量时间($> 10^3$ s)和有效探测空间是如此之短,以致

● 本研究中所用质量分数均用平衡铀当量含量(% eU)表示,以使直观了解天然放射系中各核素之间的平衡情况。

于逸出的 ^{219}Rn 在尚未逸离有效探测空间之前就几乎衰变完毕。这对探测系统来说,就如同探测未逸出的 ^{219}Rn 。所以封膜前后, ^{215}Po 的测量结果几乎不变。

2.2.2 ^{215}Po 的测量与 ^{223}Ra 逸失的关系

^{223}Ra 和 ^{219}Rn 都是 ^{227}Th 衰变成 ^{215}Po 的中间产物。既然 ^{219}Rn 的逸失不是 ^{215}Po 偏低的主要原因,那么 ^{223}Ra 的逸失就可能是其主要原因。为此做了以下的工作。

①研究核素逃逸的方法:用一制源用的空白不锈钢片作为收集片,覆盖在需要研究的 α 源活性面上,收集片与源活性面之间,隔一个厚度小于1 mm的纸环(环的外径等于不锈钢片的直径,内径略大于源中活性面的直径),然后用胶带将两片固定。收集片在上,源片在下,水平放置若干天。 α 源活性面上如有核素逸出,收集片上就能收集到部分逃逸的核素。测量收集片的活性面就能直接测到逃逸的核素。

② ^{223}Ra 逃逸的研究:用 ^{232}Th 与 ^{235}U 的活度比为0.116的平衡样品制源,可见源中钍系子核对 ^{223}Ra 测量的干扰不大。制成 α 源后,按上述方法覆盖收集片。放置26 d后,取下收集片,用 α 能谱仪测量收集片的活性面,测得能谱图绘于图1,图中 C_R 为相对计数率, E_α 为 α 粒子的能量。

图1中 ^{223}Ra 各主要 α 谱线均清晰可见,从而直接证实了子核 ^{223}Ra 的逃逸。图1中还出现 ^{223}Ra 各主要 α 放射性子核 ^{219}Rn 、 ^{215}Po 和 ^{211}Bi 的 α 谱线。由于 ^{219}Rn 和 ^{215}Po (0.0018 s)的半衰期都很短,收集片从源收集到的那一部分 ^{219}Rn 、 ^{215}Po 在取下收集片放入真空室的过程中都早已衰变完毕。因此在测量收集片时,收集片上 ^{219}Rn 和 ^{215}Po 的来源唯有片上的 ^{223}Ra 衰变产生,且三者立即达到平衡。所以,在收集片中测到了能量不受干扰的子核 ^{215}Po 的 α 谱线也可间接证实 ^{223}Ra 子核的逃逸。根据测量结果计算, α

源在26 d中积累的 ^{223}Ra 有23%逃逸,而收集片仅收集到逃逸 ^{223}Ra 的53%。此外,精心设计的研究核素逃逸的方法排除了收集片直接受源活性面污染的可能性。至此,完全证实了钍同位素 α 源中子核 ^{223}Ra 的逃逸现象。子核的逃逸现象应该用 α 衰变过程中子核的反冲来解释。 α 源是平面状薄源,所以在源的表面,反冲子核逃逸的几率是较大的。

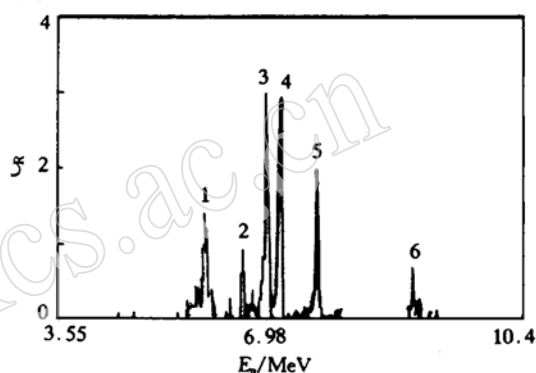


图1 α 能谱图

- 1— ^{223}Ra (5.6076, 5.7167, 5.748 MeV);
2— ^{211}Bi (6.279 MeV); 3— ^{211}Bi (6.623 MeV);
4— ^{219}Rn (6.819 MeV); 5— ^{215}Po (7.386 MeV);
6— ^{212}Po (8.7844 MeV)。

^{215}Po 的测量是通过积累 ^{223}Ra 来实现的,而在积累 ^{223}Ra 的过程中又不断有部分 ^{223}Ra 逸失,因此 ^{223}Ra 的逸失才是造成 ^{215}Po 测量结果偏低的主要原因。

2.3 防止 ^{223}Ra 逃逸的研究

经研究试验,采用了一种在源的活性面上封膜的方法,以防止 ^{223}Ra 的逸失。封膜的用量由试验确定。源制备后应立即封膜。试验中用 ^{231}Pa 含量为0.0682% eU的样品制备4个钍同位素 α 源,其中3个封膜,1个不封膜。4个源均覆盖收集片。 α 源和对应收集片的 ^{215}Po 测量结果列于表3。从表3直接测量源中 ^{215}Po 结果而计算的 ^{231}Pa 含量可见,3个封膜源的结果均与已知含量相吻合;

不封膜源的结果则偏低了20%。由表3测量收集片中 ^{215}Po 而计算的 ^{231}Pa 含量可见,3个封膜源对应的收集片中均测不到 ^{215}Po ;不封膜源的收集片中则测到 ^{223}Ra 逃逸量的61%所对应的 ^{215}Po 。由此可见,采用封膜的

方法确已防止了 ^{223}Ra 的逸失,使电沉积钍同位素 α 源中 ^{215}Po 的测量获得成功。但太厚的封膜会对 α 粒子产生明显的吸收作用,甚至使 ^{215}Po 的 α 谱峰加宽到与相邻峰相重迭的程度,因此封膜厚度应 $< 80 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 。

表3 封膜源、不封膜源和对应收集片的测量结果

源号	封膜情况	回收率 (%)	积累时间 (d)	^{231}Pa (% eU)		对应收集片	
				单次测量	平均值	覆盖时间(d)	^{231}Po (% eU)
3-7	封膜	49.79	25.91	0.0741	0.0710	24	0
			30.08	0.0667			
			33.08	0.0727			
3-9	封膜	74.37	25.06	0.0707	0.0698	23	0
			29.97	0.0678			
			32.97	0.0709			
3-11	封膜	42.82	22.09	0.0734	0.0701	22	0
			25.85	0.0686			
			29.12	0.0685			
3-12	不封膜	68.6	27.12	0.0544		26	0.0084

表4 铀钍矿石标样中 ^{231}Pa 的考核结果

标样 编号	$w(\text{U})/10^{-2}$		^{231}Pa (% eU)		$w(\text{Th})/10^{-2}$	
	^{227}Th 法	^{215}Po 法	^{227}Th 法	^{215}Po 法	^{227}Th 法	^{215}Po 法
GBW 04110	0.0285	0.0278	0.0290	0.0025	0.088	
GBW 04111	0.0788	0.0757	0.0794	0.0026	0.033	
GBW 04112	0.0682	0.0647	0.0703	0.0011	0.016	
GBW 04113	0.194	0.1933	0.1933	0.0043	0.022	
GBW 04114	0.703	0.7074	0.7030	0.231	0.328	
GBW 04115	0.0986	0.0991	0.1002	0.0313	0.317	
GBW 04116	0.0536	0.0539	0.0534	0.202	3.77	

3 分析应用

3.1 铀钍矿石标样的考核

由于无法得到已知 ^{231}Pa 含量的标准样品,因此用7个铀钍矿石标准样品来考核本方法。这些标样大致都处于放射性平衡状

态,所以样品中以平衡铀当量(% eU)表示的 ^{231}Pa 含量应该与铀含量相近。这些标样有通过 ^{227}Th 测定 ^{231}Pa (简称“ ^{227}Th 法”)的结果^[4]。考核结果列于表4。表中数据表明,本方法的测量结果与标准铀含量、 ^{227}Th 法结果相当吻合,均在同品级铀的定量分析误差范围内。

3.2 不平衡矿样的实际应用

本方法的目的是研究不平衡样品中核素的迁移现象,以便为地质找矿服务。表5仅列举部分野外地质样品的应用结果。因为不平衡样品中不能用铀含量来检验 ^{231}Pa 的测量结果,所以这些样品同时用 ^{227}Th 法测定 ^{231}Pa ,以便与本方法作对比。从表5可见,对不平衡矿样本方法与 ^{227}Th 法的结果也非常吻合,均在允许误差范围内。本研究成果经华东和中南地区三个野外地质大队样品分析的实际应用,证明本方法的分析结果可靠;在未知样品取样位置和样品所处地质背景的情况下,由本方法所得数据作出的地质解释

在铀矿地质工作中均获得了良好的应用效果。

表 5 不平衡矿样中 ^{231}Pa 的验证结果

样品编号	²³⁸ U	²³¹ Pa(% eU)				²³⁰ Th	²³⁶ Ra	<i>m</i> _{Ra} / <i>m</i> _U	
	<i>w</i> (U) / 10 ^{- 2}	²²⁷ Th 法		²¹⁵ Po 法		(% eU)	(% eU)		
27	0.052	<	0.076	0.072	<	0.173	<	0.143	2.74
42	0.415	<	0.751	0.739	<	0.981	>	0.720	1.74
419	0.048	<	0.139	0.136	<	0.171	>	0.102	2.15
420	0.036	<	0.066	0.068	≈	0.066	≈	0.066	1.87
31	0.106	≈	0.100	0.103	≈	0.100	<	0.070	0.66
32	0.155	≈	0.146	0.144	≈	0.162	>	0.118	0.76
33	0.169	≈	0.165	0.173	≈	0.160	>	0.121	0.72
460	0.416	>	0.397	0.402	>	0.375	>	0.349	0.84

4 参考文献

1 陈英强, 张庆文, 林朝, 等. ^{231}Pa 测量法在铀矿普查勘探中的应用. 铀矿地质. 1987, 3(2): 104.

2 陈铁梅, 原思训, 高世君. 铀子系法测定骨化石年龄的可靠性研究及华北地区主要旧石器地点的铀子系年代序列. 人类学学报. 1984, 3(3): 259.

3 原思训, 陈铁梅, 高世君. 通过 ^{227}Th 测定骨化石的 ^{231}Pa 年代和 $^{231}\text{Pa}/^{230}\text{Th}$ 年代. 地球化学. 1990(3): 216.

4 陈英强, 张庆文, 林朝, 等. 通过 ^{227}Th 测定地质试样中的 ^{231}Pa . 铀矿地质. 1987, 3(5): 314.

5 张庆文, 陈英强, 胡海云. 一次分解试样测定地质样品中 ^{230}Th 、 ^{232}Th 和 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$. 放射性地质. 1984(3): 60.

〈收稿日期: 1995-08-18, 修回日期: 1995-12-25〉

Study on the Determination of ^{215}Po in Electrodeposited Thorium Isotopic α Source

Chen Yingqiang
(Nuclear Institute No. 230, Changsha, 410011)

The problems in the determination of ^{215}Po in electrodeposited thorium isotopic α source are discussed in this paper. The results show that the main cause of the low results for ^{215}Po is due to the escape of ^{223}Ra . The sealing film technique is proved to be very effective in solving the problem and has been applied to the determination of ^{215}Po in electrodeposited thorium isotopic α source.

Key words: electrodeposition, thorium isotopic α source, sealing film, ^{215}Po determination