Atomic Energy Science and Technology

## 长寿命裂变产物核素核数据测量进展

#### 张生栋

(中国原子能科学研究院 放射化学研究所,北京 102413)

摘要:文章对与高放废物深地层处置以及分离嬗变相关的半衰期大于 10 a、裂变产额高于 0.01%的 13 种长寿命裂变产物核素的半衰期、裂变产额和热中子反应截面的测量研究、数据现状及其进展进行概要评述。就长寿命核素的分离纯化、原子数测定及放射性活度测量方法和技术进行了分析和论述。

关键词:长寿命裂变产物核素;核数据;测量进展

中图分类号: ○615

文献标识码:A

文章编号:1000-6931(2006)02-0199-07

# Progress in Nuclear Data Measurement of Long-Lived Fission Products

ZHANG Sheng-dong

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

**Abstract:** The long-lived fission products (LLFPs) are critical nuclides for geological disposal and partitioning-transmutation of high-level waste. The paper reviews the measurement, present status and the progress of fission products nuclear data, such as half-life, fission yield and thermal neutron cross section for 13 long-lived fission products with the half-life of more than 10 a and fission yields of more than 0.01%. The radiochemical separation and purification, measurements of atom number and radioactivity of the long-lived nuclides in the field of measurement of fission products nuclear data are discussed and some interesting ideas are pointed out.

Key words: long-lived fission products; nuclear data; measurement progress

锕系核的中子诱发裂变产物是涉及 30 多种元素、500 多核素的复杂体系,其中,半衰期大于 1 a 的长寿命裂变产物核素有 40 多个,它们是乏燃料放置 5 a 以上后放射性的主要贡献者。在这些长寿命裂变产物核素中,裂变产额大于 0.01%的核素有 20 多个。这些核素,特别是  $T_{1/2} > 10^3$  a 的核素,是高放废物深地层处

置潜在长期风险重点考虑的对象,也是与洁净 核能系统相关的分离嬗变对象。

本文对半衰期大于 10 a、产额高于 0.01%的  $^{79}$  Se、 $^{85}$  Kr、 $^{90}$  Sr、 $^{93}$  Zr、 $^{93}$  Nb<sup>m</sup>、 $^{99}$  Tc、 $^{103}$  Pd、 $^{113}$  Cd<sup>m</sup>、 $^{126}$  Sn、 $^{129}$  I、 $^{135}$  Cs、 $^{137}$  Cs 和 $^{151}$  Sm 等 13 个 裂变产物核素的半衰期、裂变产额及热中子反应截面的测量数据现状和进展进行概要综述,

并就相关的放化分离纯化、原子数测定、放射性活度测量方法和技术问题进行分析论述。

### 1 长寿命裂变产物核素核数据测量的 现状及进展

#### 1.1 热中子反应截面

热中子反应截面的测量大致经过了 4 个研究阶段。

第1阶段,从20世纪40年代末至60年代初期,主要进行稳定核素的热中子反应截面测量。在这一阶段,美国橡树岭和阿贡国家实验室、英国哈威尔实验室等对从B到稀土Sm丰度较高、反应截面较大的近百个稳定核素的热中子反应截面进行了测量,各家的测量值在10%范围内符合良好。

第 2 阶段,从 20 世纪 60 年代中期至 80 年代初期,测量对象主要是半衰期为几天到几十年的热中子反应截面较大的中等寿命的裂变产物核素。大多数测量值的误差较大,许多测量值的误差超过 50 %。

第 3 阶段,从 20 世纪 80 年代初期至 90 年代初期,在这一阶段,热中子反应截面测量处于一低谷期,文献报道的测量数据稀少。主要测量<sup>137</sup> Cs、<sup>90</sup> Sr、<sup>147</sup> Pm 等裂变产物以及一些活化生成的长寿命核素的反应截面。

第 4 阶段,从 20 世纪 90 年代至今,洁净核能系统分离嬗变计划的提出和高放废物深地层处置潜在长期风险研究的深入促进了对长寿命裂变产物核素热中子反应截面的实验测量,许多国家,诸如日本原子力研究所、奥地利维也纳大学放射化学和核化学研究所、美国阿贡国家实验室、波兰 Pesquisa Energeticas e Nucleares研究所、以色列 Weizmann 大学、德国梅因茨大学等相继开展这方面的实验测量。

有关<sup>79</sup> Se 等 13 个长寿命裂变产物核素的 热中子反应截面的测量数据现状列于表 1。

从表 1 可看出: $^{90}$  Sr、 $^{99}$  Tc、 $^{129}$  I、 $^{137}$  Cs 等核素的热中子反应截面测量数据较多,相对误差小于 10%; $^{93}$  Zr、 $^{135}$  Cs、 $^{85}$  Kr、 $^{151}$  Sm 等核素的热中子反应截面测量数据较少; $^{79}$  Se、 $^{93}$  Nb<sup>m</sup>、 $^{113}$  Cd<sup>m</sup>、 $^{126}$  Sn 等核素的热中子反应截面至今无测量数据。实验测量时需将待测核素制成可供中子照射的靶子,而这些核素的裂变产额较低,

需从放射性活度很高的裂变产物混合物中进行 分离提取和纯化,实验测量所需的核素纯度要 求又很高,且需一定的量。由于这些核素的获 取极其困难,因而它们的热中子反应截面测量 数据不多,有些则空缺。

表 1 13 种长寿命裂变产物核素的 热中子反应截面测量数据[1]

Table 1 Measured thermal neutron cross section data for 13 long-lived fission products<sup>[1]</sup>

 裂变产物核素	$10^{28}\sigma_{\mathrm{th}}/\mathrm{m}^2$		
<sup>79</sup> Se			
$^{85} m Kr$	1.66		
<sup>90</sup> Sr	约为 0.3		
	14.0 $\pm$ 2.4		
	9.7 $\pm$ 0.7		
	15. $3 \pm 1.3$		
$^{93}\mathrm{Zr}$	<b>约为</b> 2		
$^{93}\mathrm{Nb^m}$			
<sup>99</sup> Tc	$20\pm2$		
	24.8		
	$24\pm4$		
	19.3 $\pm$ 2.2		
	$19\pm1$		
	$18\pm2$		
	22.9 $\pm$ 1.3		
$^{107}\mathrm{Pd}$	1.8		
$^{113}\mathrm{Cd^m}$			
<sup>126</sup> Sn			
$^{129}\mathrm{I}$	$27\pm3$		
	$31\pm4$		
	30.1 $\pm$ 0.9		
	30.3 $\pm$ 0.9		
	12.6 $\pm$ 0.5		
	12.5 $\pm$ 0.5		
$^{135}\mathrm{Cs}$	8. $3 \pm 0.3$		
	8.3 $\pm$ 0.3		
$^{137}\mathrm{Cs}$	$0.110\pm0.033$		
	$0.250\pm0.013$		
	$0.25\pm0.02$		
	$0.253 \pm 0.015$		
<sup>151</sup> Sm	15 000		

#### 1.2 半衰期

长寿命裂变产物核素半衰期的测量最早见于 1949 年。在随后的 30 年内,实验测量主要针对裂变产额较高的一些核素,诸如 $^{137}$  Cs、 $^{90}$  Sr、 $^{85}$  Kr、 $^{147}$  Pm、 $^{113}$  Cd<sup>m</sup>、 $^{99}$  Tc 等,测量结果的精度不断提高。例如, $^{90}$  Sr 半衰期的早期测量数据处在  $20\sim30$  a 之间,从 20 世纪 70 年代中期开始,文献报道的测量值则处在  $(28.15\pm0.034)\sim(29.2\pm0.1)$  a 范围内,测量数据的误差已由 3% 以上降至 0.1% 左右。

20世纪80年代,长寿命核素的半衰期测量主要集中于<sup>99</sup> Tc、<sup>137</sup> Cs、<sup>90</sup> Sr、<sup>85</sup> Kr 等对环境影响较大的核素,主要致力于测量数据的精度提高。20世纪90年代初,更多的测量数据见诸发表,<sup>90</sup> Sr、<sup>137</sup> Cs 等又发表了一些新的测量结果,而裂变产额相对较低、寿命非常长的核素,如<sup>79</sup> Se、<sup>126</sup> Sn 等的测量数据开始在文献中出现。

我国在 20 世纪 90 年代,针对产额较低、半衰期数据不准确的  $^{79}$  Se、 $^{126}$  Sn 核素,用不同方法进行了测定,其中,用放化法的测量结果分别为  $(4.8\pm0.4)\times10^5$  和  $(2.5\pm0.2)\times10^5$  a。  $^{79}$  Se、 $^{126}$  Sn 半衰期的放化法测量值是国际上首次报道,该值是目前测量结果中测量精度最高的。

 $^{79}$  Se 等 13 种长寿命裂变产物核素的半衰期实验测量值列于表 2。

从表 2 可看出,多数核素的半衰期测量数据较充分,但  $^{93}$  Nb  $^{\text{m}}$  、 $^{151}$  Sm 、  $^{113}$  Cd  $^{\text{m}}$  、 $^{93}$  Zr 、 $^{107}$  Pd 等核素的测量数据较少,误差也较大,其中,  $^{93}$  Nb  $^{\text{m}}$  、 $^{93}$  Zr 只有 1 个测量数据。表中列出的  $^{79}$  Se的 4 个数据均为近期测量值,但数据之间的差异明显超出了数据的误差范围。

#### 1.3 裂变产额

从裂变现象发现以来的半个多世纪,裂变产额的实验测量始终未停止过。前期的测量主要针对中等寿命的裂变产物核素。对长寿命裂变产物核素的裂变产额测量研究不深入。随着洁净核能系统的分离嬗变计划以及高放废物深地层处置研究的深入进行,长寿命裂变产物核素产额测量被人们广泛关注。

表 3 列出<sup>233</sup> U、<sup>235</sup> U、<sup>239</sup> Pu 热中子诱发裂变时<sup>79</sup> Se 等 13 种长寿命核素的裂变产额测量值<sup>[14]</sup>。可见,<sup>85</sup> Kr、<sup>90</sup> Sr、<sup>137</sup> Cs、<sup>151</sup> Sm 等核素的热中子诱发裂变<sup>233</sup> U、<sup>235</sup> U、<sup>235</sup> Pu 裂变产额的实

表 2 长寿命裂变产物核素半衰期数据[2,3]

Table 2 Half-life of some long-lived fission products<sup>[2,3]</sup>

		_	
核素	半衰期/a	核素	半衰期/a
<sup>79</sup> Se	$(4.8\pm0.4)\times10^{5}$	<sup>126</sup> Sn	$(2.5\pm0.2)\times10^{5}$
	$(1.12\pm0.17)\times10^6$		$(2.07\pm0.21)\times10^{5}$
	$(1.1\pm0.2)\times10^6$		$(2.48\pm0.26)\times10^{5}$
	$(2.95\pm0.38)\times10^{5}$	$^{129}\mathrm{I}$	3. $07 \times 10^7$
$^{85}\mathrm{Kr}$	10.702		1. $72 \times 10^7$
	10.763		1. $56 \times 10^7$
<sup>90</sup> Sr	28.78		1. $97 \times 10^7$
	28.99	$^{135}\mathrm{Cs}$	2. $1 \times 10^6$
	28. 15		2. $95 \times 10^6$
	28.150 $\pm$ 0.034		$2.0 \times 10^6$
	29.2 $\pm$ 0.1	$^{137}\mathrm{Cs}$	30. 142
	28.93 $\pm$ 0.04		29.901
	$(10\ 561\ d\pm 14\ d)$		
	28.81 $\pm$ 0.06		30. 174
	$(10\ 516\ d\pm 21\ d)$		
$^{93}\mathrm{Zr}$	1. $5 \times 10^6$		30.68
$^{93}Nb^{m}$	13.6		29.23
<sup>99</sup> Tc	$2.111 \times 10^{5} (12\%)$		29.86
	2. $16 \times 10^{5} (6\%)$		30.21
	$2.12 \times 10^5 (4\%)$		30.18
$^{107}\mathrm{Pd}$	6.5 $\times$ 10 <sup>6</sup>		29.97 $\pm$ 0.02
			(10 940.8 d±6.9 d)
	约为 7×10 <sup>6</sup>		30.05 $\pm$ 0.01
			(10 967 d±4.5 d)
$^{113}Cd^{\mathrm{m}}$	13.6(2%)	<sup>151</sup> Sm	93(8%)
	14.6(5%)		87(9%)

验数据较多,有些数据的误差虽较大,但经过数据的编评仍可得到误差较小的推荐值。 $^{99}$  Tc 是一重要的裂变产物核素,目前只有 $^{235}$  U 裂变的 1 个测量值, $^{233}$  U 和 $^{239}$  Pu 热中子诱发裂变尚无测量值。 $^{99}$  Tc 的母体是 $^{99}$  Mo,半衰期为 66 h,医学上已被广泛应用。 $^{99}$  Mo 的产额值已被准确测量过, $^{99}$  Tc 的独立产额很低, $^{99}$  Mo 的裂变产额实际上即是 $^{99}$  Tc 的裂变产额,直接测定 $^{99}$  Tc 裂变产额的必要性不大。

93 Zr、135 Cs、129 I、126 Sn 的实验测量数据较少,绝大多数测量数据的误差在 10%以上,其中,126 Sn、135 Cs 尚无233 U 裂变的产额数据,129 I 只有235 U 裂变的数据。79 Se、93 Nbm、107 Pd、113 Cdm

#### 表 3 233,235 U 和239 Pu 热中子诱发裂变中 13 种长寿命裂变产物核素的裂变产额测量数据[14]

裂变产物核素	<sup>233</sup> U <b>裂变产额</b> /%	<sup>235</sup> U <b>裂变产额</b> /%	<sup>239</sup> Pu <b>裂变产额</b> /%
<sup>79</sup> Se			
$^{85}\mathrm{Kr}$	$4.95 \times 10^{-1} (5.0\%)$	$2.73 \times 10^{-1} (3.0\%)$	$1.30\times10^{-1}(5.0\%)$
	$5.12 \times 10^{-1} (5.0\%)$	$2.84 \times 10^{-1} (3.0\%)$	$1.32 \times 10^{-1} (5.0\%)$
	$5.33 \times 10^{-1} (3.5\%)$	$2.86 \times 10^{-1} (2.0\%)$	
		$2.87 \times 10^{-1} (3.0\%)$	
		$2.8 \times 10^{-1} (2.0\%)$	
		$3.19 \times 10^{-1} (15.0\%)$	
<sup>90</sup> Sr	4.56(30.0%)	5.61(5.0%)	1.72(15.0%)
	5.8(30.0%)	5.76(5.0%)	1.98(3.0%)
	6.19(7.0%)	5.83(3.8%)	2.03(3.7%)
	6.6(6.0%)		2.05(5.0%)
	6.75(7.0%)		2.31(5.0%)
<sup>93</sup> Zr	7.01(10.0%)	6.21(3.0%)	3.76(5.0%)
		6.65(10.0%)	3.95(10.0%)
$^{93}Nb^{m}$			
<sup>99</sup> Tc		6.14(3.0%)	
<sup>107</sup> Pd			
$^{113}Cd^{m}$			
<sup>126</sup> Sn		6. $1 \times 10^{-2}$ (15. 0%)	$3.03 \times 10^{-1} (15.0\%)$
$^{129}\mathrm{I}$		$6.9 \times 10^{-1} (7.2\%)$	
		$9.0 \times 10^{-1} (25.0\%)$	
$^{135}\mathrm{Cs}$		6.57(10.0%)	5. 22(15. 0%)
			6.95(10.0%)
			7.05(10.0%)
$^{137}\mathrm{Cs}$	5.16(20.0%)	6.1(5.1%)	4.94(10.0%)
	5.39(20.0%)	6.15(4.0%)	5.40(10.0%)
	5.8(20.0%)	6.17(5.0%)	6.50(10.0%)
	6.13(10.0%)	6.19(10.0%)	6.59(3.7%)
	6.34(6.0%)	6.20(3.0%)	6.63(3.0%)
	6.42(10.0%)	6.23(3.0%)	
	6.58(10.0%)	6.3(10.0%)	
	6. 12(15. 0%)		
<sup>151</sup> Sm	$3.0 \times 10^{-1} (10.0\%)$	$3.99 \times 10^{-1} (4.3\%)$	1.1(20.0%)
	$3.25 \times 10^{-1} (15.0\%)$	4. $17 \times 10^{-1}$ (3. 0%)	1.51(20.0%)
	$3.30 \times 10^{-1} (10.0\%)$	$4.26 \times 10^{-1} (10.0\%)$	$7.29 \times 10^{-1} (3.0\%)$
	$3.34 \times 10^{-1} (10.0\%)$	$4.5 \times 10^{-1} (5.0\%)$	$7.90 \times 10^{-1} (5.0\%)$
	$5.40 \times 10^{-1} (20.0\%)$	$4.61 \times 10^{-1} (5.0\%)$	$7.96 \times 10^{-1} (10.0\%)$

尚无1个裂变产额数据。

综上所述,现将<sup>79</sup> Se 等 13 种长寿命裂变产物核素的半衰期、裂变产额和热中子反应截面等核数据的测量现状评价列于表 4。

#### 2 长寿命裂变产物核素测量方法与技术

在长寿命裂变产物的反应截面、半衰期、裂变产额等核数据测量中,主要涉及到待测核素的放化分离、原子数的测定、放射性活度测量等方法和技术。

#### 2.1 放化分离程序

经典的放化分析采用传统的化学分离技术结合放射性测量,分析中,常需加入载体,以克服因放射性核素的微量状态带来的困难。离子交换、溶剂萃取、萃取色层、沉淀分离等是常用的放化分离方法。为获得放化纯的样品,要求放化分离程序有很高的去污因子。因此,常需将几种方法结合起来使用,以获得好的分离效果。例如,用放化分离法测量<sup>126</sup> Sn 半衰期<sup>[15]</sup>时,从高放废液中放化分离<sup>126</sup> Sn 的程序中包括沉淀法和萃取法分离流程,这一分离程序对其它核素的去污因子高达 10<sup>7</sup>。

实验测量中,多数情况下需进行不加载体的放化分离。例如,当待测核素量为  $10^{-8}$   $\sim$ 

10<sup>-9</sup> g 时,加入 mg 量载体后,载体同位素的量约为 10<sup>-3</sup> g,同量异位素干扰给质谱法测量待测核素的原子数造成很大困难。进行不加载体的放化分离时,含量很低的待测核素处于超微量状态,因此,应高度注意分离样品的沾污和目标核素的丢失。因此,不加载体的放化分离流程应具有对同量异位素有足够高的去污能力。

关于裂变产物核素的分离和分析有许多专著可供借鉴和参考,如早期美国曼哈顿计划中有关裂变产物的分离分析专著《Radiochemical Studies: The Fission Products》<sup>[16]</sup>,美国原子能委员会编制的 NAS-NS -3XXX 系列报告(如NAS-NS-3029<sup>[17]</sup>),以及郭景儒等主编的《裂变产物分析》<sup>[18]</sup>等。这些专著中的放化分离程序多数针对中长寿命核素,且是在加入载体下完成的。因此,针对长寿命核素的核数据测量的特殊要求,研究和建立针对特定核素的放化分离流程是进行长寿命裂变产物核素核参数测量不可缺少的关键技术环节。

#### 2.2 低活度样品测量技术

<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr、<sup>85</sup>Kr 等长寿命核素的半衰期相 对较短,为几十年,它们的裂变产额较高。所以,从混合裂变产物中经放化分离获得的样品 的放射性活度较高,可直接用常规核物理仪器

表 4 13 种长寿命裂变产物核素某些核数据的测量现状
Table 4 Present status of some nuclear data for 13 long-lived fission products

				g	<b>P</b>		
核素 -	热中子截面		半	半衰期		易裂变材料的热中子诱发裂变产额	
	 总体评价	不确定度	总体评价	不确定度	总体评价	不确定度	
<sup>79</sup> Se	无测量数据	无测量数据	数据不足	<50%	无测量数据	无测量数据	
$^{85}\mathrm{Kr}$	数据不足	>50%	数据不足	<10%	数据充分	<10%	
<sup>90</sup> Sr	数据不足	>50%	数据充分	无测量数据	数据充分	<10%	
$^{93}Nb^{m}$	无测量数据	无测量数据	数据充分	无测量数据	无测量数据	无测量数据	
$^{93}\mathrm{Zr}$	数据不足	无测量数据	数据不足	<50%	数据不足	<10%	
<sup>99</sup> Tc	数据充分	<50%	数据充分	无测量数据	无测量数据	无测量数据	
$^{107}\mathrm{Pd}$	数据不足	无测量数据	数据不足	>50%	无测量数据	无测量数据	
$^{113}Cd^{m}$	无测量数据	无测量数据	数据充分	<10%	无测量数据	无测量数据	
<sup>126</sup> Sn	无测量数据	无测量数据	数据不足	<50%	数据不足	<50%	
$^{129}\mathrm{I}$	数据不足	<10%	数据充分	<10%	数据不足	<50%	
$^{135}\mathrm{Cs}$	数据不足	<10%	数据不足	无测量数据	数据不足	<50%	
$^{137}\mathrm{Cs}$	数据不足	>50%	数据不足	<50%	数据充分	<10%	
$^{151}\mathrm{Sm}$	数据不足	<50%	数据不足	<10%	数据充分	<50%	

进行探测。例如,可直接用 Ge(Li)、HPGe 探测器测量 $^{137}$ Cs 的  $661.7 \text{ keV } \gamma$  射线强度,用液闪谱仪或正比计数器测量 $^{90}$ Sr 的  $\beta$  射线的强度等,从而得到它们的放射性活度。

对于半衰期超过 10<sup>3</sup> a 的长寿命核素,放射性活度往往低至用常规的核物理仪器无法测量的水平。对此,必须应用低本底测量装置,如反康普顿谱仪和低本底液闪谱仪等测定它们的放射性活度。

反康普顿谱仪的探测下限较低。中国原子能科学研究院近年研制的一台反康普顿谱仪,对<sup>137</sup> Cs 点状薄膜源的最低可探测活度为3.8 mBq。在<sup>126</sup> Sn 热中子反应截面测量研究<sup>[15]</sup>中,将纯化后的<sup>126</sup> Sn 溶液放置 72 d 以上,使<sup>126</sup> Sn 的衰变子体<sup>126</sup> Sb<sup>g</sup> 和<sup>126</sup> Sb<sup>m</sup> 达到放射性长期平衡后,利用该反康普顿谱仪测量样品中<sup>126</sup> Sb<sup>g</sup>和<sup>126</sup> Sb<sup>m</sup>的放射性,进而计算得到<sup>126</sup> Sn的原子数。

低本底液闪谱仪使用先进的三维谱分析技术来达到最佳的  $E^2/B$  和计数灵敏度,实现低本底测量。近年来,低本底液闪谱仪的性能不断 改 进,例 如 美 国 PACKARD 公 司 产1220 QUANTULUS型低本底液体闪烁计数仪,由内外各两个探头进行测量,两个外探头用于测量扣除环境紫外线等的干扰,测量本底计数率为  $1 \, \text{min}^{-1}$ ,对具有  $\beta$  射线能量为  $18.6 \, \text{keV}$  的 $^3$  H的探测效率为  $70\,\%\sim90\,\%$ 。  $^{93}$  Zr、 $^{135}$  Cs、 $^{79}$  Se、 $^{107}$  Pd 均为纯  $\beta$  放射性核素,它们的  $\beta$  射线能量很低,液闪测量无自吸收效应,计数效率高。应用低本底液闪谱仪测量将显著降低  $^{93}$  Zr、 $^{135}$  Cs、 $^{79}$  Se、 $^{107}$  Pd 的放射性活度测量误差。

#### 2.3 质谱法测量原子数

传统的热电离质谱仪(TIMS)用于测定微量长寿命或稳定核素的优点是准确度较高,最佳情况下的准确度可达到 1%~2%。在核数据实验测量领域,Lisman等[19]应用 TIMS测量了<sup>235</sup> U、<sup>239</sup> Pu 热中子裂变中的 40 个稳定的和长寿命核素的产额,这是迄今为止裂变产额测量中最为准确的测量工作。Flynn等[20]在107 Pd半衰期测量中应用 TIMS 测量原子数。TIMS的灵敏度较低,足够量的目标核素需从高强度的混合裂变产物中进行放化分离提取,这样的放化分离工作是极其困难的。

随着质谱技术的发展,电感耦合等离子体 质谱仪(ICP-MS、MC-ICP-MS)已广泛用于核 科学研究领域。这类质谱仪灵敏度高,探测下 限已达 0.01 μg/g 量级。ICP-MS、MC-ICP-MS 分析可大幅降低测量试样用量,从而减少放化 分离方面的困难。另外,它可用溶液样品直接 测量,省去了制样环节,分析操作简便、快速。 用 ICP-MS 谱仪测量长寿命裂变产物已有较多 文献报道。如 Kinard 等[21] 经放化分离或直接 用 ICP-MS 测量了国防废物处理装置表面的 <sup>93</sup> Zr、<sup>99</sup> Tc、<sup>107</sup> Pd、<sup>135</sup> Cs、<sup>151</sup> Sm 等长寿命裂变产 物核素和长寿命的 U、Np、Pu 等锕系核素。我 们在126 Sn 半衰期测量中应用 ICP-MS 测量 <sup>126</sup> Sn 的 原 子 数<sup>[22]</sup>。 这 些 测 量 工 作 表 明, ICP-MS谱仪可用于<sup>135</sup> Cs、<sup>129</sup> I、<sup>99</sup> Tc、<sup>93</sup> Zr、<sup>147</sup> Pm、 151 Sm等长寿命裂变产物核素的原子数测量。

第40卷

加速器质谱仪(AMS)有着更高的灵敏度,它可测到  $10^7 \sim 10^9$  原子水平。 $Haas^{[23]}$ 、蒋崧生等 $[^{24]}$ 等应用 AMS 测量了 $^{126}$  Sn、 $^{79}$  Se 的半衰期。 AMS 对制靶技术要求较高,分析测量费用昂贵,这使它的应用受到很大限制。

无论采用何种质谱仪测量,同量异位素的干扰不可避免。如对长寿命裂变产物<sup>126</sup> Sn、<sup>99</sup> Tc、<sup>79</sup> Se 进行质谱测量,它们分别受到同量异位素<sup>126</sup> Te、<sup>99</sup> Ru、<sup>79</sup> Br 等的干扰。因此,在进行质谱测量之前,必须对待测核素的同量异位素进行很好的化学分离。

#### 3 结论

长寿命裂变产物核素是高放废物深地层处置潜在长期风险研究与评价中的重点对象,也是洁净核能系统中分离嬗变计划的嬗变目标核素。这两个研究领域均对长寿命裂变产物核素的半衰期、裂变产额以及反应截面等核数据有着日益强烈的需求。开展它们的核数据测量研究很有现实意义。

对<sup>79</sup> Se 等 13 个长寿命裂变产物核素的半衰期、裂变产额和热中子反应截面测量数据的分析评价结果表明:总体来说,<sup>90</sup> Sr、<sup>99</sup> Tc、 $^{129}$  I、 $^{137}$  Cs 等核素的测量数据较为充分,其它核素则较为缺乏,有些核素目前尚无测量数据。因此,开展这些核素的核数据测量工作是必要的,适时的。

长寿命裂变产物核素核数据测量涉及核素的放化分离、核素原子数测定、放射性活度测量等技术环节。研究建立对待测核素针对性很强的放化分离纯化程序,应用 ICP-MS、AMS 等先进的质谱仪测量原子数,应用低本底液闪谱仪等测量放射性活度将会显著改善核数据的测量水平和质量。

感谢郭景儒研究员的热忱指导和帮助,感谢王方定院士、李金英研究员的支持和帮助。

#### 参考文献:

- [1] USA National Nuclear Data Center. CINDA 2000: The index to literature and computer files on microscopic neutron data[R]. Vienna: IAEA, 2000.
- [2] SINGH B. A = 79 [J]. Nuclear Data Sheets, 2002,96(1):1-176.
- [3] SIEVERS H. A = 85 update[J]. Nuclear Data Sheets, 1991,62(2):288-326.
- [4] BROWNE E. A = 90[J]. Nuclear Data Sheets, 1997,83(3):379-546.
- [5] BAGLIN C M. A = 93 update[J]. Nuclear Data Sheets, 1997,80(1):1-156.
- [6] TULI J K, REED G, SINGH B. 99 Tc[J]. Nuclear Data Sheets, 2001, 93(1):1-32.
- [7] BLACHOT J. A=107[J]. Nuclear Data Sheets, 2000, 89(2):213-344.
- [8] BLACHOT J. A = 113 [J]. Nuclear Data Sheets, 1998, 83(3): 647-787.
- [9] KATAKURA J, KITAO K. A = 126 [J]. Nuclear Data Sheets, 2002, 97(3/4): 765-926.
- [10] TENDER Y. A=129[J]. Nuclear Data Sheets, 1996,77(4):631-770.
- [11] SERGREEKOV Y V, SINGH B. A = 135 [J]. Nuclear Data Sheets, 1998, 84(1):115-275.
- [12] PEKER L K. A=137[J]. Nuclear Data Sheets, 1990, 59(4):767-868.
- [13] SINGH B, SZÜCS J A, JOHNS M W. A=151 [J]. Nuclear Data Sheets, 1988, 55(2):185-375.
- [14] MILLS R W. Fission product yield evaluation; A thesis to the faculty of science of the university of birmingham for the degree of doctor of philosophy[R]. UK: University of Birmingham, 1995.

- [15] ZHANG Shengdong, GUO Jingru, CUI Anzhi, et al. Measurement of the half-life of <sup>126</sup>Sn using a radiochemical method [J]. J Radioanal Nucl Chem, Letters, 1996, 212(2):93-99.
- [16] CORYELL C D, SUGARMAN N. Radiochemical studies: The fission products [M]. New York; McGraw-Hill, 1951.
- [17] WYATT E L, RICHARD R R. The radiochemistry of ruthenium: NAS-NS-3029[R]. USA: NAS, 1951.
- [18] 郭景儒,黄浩新. 裂变产物分析[M]. 北京:原子 能出版社,1985.
- [19] LISMAN F L, ABERNATHEY R M, MAECK W J, et al. Fission yields of over 40 stable and long-lived fission products for thermal neutron fissioned <sup>233</sup> U, <sup>235</sup> U, <sup>239</sup> Pu and <sup>241</sup> Pu and fast reactor fissioned <sup>235</sup> U and <sup>239</sup> Pu[J]. Nucl Sci Eng, 1970, 42(2):191-214.
- [20] FLYNN K F, GLENDENIN L E. The half-life of <sup>107</sup>Pd[J]. Phys Rev, 1969,185:1 591-1 594.
- [21] KINARD W F, BIBLER N E, COLEMAN C J, et al. Radiochemical analyses for the defense waste processing facility startup at the Savannah river site[J]. J Radioanal Nucl Chem, 1997, 219 (2):197-202.
- [22] 张生栋,刘峻岭,郭景儒,等. ICP-MS 法测量

  126 Sn半衰期[J]. 核化学与放射化学,2000,
  22(3):129-135.

  ZHANG Shengdong, LIU Junling, GUO Jingru,
  et al. Measurement of half-life of 126 Sn by ICPMS[J]. J Nucl Radiochem, 2000, 22(3): 129135(in Chinese).
- [23] HASS P, GARTENMANN P, GOLSER R, et al. A new half-life measurement of the long-lived fission product <sup>126</sup> Sn[J]. Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B, 1996, 114:131-137.
- [24] JIANG Songsheng, GUO Jingru, JIANG Shan, et al. Determination of the half-life <sup>79</sup> Se with the accelerator mass spectrometry technique [J]. Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B, 1997, 123:405-409.
- [25] YU Runlan, GUO Jingru, CUI Anzhi, et al. Measurement of the half-life of <sup>79</sup> Se using a radiochemical method[J]. J Radioanal Nucl Chem, Articles, 1995, 196(1):165-170.