

文章编号: 1007-4627(2017)03-0611-06

## 铀氧化物中 $^{238}\text{U}$ 含量的定量研究

李宛琼, 罗小兵<sup>†</sup>, 孙琦, 汪超, 夏川东, 李子越

(四川大学原子核科学技术研究所, 辐射物理及技术教育部重点实验室, 成都 610064)

**摘要:** 准确定量铀氧化物样品中  $^{238}\text{U}$  的含量对于裂变产额测量等工作具有重要意义, 其定量方法的研究对于涉及  $^{238}\text{U}$  的绝对测量的诸多实验都具有参考价值。利用四川大学 2.5 MeV 质子静电加速器产生的准单能中子对八氧化三铀样品进行中子活化, 用高纯锗探测器测量活化产物的  $\beta$  衰变子体  $^{239}\text{Np}$  的 277.6 keV 特征  $\gamma$  射线, 利用已知的活化截面, 算出样品中  $^{238}\text{U}$  的质量占比为 79.1%, 不确定度为 6.2%。利用电感耦合等离子体质谱法对样品中  $^{238}\text{U}$  的含量进行了测量, 其质量占比为 59.2%。此外, 基于 EA3000 元素分析仪、卡尔费休电位滴定仪和 TGA-DSC2 同步热分析质谱联用仪, 测知样品中不含 N 元素, 含水量在 2.2% 以下。并利用 PIXE 方法排除了样品中含有 Al 元素以上杂质, 利用 EPBS 方法测知样品中 U/O 原子数比为 1:3.6, 误差约 2%, 推知样品中  $^{238}\text{U}$  质量占比为 80%, 验证了活化法测得的  $^{238}\text{U}$  含量。最终测得样品中  $^{238}\text{U}$  的质量占比为 79.1%, 不确定度 6.2%。对照按  $\text{U}_3\text{O}_8$  分子式折算的 84.5%, 考虑到水分含量等, 此结果合理。

**关键词:**  $^{238}\text{U}$  定量; 中子活化法; 质谱法; PIXE; EPBS

**中图分类号:** O657.3      **文献标志码:** A      **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.34.03.611

### 1 引言

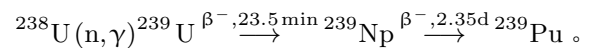
$^{238}\text{U}$  作为一种重要的裂变材料, 其含量的准确测定具有重要意义, 如在裂变产额测量工作中, 需要对其样品中  $^{238}\text{U}$  的含量进行准确定量<sup>[1, 2]</sup>。常用的定量方法有活化法、质谱法、直接  $\gamma$  能谱法等。中子活化分析需要用到加速器等中子源, 是一种无损分析方法<sup>[3-5]</sup>。质谱法即用电场和磁场将运动的离子按他们的质荷比分离后进行检测的方法, 属于有损分析, 在定量中需要用到标准物质<sup>[6]</sup>。直接  $\gamma$  能谱法是直接测量待测核素或其子体的  $\gamma$  放射性来确定核素含量<sup>[7-9]</sup>。本工作采用了上述的中子活化法和质谱法两种方法对八氧化三铀样品

中  $^{238}\text{U}$  的含量进行了测定。

### 2 中子活化法

#### 2.1 实验方法

利用加速器产生的准单能中子对八氧化三铀样品进行  $(n, \gamma)$  活化:



利用 HPGe  $\gamma$  谱仪测量  $^{239}\text{Np}$  的 277.6 keV 特征  $\gamma$  射线, 根据已知的  $(n, \gamma)$  活化截面和测得的中子注量率等, 由下式可以求得样品中  $^{238}\text{U}$  原子的个数:

$$N_{238} = \frac{A \cdot (\lambda_2 - \lambda_3) \cdot f}{\varepsilon \cdot I_\gamma \cdot \sigma \cdot \varphi \cdot \left[ \frac{\lambda_2}{\lambda_3} (e^{\lambda_3 t_0} - 1) (e^{-\lambda_3 t_1} - e^{-\lambda_3 t_2}) + \frac{\lambda_3}{\lambda_2} (1 - e^{\lambda_2 t_0}) (e^{-\lambda_2 t_1} - e^{-\lambda_2 t_2}) \right]}, \quad (1)$$

其中:  $A$  为 277.6 keV  $\gamma$  射线的全能峰计数;  $\lambda_2$ ,  $\lambda_3$  分别为  $^{239}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Np}$  的衰变常数;  $f$  为修正因子;  $\varepsilon$  为 277.6 keV 处的全能峰效率;  $I_\gamma$  为  $^{239}\text{Np}$  发射 277.6 keV  $\gamma$  射线的强度;  $\sigma$  为  $^{238}\text{U}$  的  $(n, \gamma)$  截面值;  $\varphi$  为中子注量率;  $t_0$ ,  $t_1$ ,  $t_2$  分别是停止中子照射时刻、开始

测量放射性时刻、停止测量放射性时刻(以开始照射时刻为零时)。

#### 2.2 样品制备与照射

用压片机将待分析的标称为分析纯的八氧化三铀粉

收稿日期: 2016-12-18; 修改日期: 2017-02-27

基金项目: 中国工程物理研究院中子物理学重点实验室资助项目(2014BA06)

作者简介: 李宛琼(1991-), 女, 山东金乡人, 硕士研究生, 从事核技术及应用研究; E-mail: 1024003949@qq.com

<sup>†</sup> 通信作者: 罗小兵, E-mail: luoxb@scu.edu.cn.

末在 14 MPa 压力下压制成直径 20 mm、约 2 mm 厚、约 2.5 g 重的圆片，在圆片前后分别贴上一个直径 20 mm、厚 0.5 mm、约 3 g 重的圆形金片作为中子通量

监测片，外面包上厚度为 0.3 mm 的镉以消除实验大厅中的镉热以下中子的影响，所用金片纯度高于 99.99%。制备样品数为 2 个，其中 1 号样品用作大厅本底监测。

表 1 样品质量信息表

| 质量/g | 1号样品  |       |       | 2号样品  |       |       |
|------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
|      | 铀片    | 前金片   | 后金片   | 铀片    | 前金片   | 后金片   |
|      | 2.514 | 2.975 | 2.950 | 2.489 | 2.975 | 2.951 |

实验大厅的布置如图 1 所示。因与 p 束方向夹角为 60° 左右的中子的微分截面随角度变化较为平坦<sup>[10]</sup>，故而 2 号样品放置在与 p 束方向夹角为 60° 方向、距靶头 4.5 cm 处；1 号样品作为本底监测片，放置在与 p 束方向夹角为 22°、距靶头 4.8 m 处。

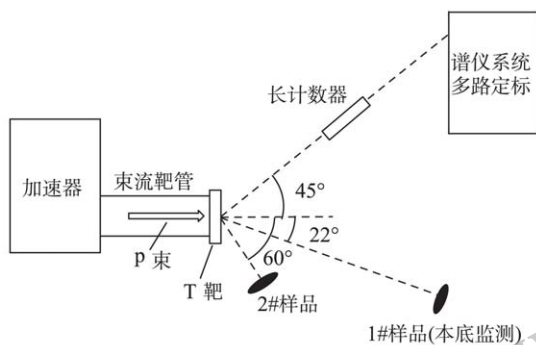


图 1 实验布置示意图

加速器加速 1.6 MeV 的质子轰击铀靶，通过 T(p, n)<sup>3</sup>He 反应产生中子。铀靶的衬底材料为 Mo，通过镀在 Mo 衬底上的微米数量级厚的钛吸附铀。靶管为黄铜材质，靶头冷却为外水冷。BF<sub>3</sub> 长中子计数器放置在距靶头 1.4 m 的 45° 角方向，后接多路定标系统，用以监测中子照射过程中中子通量随时间的稳定性，监测结果如图 2 所示。实验照射时间为 7 h。

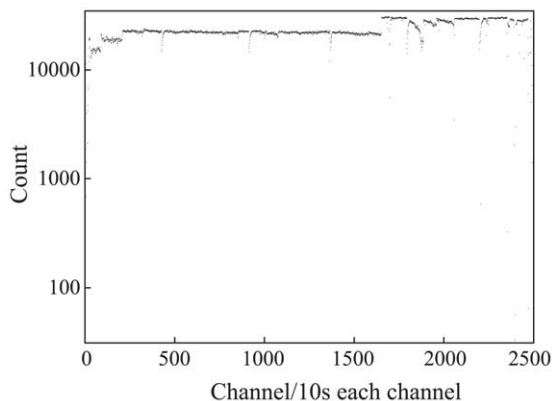


图 2 中子通量随时间的计数图

### 2.3 谱仪系统的效率刻度与放射性测量

实验采用美国 ORTEC 公司生产的 GEM30P4-76

同轴型 HPGe 探测器，前置放大器时间常数为 6 μs，对 <sup>60</sup>Co 在 1.33 MeV 处的能量分辨率为 1.85 keV。

谱仪系统的效率刻度采用多线法和距离变换法相结合的方式，以消除级联符合效应的影响<sup>[3, 11]</sup>。误差在 3% 以下，主要来源有标准源活度误差 1.6%，衰变纲图误差 0.6%，统计误差 1.2%。表 2 是全能峰效率刻度实验结果，根据效率曲线经验公式的双对数直线规律<sup>[12]</sup>，拟合结果如图 3 所示，拟合公式见式 (2)，R-Square 值为 0.999。

$$y = 1.33 \cdot x^{-0.797} \quad (2)$$

表 2 全能峰效率刻度实验结果

| 能量/keV | 全能峰效率   | 能量/keV | 全能峰效率   |
|--------|---------|--------|---------|
| 244.7  | 0.0166  | 778.9  | 0.00663 |
| 344.3  | 0.0128  | 867.4  | 0.00604 |
| 444.0  | 0.0102  | 964.1  | 0.00559 |
| 661.7  | 0.00765 | 1112.1 | 0.00486 |

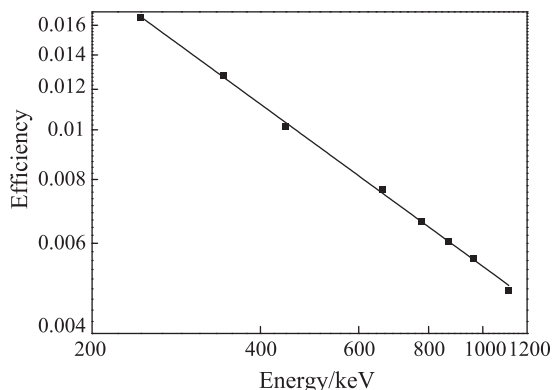


图 3 源距 5 cm 时的效率曲线图

样品冷却后，取下包装在镉盒中的铀片和金片，分别放置在距探头 5 cm 处的中心位置测其放射性，对于金片是将前后金片叠在一起测量。其中，1 号样品的谱图作为实验大厅本底的贡献。

### 2.4 数据处理

#### 2.4.1 中子通量计算

计算 <sup>238</sup>U 含量所需的中子通量值由测量金监测片的放射性得出。金片受到中子照射发生活化，(n, γ) 反应生成半衰期为 2.7 d 的 <sup>198</sup>Au，通过测量 <sup>198</sup>Au

的411.8 keV  $\gamma$ 射线, 利用已知的<sup>197</sup>Au(n,  $\gamma$ )<sup>198</sup>Au反应截面, 即可用下式计算出照射过程中的平均中子通量:

$$\phi = \frac{\lambda \cdot A \cdot f}{N_{\text{Au}} \cdot \sigma \cdot \varepsilon \cdot I_{\gamma} \cdot (1 - e^{-\lambda t_0}) \cdot e^{-\lambda t_1} \cdot (1 - e^{-\lambda t_2})}, \quad (3)$$

其中:  $\lambda$ 为<sup>198</sup>Au的衰变常数;  $A$ 为411.8 keV  $\gamma$ 射线的全能峰计数;  $f$ 为修正因子;  $N_{\text{Au}}$ 为监测片中的Au原子数目;  $\sigma$ 为<sup>197</sup>Au的(n,  $\gamma$ )截面值;  $\varepsilon$ 为411.8 keV处的全能峰效率;  $I_{\gamma}$ 为<sup>198</sup>Au发射411.8 keV  $\gamma$ 射线的强度;  $t_0$ 、 $t_1$ 、 $t_2$ 分别是中子照射时长、金片冷却时长、金片测量时长(均为实时)。

由粒子两体反应能量-角度公式<sup>[10]</sup>, 对于p束能量为1.6 MeV的T(p, n)<sup>3</sup>He反应, 60°方向的中子能量为0.43 MeV。由于60°附近中子的微分截面随角度变化较为平坦<sup>[10]</sup>, 样品上的平均中子能量近似等于0.43 MeV。由式(3)可得2号样品的平均中子注量率为 $3.84 \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (已包含修正因子), 误差的主要来源有效率刻度(3%), <sup>197</sup>Au(n,  $\gamma$ )<sup>198</sup>Au反应截面(1.2%), 计数统计(<1%)。其中, 反应截面及其误差取自ENDF/B-VII.1库。根据误差传递公式, 总的误差为3.4%。

#### 2.4.2 中子的多次散射和自屏蔽效应修正

中子照射过程中, 从靶头发出的中子会在衬底、冷却水、靶管和包层材料等上面发生多次散射效应, 而中子照射在铀样品以及金监测片上时, 其对中子会产生自屏蔽效应。这些效应在实验过程中都是不可避免的, 为了修正这两种效应造成的影响, 本实验采用MCNP5程序模拟的方法对其进行修正<sup>[13]</sup>。

分别模拟计算真实实验条件下和将氚靶衬底、靶管、冷却水层、样品包装等散射材料置空的理想条件下, 栅元单位体积内生成的放射性活度, 即可得到散射修正因子 $S = S_{\text{理想条件}} / S_{\text{真实条件}}$ 。

在实验中, 用两片质量、形状一致的金片将铀片夹在中间, 以减小中子注量衰减效应的影响。进行铀片的自屏蔽效应修正时, 将样品所在栅元沿中子入射方向等分为10份, 则自屏蔽修正因子 $D_U$ :

$$D_U = \frac{\sum_{i=1}^n N_{U_i}}{10N_{U_1}}, \quad (4)$$

其中:  $N_{U_i}(i = 1, 2 \dots 10)$ 表示第*i*个微栅元生成的放射性活度计数;  $10N_{U_1}$ 表示第一个微栅元生成放射性活度计数的10倍。对于金片类似, 将金片所在栅元沿中子入射方向等分为5份。

#### 2.4.3 $\gamma$ 射线的自吸收修正

进行 $\gamma$ 放射性测量时, 会涉及到待测片本身对于对象 $\gamma$ 射线的吸收(金片对于411.8 keV  $\gamma$ 射线的吸收, 铀

片对于277.6 keV  $\gamma$ 射线的吸收), 从而造成 $\gamma$ 射线的计数偏低。根据 $\gamma$ 射线在物质中的指数衰减规律, 自吸收修正因子为

$$F = \frac{\mu_m t_m}{1 - e^{-\mu_m t_m}}, \quad (5)$$

其中:  $t_m$ 为质量厚度, 单位:  $\text{g}/\text{cm}^2$ ;  $\mu_m$ 为质量衰减系数, 单位 $\text{cm}^2/\text{g}$ 。

根据来自NIST-XCOM库的不含相干散射成分的质量衰减系数数据, 插值得到所需元素对应 $\gamma$ 能量处的质量衰减系数。对于混合物, 总的质量衰减系数为各元素系数按质量折算之和。

总修正因子见表3。其中死时间修正因子 $f_d = \frac{T_{2\text{实}}}{T_{2\text{活}}}$ ,  $T_{2\text{活}}$ ,  $T_{2\text{实}}$ 分别为测量放射性时长的活时、实时。

表3 2号样品的修正因子表

| 修正因子             | 铀片    | 金片    | 二者之比  |
|------------------|-------|-------|-------|
| 散射修正因子 $S$       | 0.964 | 0.866 | 1.113 |
| 自屏蔽修正因子 $D$      | 1.108 | 1.049 | 1.056 |
| 自吸收修正因子 $F$      | 1.215 | 1.190 | 1.021 |
| 死时间修正因子 $f_d$    | 1.007 | 1.001 | 1.006 |
| 综合修正因子 $f = SDF$ | —     | —     | 1.207 |

### 2.5 结果与讨论

根据上述计算所得的中子通量数据和多种修正因子数据, 由公式(1)可算出铀片中所含的<sup>238</sup>U原子个数 $N_{238}$ , 带入下式即可得到<sup>238</sup>U的质量占比:

$$\eta_{238} = \frac{M \cdot N_{238}}{N_A \cdot m} \times 100\%, \quad (6)$$

其中:  $M$ 为<sup>238</sup>U的摩尔质量;  $N_A$ 为阿伏伽德罗常数;  $m$ 为所用八氧化三铀样品的质量。

经计算, 八氧化三铀样品中<sup>238</sup>U的质量占比为79.1%。误差的主要来源有: 效率刻度(3%), <sup>197</sup>Au(n,  $\gamma$ )<sup>198</sup>Au反应截面(1.2%), <sup>238</sup>U(n,  $\gamma$ )<sup>239</sup>U反应截面(4%), 计数统计(<1%)。反应截面数据取自ENDF/B-VII.1库, <sup>238</sup>U(n,  $\gamma$ )<sup>239</sup>U反应截面在中子能量200~600 keV的评价误差在2%~6%之间, 在430 keV左右的实验典型误差值为4%<sup>[14-16]</sup>。根据误差传递公式, 总的误差为6.2%。

### 3 质谱法

质谱法在多接收电感耦合等离子体质谱仪上进行, 对样品进行铀的各同位素含量的测量<sup>[6]</sup>。

质谱法测得的八氧化三铀样品中, <sup>238</sup>U的质量占比为59.2%, 误差在1%以内。实验中还测量了样品中铀的各同位素丰度: <sup>238</sup>U 99.64%, <sup>235</sup>U 0.35%, <sup>234</sup>U 0.00183%, <sup>236</sup>U 0.00398%。

### 4 N 元素和水分分析

基于四川大学分析测试中心的EA3000 元素分析仪、卡尔费休电位滴定仪和 TGA-DSC2 同步热分析-质谱联用仪, 对八氧化三铀样品做N元素分析和水分分析<sup>[17,18]</sup>。

若有硝酸铀酰未能完全分解, 则样品中含有N元素。硝酸铀酰分解反应式如下:



利用 EA3000 元素分析仪(分辨率 0.3 %), 在 900°C 下对样品高温灰化后测量 N 元素含量, 结果显示并未检测到含有 N 元素。

利用卡尔费休电位滴定法进行水分分析, 含水量为 1.9 %。此外, 采用热重分析方法, 升温速率 5°C/min, 质量变化趋势的点数据连线图如图 4, 总的失重量为 2.2 %。结合两种水分分析方法的结果, 样品中含水量不超过 2.2 %。

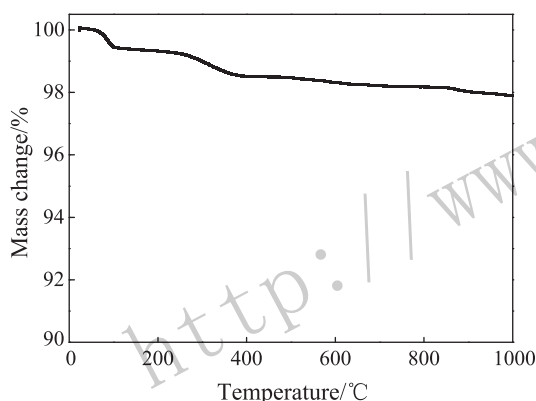


图 4 样品的热重 TG 曲线

### 5 PIXE 和 EPBS 分析

基于 2.5 MeV 质子静电加速器, 对样品做了质子诱发X射线荧光分析(PIXE) 和增强质子背散射分析(EPBS)<sup>[19]</sup>。

经加速器加速的质子束轰击样品, Si-PIN探测器在 135° 接收诱发的X射线信号, Au(Si) 探测器在 165° 接收背散射质子信号。两信号的能谱如图 5, 6 所示。

从图 5 可见, PIXE 能谱中所能分辨的峰都来源于 U 元素, 因此在 PIXE 可探测元素 (Al 元素) 以上, 没有明显的杂质存在。用 SIMNRA 软件分析 EPBS 谱, 如图 6 所示, 成分拟合结果为 U 与 O+N 原子数比 1:3.6, 误差约 2%, 误差主要来源于计数统计。由于样品中含有 2.2% 以下的水分, 因此 H 元素含量约 0.2%。又已知样品中不含 N 元素。由铀氧比可得 U 元素含量为 80%。对于该贫铀样品, 质谱法测得的 <sup>238</sup>U 同位素

丰度 99.64% 为合理值。因此, 推知八氧化三铀样品中 <sup>238</sup>U 质量占比为 80%。

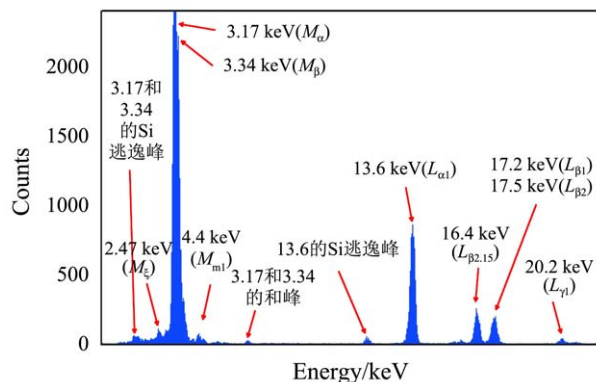


图 5 (在线彩图) 样品的 PIXE 能谱图

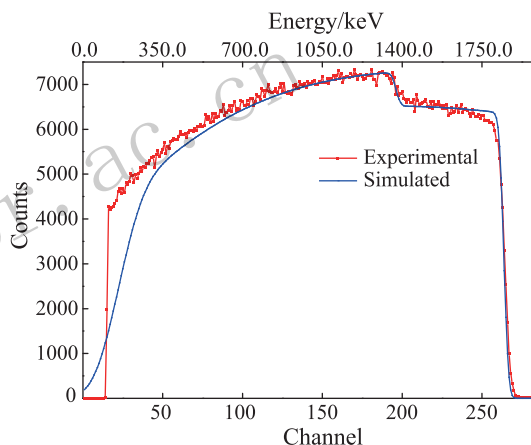


图 6 (在线彩图) 样品的 EPBS 能谱图

### 6 结论

本实验应用多种方法测量了八氧化三铀样品中 <sup>238</sup>U 的含量。中子活化法的测量结果为 79.1%, 误差为结果值的 6.2%。在活化法的计算中, 充分考虑了照射过程中中子的多次散射和自屏蔽效应, 以及放射性测量过程中的自吸收效应, 并应用蒙特卡罗方法对这些影响因素进行了修正。质谱法的测量结果为 59.2%。利用 EA3000 元素分析仪测知样品中不含 N 元素。利用卡尔费休电位滴定法和热重法测知样品中水分含量在 2.2% 以下。利用 PIXE 方法排除了 Al 元素以上的杂质。并利用 EPBS 方法测得了 U/O 原子数比为 1:3.6, 误差约 2%, 推知样品中 <sup>238</sup>U 质量占比为 80%, 这个结果与中子活化法的测量结果在误差范围内符合一致。此外, 按照 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 分子式折算, 对于贫铀样品 (<sup>238</sup>U 丰度 99.7%), <sup>238</sup>U 质量占比为 84.5%。考虑到 2.2% 以下的水分含量和实验误差, 79.1% 的含量即代表样品可能含有少量水分的 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, 几乎不含其他杂质。

结合多种分析方法, 该八氧化三铀样品中<sup>238</sup>U的含量为79.1%, 误差为结果值的6.2%。而此结果与质谱法的定量结果存在偏差。铀氧化物样品中<sup>238</sup>U含量的准确测量在之后的裂变产额测量等工作中具有重要意义, 其定量方法的研究对于涉及<sup>238</sup>U的绝对测量的诸多实验都具有参考价值。

**致谢** 感谢安竹研究员在本工作中给予的指导与支持, 感谢四川大学720所静电加速器全体工作人员的帮助。

#### 参考文献:

- [1] FENG Jing, YANG Yi, LIU Shilong, *et al.* Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2010, **32**(6): 322. (in Chinese) (冯晶, 杨毅, 刘世龙, 等. 核化学与放射化学, 2010, **32**(6): 322.)
- [2] LI Yingying, LUO Xiaobing, WANG Pan, *et al.* Nuclear Electronics and Detection Technology, 2016, **36**(2): 218. (in Chinese). (李映映, 肖军, 王攀, 等. 核电子学与探测技术, 2016, **36**(2): 218.)
- [3] WANG Chao, XIAO Jun, WANG Pan, *et al.* Nuclear Technology, 2016, **39**(8): 15. (in Chinese) (汪超, 肖军, 王攀, 等. 核技术, 2016, **39**(8): 15.)
- [4] YANG Wei, YUAN Guojun, XIAO Caijin, *et al.* Annual Report For China Institute of Atomic Energy, 2012. (in Chinese) (杨伟, 袁国军, 肖才锦, 等. 中国原子能科学研究院年报, 2012.)
- [5] MONTROYA E H, MENDOZA P A, BEDREGAL P S. Radioanal Nucl Chem, 2012, 291: 175. doi: 10.1007/s10967-011-1273-x
- [6] ZHU Liuchao, WAN Tongxing, ZHAO Yonggang, *et al.* Rock and Mineral Analysis, 2015, **34**(4): 414. (in Chinese) (朱留超, 王同兴, 赵永刚, 等. 岩矿测试, 2015, **34**(4): 414.)
- [7] LIU Likun, GUO Dongfa, HUANG Qiuhong. Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry, 2012, **2**(4): 10. doi: 10.3969/j.issn.2095-1035.2012.04.002. (in Chinese) (刘立坤, 郭冬发, 黄秋红. 中国无机分析化学, 2012, **2**(4): 10.)
- [8] LIU Guangshan, HUANG Yipu, LI Jing, *et al.* Acta Oceanologica Sinica, 2003, **25**(5): 66. (in Chinese) (刘广山, 黄奕普, 李静, 等. 海洋学报, 2003, **25**(5): 65.)
- [9] NEWTON N T, SUDARSHAN K, GOSWAMI A, *et al.* Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2009, **279**(2): 481. doi: 10.1007/s10967-007-7314-4.
- [10] MA Hongchang, LI Jizhou. Manual on monoenergetic neutron source data of accelerator[M]. Beijing: Institute of Atomic Energy, Chinese Academy of Science, 1976. (in Chinese) (马鸿昌, 李际周. 加速器单能中子源常用数据手册[M]. 北京: 中国科学院原子能研究所, 1976.)
- [11] HUA Yan, ZHU Zuobin, LIU Yiqin, *et al.* Nuclear Electronics & Detection Technology, 2014, **34**(1): 86. (in Chinese) (华艳, 朱祚斌, 刘艺琴, 等. 核电子学与探测技术, 2014, **34**(1): 86.)
- [12] Fudan University. Experimental method of nuclear physics (I)[M]. Beijing: Atomic Energy Press, 1981: 270. (in Chinese) (复旦大学. 原子核物理实验方法(上)[M]. 北京: 原子能出版社, 1981: 270.)
- [13] SUN Hongjuan, LUO Xiaobing, LI Chu, *et al.* Nuclear Electronics & Detection Technology, 2010, **30**(2): 288. (in Chinese) (孙红娟, 罗小兵, 李初, 等. 核电子学与探测技术, 2010, **30**(2): 288.)
- [14] WALLNER A, BELGYA T, BICHLER M, *et al.* Physical Review Letters, 2014, **112**: 192501
- [15] BULEEVA N N, DAVLETSHIN A N, TIPUNKOV O A, *et al.* Soviet Atomic Energy, 1988, **65**(5): 920.
- [16] POENITZ W P, FAWCETT Jr L R, SMITH D L. Nuclear Science and Engineering, 1981, **78**: 239.
- [17] WANG Han, CHEN Hailan, CHEN Zibin. Metallurgical Standardization & Quality, 2009, **47**(2): 11. (in Chinese) (王晗, 陈海岚, 陈自斌. 冶金标准化与质量, 2009, **47**(2): 11.)
- [18] SONG Jun, ZHAO Wei, SONG Gan, *et al.* Control and Instruments in Chemical Industry, 2011, **38**(7): 894. (in Chinese) (宋军, 赵薇, 宋刚, 等. 化工自动化及仪表, 2011, **38**(7): 894.)
- [19] ZHOU Z, XIA C D. Nucl Instr Meth B, 2015, **346**: 1.

## Quantification Study of $^{238}\text{U}$ in Uranium Oxides

LI Wanqiong, LUO Xiaobing<sup>†</sup>, SUN Qi, WANG Chao, XIA Chuandong, LI Ziyue

(Key Laboratory of Radiation Physics and Technology of Ministry of Education, Institute of Nuclear Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610064, China)

**Abstract:** The accurate quantification of  $^{238}\text{U}$  in uranium oxides is of great importance for measurements of fission yield. The study for the method of  $^{238}\text{U}$  quantification has significance to lots of experiments involving absolute measurement of  $^{238}\text{U}$ . The reaction  $(n, \gamma)$  in the triuranium octoxide samples was induced by  $\text{T}(p,n)^3\text{He}$  quasi-monoenergetic neutrons provided by the 2.5 MeV proton electrostatic accelerator in Sichuan University. The 277.6 keV characteristic  $\gamma$  ray of  $^{239}\text{Np}$  that comes from  $\beta$ -decay of the activation product  $^{239}\text{U}$  was detected by a HPGe detector. With the known  $(n, \gamma)$  cross section, the mass percentage of  $^{238}\text{U}$  in samples was determined to be 79.1%, with the uncertainty of 6.2%. ICP-MS was also used in the quantification of  $^{238}\text{U}$  in samples, its result was 59.2%. Meanwhile, the samples were analyzed by other several methods and the results showed that less than 2.2 %  $\text{H}_2\text{O}$ , no nitrogen, and no other impurity elements above Al were contained in the samples. EPBS was used to measure the atomic ratio of U and O and it was found that the mass percentage of  $^{238}\text{U}$  in samples was about 80%, verifying the result 79.1% of INAA.

**Key words:** quantification of  $^{238}\text{U}$ ; INAA; ICP-MS; PIXE; EPBS

<http://www.npr.ac.cn>

Received date: 18 Dec. 2016; Revised date: 27 Feb. 2017

Foundation item: Fund of Key Laboratory of Neutron Physics, China Academy of Engineering Physics (2014BA06)

<sup>†</sup> Corresponding author: LUO Xiaobing, E-mail: [luoxb@scu.edu.cn](mailto:luoxb@scu.edu.cn).