

动力堆乏燃料中 ^{146}Pm 与 ^{147}Pm 比值的测定

张丕禄 高玉兰 陈佩贤 王效英

(中国原子能科学研究院, 北京)

关键词 钷-146, 钷-147, 高效液相色谱。

一、序 言

^{147}Pm 是一种具有 2.62 a 半衰期, 发射粒子最大能量为 224.5 keV 的软 β 辐射源 (γ 发射很弱), 有广泛的用途^[1-3]。

^{147}Pm 虽有 $^{146}\text{Nd}(n, \gamma)^{147}\text{Nd} \xrightarrow{\beta} ^{147}\text{Pm}$ 的生产方法, 但其产量有限, 成本高。而核裂变产物 ^{147}Pm ——核动力堆的副产物, 来源是非常丰富的。

但是, 在裂变产物 ^{147}Pm 中除存在 $^{148}\text{Pm}(T_{1/2}=5.4 \text{ d})$ 和 ^{148m}Pm 之外, 还存在一种伴有 γ 发射的同位素 ^{146}Pm 。尽管 ^{146}Pm 是一个屏蔽核, 但在裂变产物中仍有一定的产额。Aumann 等人^[4]测定短时间照射 ^{235}U 裂变的独立裂变产额, 小于 $4.5 \times 10^{-10}\%$, 共量比 ^{147}Pm 的累积裂变产额 (2.26%)^[9] 要小得多。但在照射 23.27 d 的 ^{235}U 裂变产物中发现 ^{146}Pm 的裂变独立产额 (假定所测得的 ^{146}Pm 都是裂变生成的) 是 $6.7 \times 10^{-8}\%$, 比前值大了二个数量级。他们认为这是由于 $^{147}\text{Pm}(n, 2n)^{146}\text{Pm}$ 反应所致, 从而使 ^{146}Pm 的量比直接裂变生成的量大得多。所以经长时间运行后的动力堆燃料中, ^{147}Pm 中的 ^{146}Pm 将是一个不可忽视的量, 而且它的半衰期为 5.5 a^[8], 采用衰变的办法来减少 ^{147}Pm 中 ^{146}Pm 的量是完全不可能的。因此提出了应用大量的 ^{147}Pm 时的 γ -射线防护问题。有人提出使用裂变产物 ^{147}Pm 做热源已不可能, 有人则认为问题不大。Roberts 等人^[1]测定过美国某些动力堆 Pm 产物中 ^{146}Pm 与 ^{147}Pm 之比, 支持了后一种观点, 认为含有 4 ppm ^{146}Pm 的 ^{147}Pm 热源的防护要求与对防护要求比较低的 ^{238}Pu 热源相近。

我们在对动力堆乏元件燃耗测定的同时, 对 ^{146}Pm 与 ^{147}Pm 之比也进行了测定。

二、实 验

取一定量的辐照元件切片溶解液, 加入一定量的 NaBrO_3 , 先后通过两根 HDEHP-萃淋树脂柱进行预分离, 得到较纯的希土组元素。再经高效液相色谱柱, 用 pH 为 3.80 的 0.5 mol/l 的 α -HIB (α -羟基异丁酸) 溶液淋洗, 分离除去大量的强 γ 发射体 Eu^{51} 。收集 Pm 的淋洗液, 再经 30% 的 HDEHP-环己烷溶液萃取, 除去 α -HIB, 再反萃入 5 mol/l HNO_3 溶液中。取此溶液或稀释后的溶液在聚四氟乙烯盘中做 γ -源或 β -源, 分别用带有同轴 Ge(Li) 探测器 (灵敏体积 130 cm^3) 的 SCORPIO-3000 4096 道计算机系统 (美国 CANBERRA 公司产) 测定 γ 谱和带三联苯闪烁探测器的 FH-1914 低本底仪 (北京核仪器厂产) 测定 β 计数率。

利用由多道计算机系统的 GAMMAS 程序计算的 453.7, 735.6 和 747.24 keV 峰面积, 由 Ge(Li) 探测器在该峰处的探测效率及该峰的分支比, 可计算出 ^{146}Pm 的活度。将该值与低本底测得的 β 计数率及 ^{147}Pm 的计数效率计算的 ^{147}Pm 的活度进行比较, 即得 ^{146}Pm 与

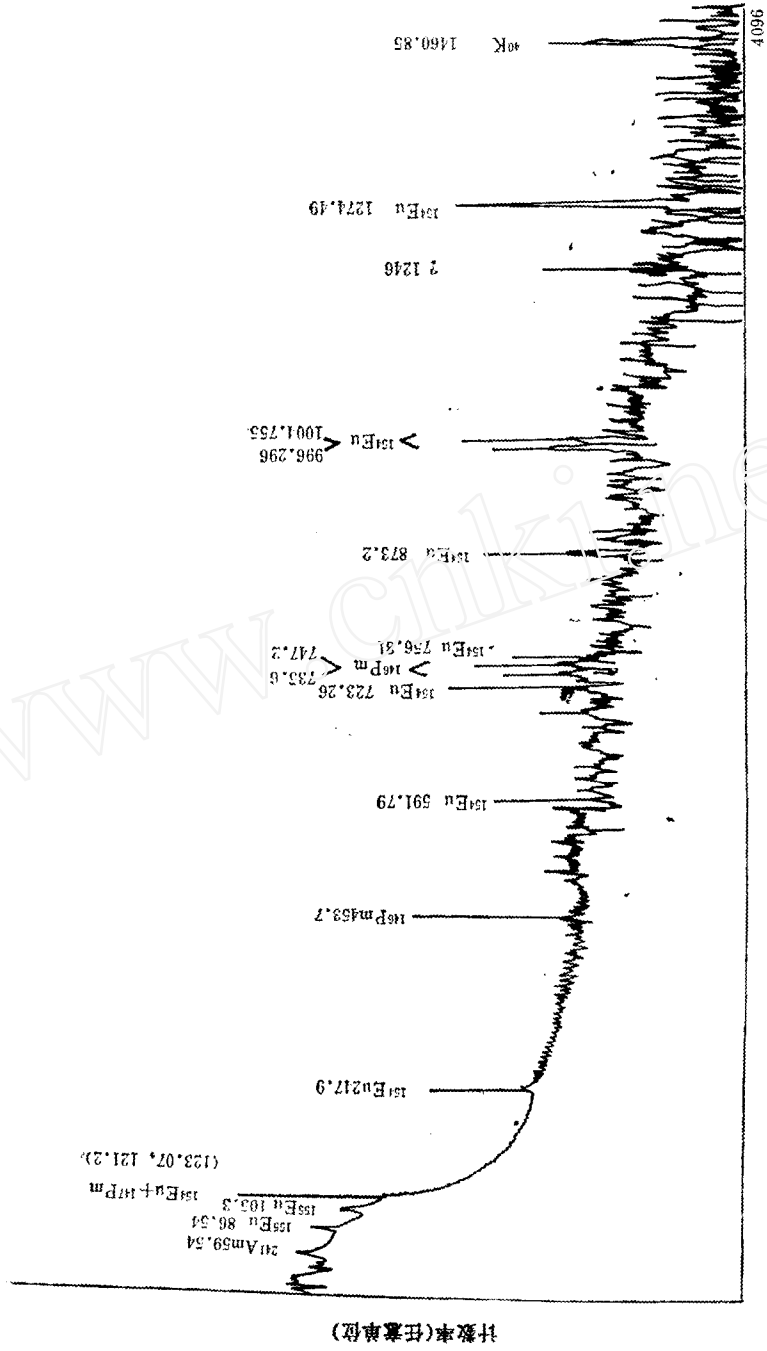


图 1 ^{146}Pm 样品的 γ -能谱
Fig.1 γ -Spectrum of ^{146}Pm sample

¹⁴⁷Pm 之比值(活度比)。

三、结果与讨论

¹⁴⁶Pm 的 γ 能谱示于图 1。从中可以看出 ¹⁵⁴Eu, ¹⁵⁵Eu 和 ²⁴¹Am 是主要的 γ -放射性杂质, 而且有一定的量。不过, 它与 ¹⁴⁷Pm 的量相比已经在 10^{-5} 以下了, 证明去污效果是比较理想的。同时, 由图还可以看出, 由于采用了高分辨率的 Ge(Li)探测器, ¹⁵⁴Eu 的峰不干扰 ¹⁴⁶Pm 的峰, 从而不影响对 ¹⁴⁶Pm 峰面积的测量。

¹⁴⁶Pm 和 ¹⁴⁷Pm 的活度测定结果及用以计算的主要数据分别列于表 1 和 2。校正到 1978 年 1 月 1 日时的 ¹⁴⁶Pm 与 ¹⁴⁷Pm 的活度比及由同位素稀释质谱法测定的燃耗值列于表 3。

表 1 测定数据

Table 1 The radioactivity of ¹⁴⁷Pm and ¹⁴⁶Pm

样品号	¹⁴⁷ Pm活度/Bq	¹⁴⁶ Pm活度/Bq			
		453.7keV	735.6keV	747.24keV	平均值
1	6.78×10^6	67.2	53.5	68.0	63
2	7.72×10^6	63.7	54.7	68.3	62

表 2 计算所用数据

Table 2 The data used in calculating

核素	¹⁴⁷ Pm	¹⁴⁶ Pm		
		453.7keV	735.6keV	747.24keV
分支比	1.00	0.63	0.23	0.37
计数效率/%	28.8	5.08	3.12	3.08

表 3 燃耗及¹⁴⁶Pm与¹⁴⁷Pm活度比

Table 3 The measured burn-up and the ratios of the radioactivity of ¹⁴⁶Pm to that of ¹⁴⁷Pm

样品号	燃耗值/MWd·t ⁻¹	活度比
1	1.7×10^4	3.0×10^{-6}
2	1.5×10^4	2.6×10^{-6}

结果与 1965 年 Roberts 等人^[1]测定的 Yankee 堆和 Vallecitos 沸水堆元件所得值相近。他们发现燃耗不同, ¹⁴⁶Pm/¹⁴⁷Pm 之值(活度比)也不同, 无规律可寻。Yankee 堆元件的最大值为 4.7×10^{-6} , 小的为 4.0×10^{-6} , Vallecitos 沸水堆的均约为 1×10^{-6} 。我们的值比 Yankee 堆的稍小一点, 比 Vallecitos 堆的稍大一点, 但比 Roberts 等人^[6]1963 年测的 Oak Ridge 堆样品中的 $(2.63-3.02) \times 10^{-7}$ 大了约一个数量级。这些结果均未反映出与燃耗的关系。

图 2 是反应堆中¹⁴⁷Pm 和 ¹⁴⁶Pm 两核生成与衰变的关系图。由图可以看出, ¹⁴⁶Pm 有三

种来源。其中 ^{145}Pm 是屏蔽核,核裂变产额(Y_f)很小,其(n, γ)反应的生成物量很小。所以, ^{146}Pm 主要是由 ^{235}U 直接裂变(它也是一个屏蔽核)和 ^{147}Pm 的(n,2n)反应生成。

前面涉及到的不同堆的燃烧过的元件中 ^{146}Pm 与 ^{147}Pm 比值不同,可能是因为堆型不同因而中子能谱不同引起的。因快中子通量密度不同,(n,2n)反应产物量就会不同(反应的阈能 $\sim 7.8\text{ MeV}^{[6]}$)。比值与燃耗无关,则是因为 ^{146}Pm 的中子反应截面较高(8400 $^{[7]}$ 或8000 $^{[8]}$ b),可能在某一条件下使 ^{146}Pm 与 ^{147}Pm 的活度比达到平衡。

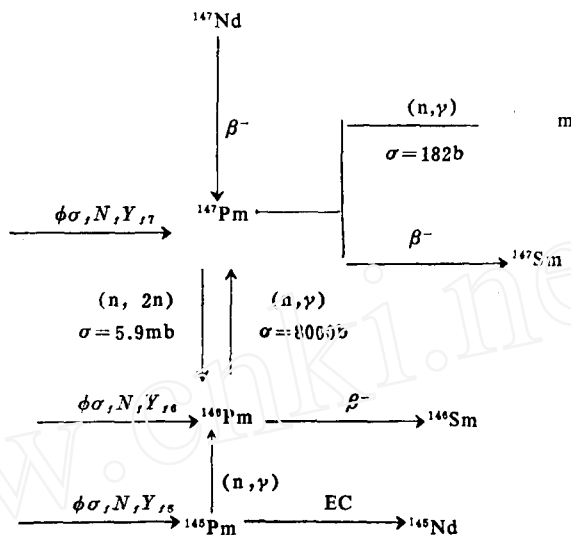


图2 堆中 ^{147}Pm 与 ^{146}Pm 的生成与衰变关系

Fig. 2 Relationship of the production and the disintegration of ^{147}Pm and ^{146}Pm in a reactor

参 考 文 献

- [1] Roberts, F. P., et al., BNWL-45, 1965.
- [2] Gillette, J. H., ORNL-3802, 1965.
- [3] Fullam, H. T., et al., BNWL-363, 1967.
- [4] Aumann, D. C., et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.* 39,1217(1977).
- [5] 张丕禄等人, 原子能科学技术, 23(4) 19(1989).
- [6] Roberts, F. P., et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.* 25, 1298(1963).
- [7] Pinajiam, J. J., et al., *ibid* 29, 2117(1967).
- [8] 卢希庭等人, 核素数据手册, 北京, 原子能出版社, 1981年, 216页。
- [9] Kider, B. F., NEDO-12154-3(c), 1980.

(编辑部收到日期: 1987年12月3日)

DETERMINATION OF THE RATIOS OF ^{146}Pm TO ^{147}Pm

ZHANG PILU GAO YULAN
CHEN PEIXIAN WANG XIAOYING

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

ABSTRACT

The ratios of ^{146}Pm to ^{147}Pm were determined. When the burnups were 1.5×10^4 and 1.7×10^4 MWd/tU, the ratios were 2.6×10^{-6} and 3.0×10^{-6} respectively. The activity of ^{146}Pm was measured with the γ -ray spectra by a Ge (Li) detector and that of ^{147}Pm with determination of beta particles by a terphenyl scintillation detector. The samples of Pm in the spent fuel for a power reactor before measurement were separated from Sr, Cs, Ce, U, transuranium elements and others with leventrel chromatography and then from the other rare earth elements etc. with the HPLC using α -HIBA.

Key words ^{146}Pm , ^{147}Pm , HPLC.

www.cnki.net