

韧致辐射测量法分析放射性废水中⁹⁰Sr 含量

刘大鸣 李大明 郭景儒 唐培家 张淑兰 崔安智

(中国原子能科学研究院放射化学研究所, 北京, 102413)

用 HPGe γ 谱仪与低本底 NaI(Tl) γ 谱仪相结合, 通过测量放射性废水中⁹⁰Sr-⁹⁰Y 发射的高能电子与探测器作用所产生的韧致辐射, 确定⁹⁰Sr 含量。运用本方法取样测量了中国原子能科学研究院积存的 7 种放射性废水样品。5 种废水中⁹⁰Sr 含量的测量结果与放化法测量结果在 10% 以内相符。

关键词 ⁹⁰Sr 韧致辐射 放射性废水

裂变产物⁹⁰Sr 及其子体⁹⁰Y 均为纯 β 发射体。通常采用放化法将⁹⁰Sr 分离纯化、制源, 测量其 β 放射性以确定⁹⁰Sr 含量。放化法工作量大, 又较费时。R. L. Brodzinski 等^[1]曾提出 1 种用 Ge(Li) 探测器探测⁹⁰Sr-⁹⁰Y 产生的韧致辐射的现场“测井”技术来研究低水平放射性废物在浅地层埋藏时⁹⁰Sr 的迁移, 他们用 102cm³ 的 Ge(Li) 探测器进行测量。在裂变产物放射性浓度为 3.7kBq/cm³ 的情况下, 测量 10s, ⁹⁰Sr 的探测限达到 33Bq/cm³。在无干扰核素时, 探测限可达 0.4Bq/cm³。D. G. Olsen^[2]采用 NaI(Tl) 闪烁探测器直接测量⁹⁰Sr-⁹⁰Y 产生的韧致辐射以确定人颅骨中⁹⁰Sr 的富集程度。本工作将 HPGe 探测器分辨率高、鉴别 γ 放射性核素能力强的特点与 NaI(Tl) 探测器对 γ 放射性探测效率高的优点相结合, 建立 1 个不需放化分离、直接分析放射性废水中⁹⁰Sr 的方法: 用 NaI(Tl) γ 谱仪测量⁹⁰Sr-⁹⁰Y 的高能电子与探测器作用时产生的韧致辐射强度; 用 HPGe γ 谱仪对放射性废水中 γ 放射性核素进行分析; 实验测定转换比例因子 R 以扣除 γ 放射性核素在韧致辐射测量中的干扰, 由此确定出废水中⁹⁰Sr 含量。

1 实验部分

1.1 实验仪器

1) FH-1906 型低本底井型 NaI(Tl) 闪烁 γ 谱仪, NaI(Tl) 晶体尺寸为 75mm \times 75mm, 对 ¹³⁷Cs 661.6keV γ 射线的分辨率为 13%, 北京核仪器厂生产。2) HPGe γ 谱仪, 探测灵敏体积为 110cm³, 对 ⁶⁰Co 1332keV γ 射线的分辨率为 1.9keV, 中国原子能科学研究院生产。3) S-90 多道分析器、2020 型谱仪放大器及 8076 型 ADC 均为美国 CANBERRA 公司产品。

1.2 ⁹⁰Sr 探测效率刻度

准确称取⁹⁰Sr-⁹⁰Y 标准溶液于铺有滤纸的聚四氟乙烯测量盘(内径 ϕ 16mm, 底厚 1mm)

收稿日期: 1994-05-26 收到修改稿日期: 1995-03-10

中,在红外灯下烘干,制成 ^{90}Sr - ^{90}Y 系列标准源。 ^{90}Sr - ^{90}Y 标准溶液由中国原子能科学研究院计量测试部提供,活度的不确定度为1%。用井型NaI(Tl)探测器测量 ^{90}Sr - ^{90}Y 标准源产生的韧致辐射谱,并记取合适能区的积分计数,与源的活度相比以得到该能区 ^{90}Sr - ^{90}Y 韧致辐射计数效率。

1.3 转换比例因子 R 的测定

将 ^{90}Sr - ^{90}Y 标准源和几何形状与之全同的一系列单核素放射源,在相同几何条件下分别用NaI(Tl) γ 谱仪和HPGe γ 谱仪测量。由此测定出某核素的转换比例因子 R_i 为:

$$R_i = \frac{A_{\text{NaI}}(i)}{A_{\text{HPGe}}(i)} \quad (1)$$

式中: $A_{\text{NaI}}(i)$ 为NaI(Tl) γ 谱仪测得的第 i 个核素在某能区内的积分净计数;

$A_{\text{HPGe}}(i)$ 为HPGe γ 谱仪测得的第 i 个核素特征能峰面积。

1.4 ^{90}Sr 含量测定

准确称取一定量放射性废水于铺有滤纸的、几何形状与 ^{90}Sr - ^{90}Y 标准源相同的聚四氟乙烯测量盘中,置于井型NaI(Tl) γ 谱仪上测量,将本底扣除,得到某能区内积分净计数。再用HPGe γ 谱仪确定出 γ 放射性核素的种类以及这些核素的特征能峰强度,利用转换比例因子 R_i ,分别计算出 γ 放射性核素在NaI(Tl) γ 谱相应能区的干扰。将干扰逐一扣除,得到废水中 ^{90}Sr - ^{90}Y 的放射性活度 $A(^{90}\text{Sr})$ 为

$$A(^{90}\text{Sr}) = \frac{A_{\text{NaI}} - \sum(R_i A_{\text{HPGe}}(i))}{\epsilon(^{90}\text{Sr})} \quad (2)$$

式中: A_{NaI} 为NaI(Tl) γ 谱仪测得的废水样品在某能区内的积分净计数; $A_{\text{HPGe}}(i)$ 和 R_i 的意义同于式(1); $\epsilon(^{90}\text{Sr})$ 为 ^{90}Sr 在NaI(Tl) γ 谱仪上相应能区的探测效率。

2 实验结果及讨论

2.1 ^{90}Sr - ^{90}Y 韧致辐射测量能区的选择

Brodzinski等^[1]选择60—230keV能区进行测量,作者认为,用Ge(Li)探测器测量时 ^{90}Sr - ^{90}Y 韧致辐射的主要贡献落在该能区。本工作所测废水中含有 ^{133}Ba 、 ^{144}Ce - ^{144}Pr 、 ^{154}Eu 、 ^{155}Eu 及 ^{241}Am 等长寿命放射性核素,它们在该能区都有光电峰。那些在该能区没有光电峰的核素,它们产生的康普顿散射也分布在这个能区。由于在所测量的废水中 ^{137}Cs 的含量远高于其它核素,因此 ^{137}Cs 干扰最大。显然,若选用这一能区,在计算 ^{90}Sr - ^{90}Y 的韧致辐射时,干扰校正量大。在本工作中,为避开 ^{137}Cs 的干扰,减少校正误差,选择了800—1800keV能区进行测量,这时, ^{90}Sr - ^{90}Y 产生的韧致辐射仍有相当的份额。在本工作测量条件下, ^{90}Sr - ^{90}Y 在NaI(Tl) γ 谱图上800—1800keV能区内的韧致辐射约为60—230keV能区的一半。表1列出中测(Tl)和HPGe探测器在上述2个能区测得的 ^{90}Sr - ^{90}Y 的探测效率。由于是在井型NaI(Tl)NaI量,测量立体角近于 4π 。可以看出,在2个能区,NaI(Tl)较HPGe的探测效率分别高出1和3个量级。

2.2 ^{90}Sr - ^{90}Y 在NaI(Tl)和HPGe γ 谱仪上的探测限DL

^{90}Sr - ^{90}Y 在NaI(Tl)和HPGe γ 谱仪上的探限DL由式(3)给出:

$$\text{DL} = \frac{3\sqrt{N_b}}{\epsilon t}$$

式中: t 为本底测量时间, s ; N_b 为特定能区内无干扰核素存在时 $t = 10000s$ 的本底计数; ϵ 为特定能区的探测效率。表2给出了⁹⁰Sr-⁹⁰Y韧致辐射的探测限。

表1 ⁹⁰Sr-⁹⁰Y在NaI(Tl)和HPGe γ 谱仪上的探测效率

Table 1 Detection efficiency on both NaI(Tl) and HPGe γ spectrometers in two energy regions

能区/keV	探测效率 ϵ	
	NaI(Tl)	HPGe
60—230	2.1×10^{-2}	4.5×10^{-4}
800—1800	1.2×10^{-2}	5.0×10^{-6}

表2 ⁹⁰Sr-⁹⁰Y在NaI(Tl)谱仪和HPGe γ 谱仪上的探测限

Table 2 Detection limit of bremsstrahlung on both NaI(Tl) and HPGe γ spectrometers

能区/keV	探测限 DL/Bq	
	NaI(Tl)	HPGe
60—230	0.7	89
800—1800	1.6	4.8×10^3

从表2可见,就NaI(Tl) γ 谱仪而言,低能区和高能区的探测限DL值相差不多;NaI(Tl)探测器对⁹⁰Sr-⁹⁰Y的探测灵敏度却比HPGe探测器要高得多。

2.3 废水中干扰核素的转换比例因子 R

用NaI(Tl)和HPGe γ 谱仪对放射性废水中存在的一系列单核素放射源进行测量,测得的这些核素在60—230和800—1800keV 2个能区相应的转换比例因子 R 列于表3。

表3 各种核素的转换比例因子 R

Table 3 Factor R for various nuclides

核素	特征能峰/keV	不同能区(keV)的 R	
		60—230	800—1800
²⁴¹ Am	59.5	60.04	6.14×10^{-3}
¹⁵⁴ Eu	123.1	19.19	7.42
¹⁴⁴ Ce- ¹⁴⁴ Pr	133.5	32.55	10.81
¹³³ Ba	356.0	8.53	1.62×10^{-3}
¹⁰⁶ Ru - ¹⁰⁶ Rh	511.8	18.92	27.81
¹³⁴ Cs	604.7	2.13	7.13
¹³⁷ Cs	661.7	5.79	1.51×10^{-2}
⁶⁰ Co	1173.2	2.50	13.36

从式(1)可以看出,干扰核素 R 值越低,对⁹⁰Sr分析影响越小。从表3列出的 R 值可以判定,在低能区测量时,¹³⁴Cs、⁶⁰Co、¹⁰⁶Ru - ¹⁰⁶Rh的干扰小;在高能区,¹³⁷Cs、²⁴¹Am、¹⁴⁴Ce - ¹⁴⁴Pr、¹³³Ba、¹⁵⁴Eu的干扰小,其中¹³⁷Cs的干扰比低能区小近400倍,由此带来的校正误差将明显减小。显然,选择800—1800keV能区是有利的。

2.4 放射性废水成份及含量分析

表4列举出用HPGe直接 γ 能谱法对中国原子能科学研究院积存的几种放射性废水中部分放射性核素的分析结果^[3]。

作为比较,在用韧致辐射法分析废水中⁹⁰Sr含量时,用放化法进行对比分析。结果列于表5。

表4 中国原子能科学研究院几种放射性废水中部分放射性核素的分析结果

Table 4 Analytical results of part of nuclides in several kinds of radioactive waste waters arising from CIAE by HPGe γ spectroscopy

核素	强放 废水	不同类型放射性废水中的放射性含量/Bq·g ⁻¹				
		含Pu废水(I)	含Pu废水(II)	弱放絮凝 泥浆清液	弱放絮凝 泥浆干渣	蒸发浓缩 残液
¹³⁷ Cs	2.3 × 10 ⁸	6.3 × 10 ⁵	6.3 × 10 ⁵	1.8 × 10 ²	1.3 × 10 ⁵	1.3 × 10 ⁷
¹⁵⁵ Eu	—	8.9 × 10 ³	1.0 × 10 ³	—	—	—
¹⁵⁴ Eu	4.3 × 10 ⁵	8.9 × 10 ³	8.9 × 10 ³	—	—	—
⁶⁰ Co	2.6 × 10 ⁶	3.0 × 10 ⁴	3.1 × 10 ⁴	6.2 × 10 ²	1.3 × 10 ³	4.3 × 10 ⁴
²⁴¹ Am	1.0 × 10 ³	12.2	13.3	—	4.3 × 10 ³	—
¹⁴⁴ Ce	—	—	—	—	2.9 × 10 ⁴	—
¹³³ Ba	—	—	—	—	2.6 × 10 ³	—

表5 韧致辐射法与放化法的分析结果比较

Table 5 Comparison of analytical results between both methods of direct measurement and radiochemical analysis

分析方法	强放 废水	废水中 ⁹⁰ Sr含量/Bq·g ⁻¹					
		含Pu废水(I)	含Pu废水(II)	弱放絮凝 泥浆干渣	1AW 废液	弱放絮凝 泥浆清液	蒸发浓缩 残液
韧致辐射法	3.8 × 10 ¹¹	2.2 × 10 ⁹	2.3 × 10 ⁹	2.6 × 10 ¹⁰	1.9 × 10 ¹⁰	—	7.0 × 10 ⁷
放化法	3.9 × 10 ¹¹	2.0 × 10 ⁹	2.1 × 10 ⁹	2.7 × 10 ¹⁰	1.9 × 10 ¹⁰	4.9 × 10 ⁷	2.8 × 10 ⁷

从表5可以看到,运用本方法对强放废水、含Pu废水(I)、含Pu废水(II)、弱放絮凝泥浆干渣及1AW高放废液等5种放射性废水的测量结果与放化法的分析结果在10%以内相符。

由于通常遇到的放射性废水中的主要成份为长寿命裂变产物核素,其中⁹⁰Sr的含量比较高。含量较高且与之相近的主要是¹³⁷Cs(表4),其它 γ 放射性核素的含量相对较低。因此,对于这些废水,在高分区根据R值扣除干扰核素的干扰所引起的误差较小,用本方法分析⁹⁰Sr可以得到较好的结果。对于弱放絮凝泥浆清液和蒸发浓缩残液,由于受方法分析灵敏度的限制和干扰核素的影响,没有得到满意的分析结果。弱放絮凝泥浆清液的成份比较特殊,裂变产物核素⁹⁰Sr和¹³⁷Cs的含量都不高,而活化产物⁶⁰Co的含量却较高。在高分区,⁶⁰Co的光电峰对⁹⁰Sr分析的干扰很大;在低能区进行分析时,由于⁶⁰Co γ 射线康普顿散射的影响,扣除⁶⁰Co的干扰后,分析误差很大。因此,未能给出分析结果。对于蒸发浓缩残液,其中⁹⁰Sr的含量很低,¹³⁷Cs的含量较⁹⁰Sr高得多,使得⁹⁰Sr分析结果准确度下降。由于是在较高分区测量⁹⁰Sr-⁹⁰Y的韧致辐射,放射性废水中可能存在的一些 β 射线能量较低的长寿命纯 β 放射性核素如

⁹⁹Tc、¹⁴⁷Pm 等的干扰可以不予考虑。被分析的放射性废水已经存放足够长的时间, $T_{1/2} = 50.5$ d 的⁸⁹Sr 已不复存在。

3 结论

根据以上结果可以认为,用韧致辐射测量法对通常遇到的放射性废水进行直接分析是可行的。应用 NaI(Tl)与 HPGe γ 谱仪联合进行测量,当⁹⁰Sr 的韧致辐射的贡献大于干扰核素的干扰或与其相当时,将能得到比较好的分析结果。

对于能区选择,要根据所分析的样品中干扰核素的分布、对⁹⁰Sr 分析的影响大小及测量的条件具体选定。

本工作得到了李学良同志的热心帮助,特致谢意。

参 考 文 献

- 1 Brodzinski RL, Nielson HL. Nucl Instrum Methods, 1980, 99:173.
- 2 Olson DG. Health Physics Operational Monitoring, Vol 1. Willis, CA(ed). [s. l.]: Gordon and Breach Science Publishers Inc, 1972. 689.
- 3 李大明, 张淑兰, 唐培家, 等. 中国原子能科学研究院多种放射性废水的分析. 中国原子能科学研究院资料, 1991.

A DIRECT WAY TO DETERMINE THE CONTENT OF ⁹⁰Sr IN RADIOACTIVE WASTE WATERS

LIU DAMING LI DAMING GUO JINGRU
TANG PEIJIA ZHANG SHULAN CUI ANZHI

(Department of Radiochemistry, China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275-48, Beijing, 102413)

ABSTRACT

A direct way is found to determine the content of ⁹⁰Sr in radioactive waste waters. With the combination of HPGe γ spectrometer and low background NaI(Tl) γ spectrometer, the contents of ⁹⁰Sr in radioactive waste waters arising from CIAE are determined by measuring the intensity of bremsstrahlung produced from ⁹⁰Sr-⁹⁰Y. The measured results of five kinds of waste water are agreeable to those by radiochemical analysis within 10%.

Key words ⁹⁰Sr Bremsstrahlung Radioactive waste water