

# 高放废液中铀、镅含量及总 $\alpha$ 放射性活度的测定

乔盛忠 刘亨军 佟伯庭 范元发  
陈耀中 樊芝草 谈炳美 居崇华

(中国原子能科学研究院, 北京, 102413)

采用经计数堆积、分析器阈值、源自吸收、源底衬对 $\alpha$ 粒子的反散射及系统死时间等计数效率影响校正后的栅网电离室, 测定样品的总 $\alpha$ 放射性活度; 使用Si(Au)半导体 $\alpha$ 谱仪测定铀、镅等核素的 $\alpha$ 放射性的比例; 借助核燃料铀同位素的丰度及一些核数据, 可获得高放废液样品中铀、镅等核素的含量。对于一般高放废液中的总 $\alpha$ 放射性、铀及镅含量测定的不确定度为 $\pm 3\%$ 。

**关键词** 高放废液, 栅网电离室, Si(Au)半导体 $\alpha$ 谱仪, 铀, 镅,  $\alpha$ 放射性。

## 一、引言

高放废液中含有超铀元素及大量的裂变产物和盐类杂质, 这种废液经固化后才能加以处置。通常称 $\alpha$ 放射性超过 $3.7 \times 10^6 \text{Bq/kg}$ 的废物为超铀 $\alpha$ 废物; 低于这个指标的废物属非超铀废物。据悉深埋 $1 \text{ m}^3$ 的超铀 $\alpha$ 废物, 需费用1百万元以上; 而处置 $1 \text{ m}^3$ 的非超铀废物仅需数千元。为了核废液的适当处置, 对其中铀、镅等核素的含量及总 $\alpha$ 放射性活度必须进行准确的测定。

工作中采用栅网电离室谱仪<sup>[1]</sup>及Si(Au)半导体 $\alpha$ 谱仪<sup>[2]</sup>, 测量和计算了高放废液中单位体积内 $\alpha$ 放射性活度及铀、镅等核素的含量<sup>[3,4]</sup>。

## 二、测量装置及样品制备

采用的Si(Au)面垒型高分辨率半导体 $\alpha$ 谱仪, 最佳能量分辨率 $\text{FWHM} = 11.5 \text{ keV}$  (对 $5.486 \text{ MeV}$   $\alpha$ 粒子)。Si(Au)探测器由一个二级半导体致冷器冷却, 以降低电流性噪声。探头室内具有一个可在真空状态下改变6个源位的托源盘, 每个源可在真空状态下, 在 $0.5\text{—}5 \text{ cm}$ 范围内调节源至探测器间的距离, 以获得适当的源计数率。

$\alpha$ 放射性活度的测量采用栅网电离室。它的计数效率已经计数堆积、分析器阈值、源自吸收、源底衬反散射及系统死时间等影响的校正。

实验使用了两种样品源: 一种是用于 $^{241}\text{Am}/\text{Pu}$ 比值测定方法研究的源, 分别为刚进行过

分离和纯化的铀源和镅源。每种样品取一定计数率的溶液(一般为 $1 \times 10^3 \text{Bq}$ )，滴在喷有分散剂的 VYNS 薄膜底衬上进行单一的及混合能谱的测定。另一种是高放废液的实际测量样品源，它是将每种原始废液(均为 0.5 ml 左右)稀释到 10 ml，再用微量取样器取 10  $\mu\text{l}$  溶液滴在喷有分散剂的 VYNS 薄膜底衬上。为了减少源中盐类杂质的含量，有的样品是将所取的 10  $\mu\text{l}$  稀释到 50  $\mu\text{l}$ ，再取 10  $\mu\text{l}$  制成测量源，每种样品制备 5 个平行样品源进行测量。

### 三、实验方法及结果

#### 1. 铀源中 $^{238}\text{Pu}/\text{Pu}$ $\alpha$ 放射性比值的测定

堆照射产生的铀，由于靶燃料及辐照深度的不同，铀产品中 $^{238}\text{Pu}$ 的含量也不同，为了测定 $^{238}\text{Pu}$ 在铀中的丰度，首先用1个 $^{238}\text{Pu}$ 源在多道分析器上测定能量在0—5.155 MeV范围的计数与能量在0—5.486 MeV范围的计数比值，由于0—5.155 MeV能区处于 $^{238}\text{Pu}$   $\alpha$ 能谱的低能谱尾区，因此上述比值也就是 $^{238}\text{Pu}$   $\alpha$ 低能谱尾计数与 $^{238}\text{Pu}$ 总计数的比值。这一比值与源的均匀性和厚度引起的自吸收有关，也与探测器的能量分辨率、准直条件及源至探测器间的距离等因素有关。

用一生产堆元件经严格纯化的铀产品样品测单一的及混合的  $\alpha$  能谱，由于加入的 $^{238}\text{Pu}$ 和铀样品中的 $^{238}\text{Pu}$ 均是已知的，故可分别由加入量及实验谱计算出 $^{238}\text{Pu}/\text{Pu}$ 的  $\alpha$ 放射性比值。计算合成谱中 $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$   $\alpha$ 放射性比值  $k_{\alpha}$  为

$$k_{\alpha} = \frac{A}{B - \frac{AC'}{B + \frac{AD}{C}}} \quad (1)$$

$A$  为 $^{238}\text{Pu}$ 谱区的  $\alpha$ 放射性计数率； $B$  为 $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ 谱区的  $\alpha$ 放射性计数率； $C$  和  $D$  分别为合成  $\alpha$ 能谱谱尾部分的二个谱区的  $\alpha$ 放射性计数率。在多道分析器上  $A, B, C, D$  谱区的计数率和道数均相同。

#### 2. ( $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ ) $\alpha$ 放射性比值的测定方法

取一个纯铀源和纯镅源，同时放在  $\alpha$  探头室中的托源盘上，首先测量铀源的  $\alpha$  能谱及  $\alpha$  放射性总计数率；第二步在铀源  $\alpha$  能谱基础上继续测量镅源的  $\alpha$  能谱，以获得  $\text{Pu} + \text{Am}$  的混合  $\alpha$  能谱；第三步测量镅源的  $\alpha$  能谱及  $\alpha$  放射性总计数率。

由第一、三步所测定的结果，可直接计算出 $^{241}\text{Am}/\text{Pu}$ 的  $\alpha$ 放射性比值。由第二步所测量的  $\alpha$  能谱采用下式可获得 $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$ 与 $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ 的  $\alpha$ 放射性比值  $k'_{\alpha}$  为

$$k'_{\alpha} = \frac{A'}{B' - \frac{A'C'}{B' + \frac{A'D'}{C'}}} \quad (2)$$

$A'$  为 $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$ 谱区的  $\alpha$ 放射性计数， $B', C', D'$  与  $B, C, D$  相同。由式(2)计算的结果减去铀源中 $^{238}\text{Pu}$ 的含量，获得混合谱中 $^{241}\text{Am}/(^{238}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu})$ 的  $\alpha$ 放射性比值。

### 3. 高放废液钚产品中 $^{238}\text{Pu}/\text{Pu}$ $\alpha$ 放射性比值的测定

高放废液样品经严格的放化分离和纯化后的钚产品,进行 $\alpha$ 能谱测量。并采用式(1)进行 $^{238}\text{Pu}/(^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu})$ 比值的计算,其计算结果与根据生产堆元件钚产品同位素丰度的计算值是一致的。

### 4. 高放废液中 $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/\text{Pu}$ $\alpha$ 放射性比值的测定

采用上述方法对高放废液的样品进行了测定。所测得的一种样品的 $\alpha$ 能谱如图1所示。从图中看出,在高于钚和镅能量区外还存在一个 $\alpha$ 能峰,其能量为6.115 MeV。显然是废液中存在少量的 $^{242}\text{Cm}$ ,它的 $\alpha$ 放射性比值可准确地计算。由式(2)计算出 $^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$ 与 $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性的比值,再由钚产品样品所测得的 $^{238}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性比值,便可从 $^{241}\text{Am}+^{238}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性计数中扣除 $^{238}\text{Pu}$ 的贡献,并将其扣除计数加入钚的计数中,这样就获得钚、镅和其它 $\alpha$ 放射性的百分数。

### 5. 高放废液样品的 $\alpha$ 放射性活度的测定

将制备好的高放废液样品源,采用栅网电离室进行 $\alpha$ 放射性活度的测定。测得计数率 $C$ ,再用式(3)进行 $\alpha$ 放射性活度 $I$ 的计算,

$$I = 2C\eta/F \quad (3)$$

式中: $F$ 为影响电离室效率的总校正因子; $\eta$ 为样品源的稀释倍数;系数2是将计数由 $2\pi$ 换算成 $4\pi$ 而得。每种样品测定5个平行样品源,取其平均值为每种样品单位体积中的放射性活度。

### 6. 纯化后样品钚 $\alpha$ 放射性比值及钚含量的计算

根据实验所测得的 $\alpha$ 能谱和式(1)可计算出 $k_u$ ,由此获得 $^{238}\text{Pu}$ 与总钚 $\alpha$ 放射性的比值为

$$^{238}\text{Pu}/\text{Pu} = \frac{k_u}{(1 + k_u)}$$

再依据生产堆元件钚同位素丰度计算得的 $\alpha$ 放射性比值为 $b_{239}, b_{240}, b_{241}$ 。高放纯钚废液中各核素的 $\alpha$ 放射性活度为:

$$I_{238} = I_{\text{Pu}} \cdot k_u / (1 + k_u) \quad I_{239} = I_{\text{Pu}} \cdot b_{239}$$

$$I_{240} = I_{\text{Pu}} \cdot b_{240} \quad I_{241} = I_{\text{Pu}} \cdot b_{241}$$

故样品中总的钚含量为:

$$W_{\text{Pu}} = W_{238} + W_{239} + W_{240} + W_{241} \quad W_{238} = I_{238}/S_{238}$$

$$W_{239} = I_{239}/S_{239} \quad W_{240} = I_{240}/S_{240} \quad W_{241} = I_{241}/[S_{241}/\epsilon_{241}^{\alpha}]$$

$S_{238}, S_{239}, S_{240}, S_{241}$ 分别为相应核素的 $\alpha$ 或 $\beta$ 比放射性; $\epsilon_{241}^{\alpha}$ 为 $^{241}\text{Pu}$   $\alpha$ 衰变比率。

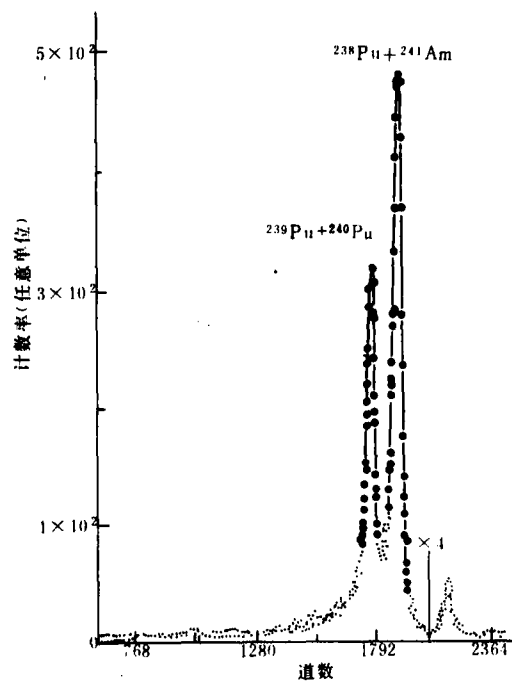


图1 高放废液样品的 $\alpha$ 能谱

Fig. 1 The  $\alpha$  spectrum of the sample for high-level liquid waste

7. 未分离和纯化的高放废液样品中钚、  
<sup>241</sup>Am α 放射性比值及含量的计算

根据测得的高放废液的 α 能谱及式(2)可算出  $k'_a$ 。设样品的总 α 放射性强度为  $I$ ，则 <sup>238</sup>Pu + <sup>241</sup>Am 的 α 放射性活度为

$$I_{238+241} = I \cdot k'_a / (1 + k'_a)$$

<sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu + <sup>241</sup>Pu 的 α 放射性活度为

$$I_{239+240+241} = I - I \cdot k'_a / (1 + k'_a)$$

那么，高放废液中钚的总 α 放射性活度  $I'_{Pu}$  为

$$I'_{Pu} = [I - I \cdot k'_a / (1 + k'_a)] / [I - k_a / (1 + k_a)]$$

$$I'_{238} = I'_{Pu} \cdot k'_a / (1 + k'_a) \quad I'_{239} = I'_{Pu} \cdot b_{239}$$

$$I'_{240} = I'_{Pu} \cdot b_{240} \quad I'_{241} = I'_{Pu} \cdot b_{241}$$

总钚量为

$$W'_{Pu} = I'_{238} / S_{238} + I'_{239} / S_{239} + I'_{240} / S_{240} + I'_{241} / [S_{241} / \epsilon_{241}^2]$$

设  $I_{Am}$  为 <sup>241</sup>Am α 放射性的活度，则

$$I_{Am} = I \cdot k'_a / (1 + k'_a) - I'_{238} = I \cdot k'_a / (1 + k'_a) - I'_{Pu} \cdot k'_a / (1 + k'_a)$$

故 <sup>241</sup>Am 的含量为

$$W_{Am} = [I \cdot k'_a / (1 + k'_a) - I'_{Pu} \cdot k'_a / (1 + k'_a)] / S_{Am}$$

式中， $S_{Am}$  为 <sup>241</sup>Am 的 α 比放射性。高放废液中各核素的 α 放射性比值及含量的计算结果列在表1中。

表1 高放废液的测量及计算结果

Table 1 Measurement and calculation results of the samples for high-level liquid waste

样品号	总 α 放射性 /10 <sup>5</sup> Bq·ml <sup>-1</sup>	Pu		<sup>241</sup> Am		其它 α 放射性 比值/%	<sup>238</sup> Pu/Pu α 放射性比值/%
		α 放射性比值 /%	含 量 /μg·ml <sup>-1</sup>	α 放射性比值 /%	含 量 /μg·ml <sup>-1</sup>		
1	1.03	45.75	17.63	53.89	0.46	0.36	2.20
	1.14		19.54		0.51		
2	1.98	56.96	41.99	42.40	0.70	0.64	2.41
	1.98		42.01		0.70		
3	2.79	33.23	34.31	65.99	1.52	0.78	3.19
	2.70		33.16		1.47		
4	3.58	27.68	36.60	71.81	2.12	0.51	3.21
	3.72		38.07		2.21		
5	4.99	19.63	36.24	77.77	3.21	2.60	3.21
	5.20		37.69		3.34		

## 8. 实验误差与结论

(1) **取样误差** 原始高放废液的取样误差约为 $\pm 1\%$ ; 取样管取样操作等系统误差约为 $\pm 1.5\%$ 。

(2) **测量误差** 测量装置计数统计及稳定性的误差约为 $\pm 1\%$ ; 电离室计数效率影响校正误差约为 $\pm 1\%$ ;  $\alpha$ 放射性比值测定误差约为 $\pm 1\%$ 。

总的均方根误差为 $\pm 2.5\%$ , 加上未考虑到的因素引起的误差, 则对于高放废液样品测量的不确定度为 $\pm 3\%$ 。若采用薄 $\alpha$ 源及适当的测量计数率, 不确定度可达 $\pm 1.5\%$ 。 $\alpha$ 放射性比值的测定方法还可用于其它废液或核燃料中钚、镅和铈的测定。

### 参 考 文 献

- [1] 乔盛忠、刘亨军、藤以珍, 核电子学与探测技术, (3), 189(1985)。  
[2] Aggarwal, S. K., Chitambar, S. A., Kavimandan, V. D. et al., *Radiochimica Acta*, 27(1), 1(1980).  
[3] Shihab-Eldin, A. A., Jardine, L. J., Tuli, J. K. et al., *Table of Isotopes (Seventh Edition)*, John Wiley and Sons, INC., New York, 1978, p. 1457.  
[4] Browne, E., Firestone, R. B., *Table of Radioactive Isotopes*, John Wiley and Sons, New York, 1986, p. 239-2.

(编辑部收到日期: 1992年1月27日)

## DETERMINATION OF Pu, Am AND TOTAL $\alpha$ ACTIVITY FOR HIGH-LEVEL LIQUID WASTE

QIAO SHENGZHONG    LIU HENGJUN    TONG BOTING    FAN YUANFA  
CHEN YAOZHONG    FAN ZHICAO    TAN BINGMEI    JU CHONGHUA

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

### ABSTRACT

The relative contents and absolute contents of Pu and Am, and total  $\alpha$  activity for high-level liquid waste are measured by a Si(Au)  $\alpha$  spectrometer and a grid ionization chamber. The measurement uncertainty is  $\pm 3\%$ .

**Key words** High-level liquid waste, Grid ionization chamber, Si(Au) $\alpha$  spectrometer, Pu, Am,  $\alpha$  activity.