

用液体闪烁计数法测定 ^{147}Pm

陈佩贤 王效英

(中国原子能科学研究院, 北京, 102413)

用液体闪烁计数法测量含 α -羟基异丁酸、 HNO_3 和 ^{241}Am 等杂质的 ^{147}Pm 。研究了闪烁液用量、 α -羟基异丁酸和 HNO_3 存在量对 ^{147}Pm 测量的影响及有 ^{241}Am 存在时的干扰情况;对 ^{147}Pm 的仪器探测效率进行了刻度。在所选定的测量 ^{147}Pm 条件下,被同时记录的 ^{241}Am 不超过 ^{241}Am 总计数的1%。方法还实测了核燃料后处理高放废液中经化学分离后的 ^{147}Pm 的绝对含量,相对标准偏差 $<1\%$ 。

关键词 钷, 液体闪烁计数法。

一、前言

为了对辐照后的核燃料溶解液和高放废液中 ^{147}Pm 的含量进行绝对测量,将与铀、钚及其裂变产物分离后的稀土组核素通过高效液相色谱柱,用 α -羟基异丁酸(α -HIBA)进行淋洗分离,得到 ^{147}Pm 流分^[1]。在该流分中含有高达0.5 mol/l的 α -HIBA和少量的 HNO_3 。Am也可能部分地收集在此流分中。为此,要寻找一个合适的测量方法来测定 ^{147}Pm 的含量。

已知液体闪烁计数法灵敏度高而且制源手续简便,已用以测量含水量 $<20\%$ 的水溶液样品和某些含盐样品中的Pu、Cm和Cf^[2,3]。本文初步进行了一些条件实验,明确用液体闪烁计数法可不经化学分离除去 α -HIBA和 HNO_3 等而直接对 ^{147}Pm 进行 β 测量。如果样品中有 ^{241}Am 存在,则可选择一定的测定阈值使两者被同时测量,互相干扰仅 $<1\%$ 。

二、实验

1. 主要试剂和仪器

闪烁液:4g PPO(2,5-二苯基噁唑)和0.25g POPOP(1,4-[双-(5-苯基噁唑-2)]苯)及75g 萘溶于500ml 二氧六环溶液中。

^{147}Pm , ^{241}Am , ^{60}Co 示踪剂均为本院自制溶液。

YS-A型液体闪烁计数器,天津医疗电子仪器厂制造。测量小瓶为10ml 体积玻璃瓶。 1×10^{-5} 分析天平,上海分析仪器厂制造。

2. 实验方法

(1)每次测量前用 ^{14}C 和 ^3H 标准源检测仪器。

(2)在测量瓶中加入一定量的闪烁液、不同量的 α -HIBA、 HNO_3 和 ^{147}Pm (或 ^{241}Am) 示踪剂, 摇匀后在各阈值范围内进行测量计数。

三、结果与讨论

1. ^{147}Pm β 谱和 ^{241}Am α 谱的测定

图 1 给出了在不同介质下测得的 ^{147}Pm β 能谱图。由图可见 ^{147}Pm 只有一个单一能峰。在有 HNO_3 或 α -HIBA 存在时, 由于淬灭作用, 使 β 粒子能量略有下降, 能谱峰位左移且变窄了。

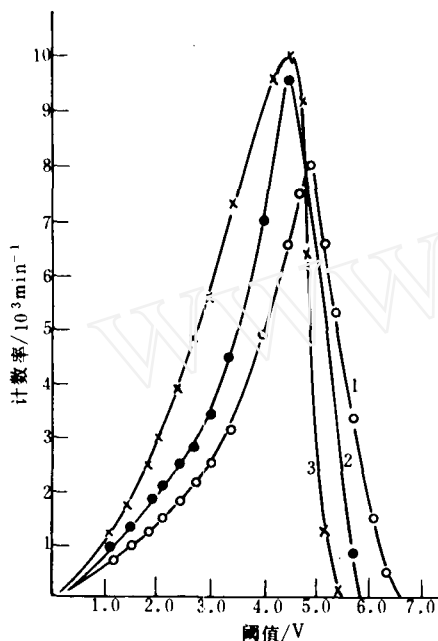


图 1 ^{147}Pm 的 β 能谱图

Fig. 1 Liquid scintillation spectrum of ^{147}Pm

1 3.5 ml 闪烁液-0.02 ml 0.2 mol/l HNO_3 ; 2 3.5 ml 闪烁液-0.5 ml 0.5 mol/l α -HIBA; 3 3.5 ml 闪烁液-0.5 ml 0.2 mol/l HNO_3 。

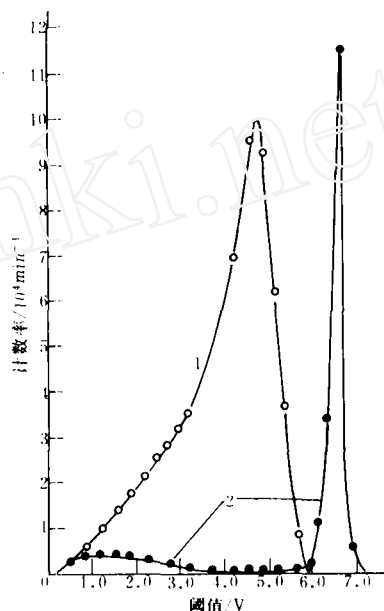


图 2 α -HIBA 存在下 ^{147}Pm 和 ^{241}Am 能谱图

Fig. 2 ^{147}Pm and ^{241}Am liquid scintillation spectra in the presence of α -HIBA

1 ^{147}Pm ; 2 ^{241}Am 。条件: 3.5 ml 闪烁液-0.5 ml 0.5 mol/l α -HIBA

图 2 和 3 分别给出了有 α -HIBA 和 HNO_3 存在时测得的 ^{147}Pm β 谱图和 ^{241}Am α 谱。由谱图可见, 在这些介质条件下, ^{147}Pm 和 ^{241}Am 的峰值分别在 4.5 和 6.7V 处, 交叉很小, 在样品中 ^{147}Pm 和 ^{241}Am 的放射性活度相当时, 可同时分别被测定。

2. 闪烁液用量的影响

实验表明, 含 0.5 ml 0.2 mol/l HNO_3 的样品, 若加入闪烁液不足 3.0 ml, 会因出现混浊而无法进行测量。表 1 列出了加入 3.10—7.00 ml 不同量的闪烁液, 在阈值为 1.4—5.35V 时的测量结果。由表可见, 闪烁液的加入量对 ^{147}Pm 的探测效率是有影响的, 选定 3.5 ml, 既可保证

测量液不混浊又可获得较高的探测效率。

表 1 闪烁液量对¹⁴⁷Pm 测量的影响

Table 1 Effect of applied amount of scintilliquid on the measurement of ¹⁴⁷Pm

闪烁液量/ml	3.10	3.50	4.00	5.00	6.00	7.00
计数率/min ⁻¹	61615	58658	55222	47866	46710	44869
探测效率/%	78.37	74.61	70.24	60.88	59.41	57.07

3. α-HIBA 存在量和取样体积的影响

表 2 所列结果还表明,α-HIBA 在测量液中的含量对测量也有影响。同时,在实际测量时,由于取样体积要根据¹⁴⁷Pm 活度大小而异,在取样体积变化时,测量液中 α-HIBA 和水的含量都会变化,实验表明,在取样体积≤0.5 ml 时,加入 3.5 ml 闪烁液是合适的,但当取样体积增大到 0.7、0.9 和 1.0 ml 时,闪烁液量分别要加大到 4.0、5.0 和 5.5 ml 才能使测量液不致混浊。

表 2 α-HIBA 含量的影响(测定阈:1.4—5.35V)

Table 2 Effect of amount of α-HIBA on the measurement of ¹⁴⁷Pm

测量液中 α-HIBA 的含量/mmol	0	0.10	0.25	0.50
每 mg 示踪液测得 ¹⁴⁷ Pm 计数率/min ⁻¹	78621	9586	10395	10928

4. HNO₃ 含量的影响

由图 4 可见随着测量液中 HNO₃ 含量的增加,¹⁴⁷Pm 的计数率直线下降。这是因 HNO₃ 本身是淬灭物质所致。

5. ²⁴¹Am 的存在对¹⁴⁷Pm 测量的影响

实验结果表明有 HNO₃ 存在时,于 1.4—5.35V 阈值内测得¹⁴⁷Pm 和²⁴¹Am 的计数率分别占其总计数率的 98.8% 和 0.16%;在 5.35—7.4V 阈值内,¹⁴⁷Pm 和²⁴¹Am 的计数率分别为其总计数率的 0.77% 和 99.2%。因此当样品中¹⁴⁷Pm 和²⁴¹Am 的活度相当时,完全可以同时测量,互相干扰<1%。在有 α-HIBA 存在时,在 1.4—5.35V 内测得¹⁴⁷Pm 和²⁴¹Am 的计数率分别占其总计数率的 87.4% 和 0.85%,²⁴¹Am 不干扰¹⁴⁷Pm 的测定。而在此介质条件下若要测量²⁴¹Am 则仍可选用 6.0—7.4V 为测定阈值(此时²⁴¹Am 的计数率占总计数率的 99.3%,¹⁴⁷Pm 的干扰可忽

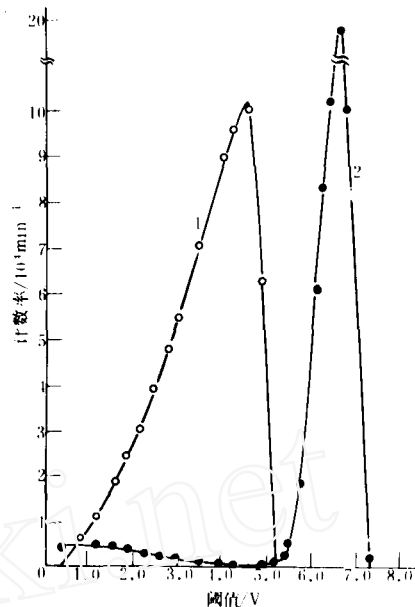


图 3 HNO₃ 存在下¹⁴⁷Pm 和²⁴¹Am 能谱图

Fig. 3 ¹⁴⁷Pm and ²⁴¹Am liquid scintillation spectra in the presence of HNO₃

1——¹⁴⁷Pm; 2——²⁴¹Am。条件:3.5 ml 闪烁液-0.5 ml 0.5mol/l HNO₃

略。)

6. ^{147}Pm 测量条件的选择

根据条件实验选择液体闪烁计数法测量 ^{147}Pm 的条件是:测定阈值 1.4—5.35V,介质为 0.5 mol/l α -HIBA 或 5 mol/l HNO_3 的 ≤ 0.5 ml 的样品以及介质为 0.5 mol/l α -HIBA-0.2 mol/l HNO_3 的 0.1 ml 样品,可加入 3.5 ml 闪烁液。若 α -HIBA 含量增大至 0.7、0.9 和 1.0 ml 时闪烁液的用量应相应增至 4.0、5.0 和 5.5 ml。应特别注意的是测量样品时的测量条件及测量液中的成分和闪烁液量等都要控制与刻度仪器的探测效率时的条件一致,才能获得准确的绝对含量。

7. 仪器探测效率的刻度

为获得样品中 ^{147}Pm 的绝对含量,必须对仪器的探测效率进行刻度。用经鉴定纯度合格的 ^{147}Pm 和 ^{60}Co 示踪液,同时准确称取适当量制备 3 组源。第一组是在测量小瓶中加入适量的 ^{147}Pm 、不同量的 α -HIBA、 HNO_3 和相应量的闪烁液,充分摇匀后在液体闪烁计数器上测量 1.4—5.35V 阈值内的计数率。连续测 3d 取平均值求得该单位质量示踪液的 ^{147}Pm 的计数率($\text{min}^{-1} \cdot \text{mg}^{-1}$)。另两组源是 $^{147}\text{Pm} + ^{60}\text{Co}$ 和单纯 ^{60}Co 薄膜源,用作 4π - γ 符合测量装置上 ^{147}Pm 的绝对测量。应用 ^{60}Co 是为了作 ^{147}Pm 4π 测量时的吸收校正。由测量结果求得该单位质量示踪液的 ^{147}Pm 的比活度(Bq/mg)。单位质量计数率与比活度之比值即为仪器探测效率。

8. 高放废液样品的测定

用本法已对 12 个高放废液样品中 ^{147}Pm 的含量进行了测定。直接从含 ^{147}Pm 的洗脱液中取样制源,按刻度仪器时的条件测量阈值为 1.4—5.35V 的 ^{147}Pm 的计数率,用相应的探测效率进行校正得到 ^{147}Pm 的活度。结果表明从制源至测量,其相对标准偏差 $< 1\%$ 。

四、小 结

1. 加入适当量的 PPO-POPOP-萘-二氧六环闪烁液可在液体计数器上直接测定含 α -羟基异丁酸和 HNO_3 的 ^{147}Pm 样品,无需进行化学分离除盐,制源方法简便易行。

2. 对 ^{147}Pm 和 ^{241}Am 共存的 HNO_3 或 α -HIBA 介质的样品,只要两者的放射性活度相当,可选择在 1.4—5.35V 阈值下测量 ^{147}Pm ,在 6.0—7.4V 阈值下测量 ^{241}Am ,两者可同时测定,互相干扰 $< 1\%$ 。

3. α -HIBA 和 HNO_3 的存在量及闪烁液的加入量对 ^{147}Pm 的探测效率均有影响。因此,在测量真实样品时,必须根据实际情况选择用量,以控制测量液的成份尽量与刻度仪器时的条件一致,方能获得准确的绝对含量。

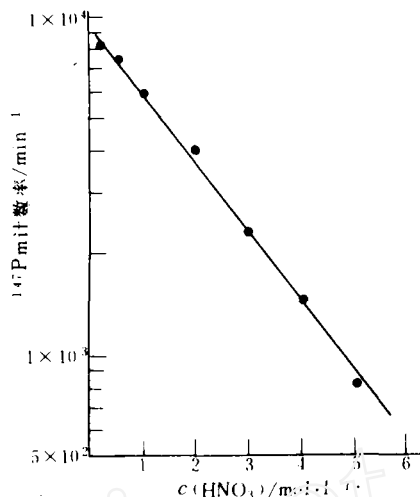


图 4 测量液中 HNO_3 浓度的影响

Fig. 4 Effect of HNO_3 concentration in sample on measurement of ^{147}Pm

4. 本法在对高放废液中 ^{147}Pm 测量的结果表明,测量方法的相对标准偏差 $<1\%$ 。
 4π 绝对测量工作由吕峰同志完成,谨致谢忱。

参 考 文 献

- [1] 张丕禄,高放废液 IAW 中 ^{147}Pm 的测定,中国原子能科学研究院资料,1988 年。
[2] 中国科学院生物物理研究所《液闪》编译组编译,液体闪烁计数及其在生物学中的应用,北京,科学出版社,1979 年第 51 页。
[3] 范元发等,原子能科学技术,(3),320(1985)。

(编辑部收到日期:1990 年 2 月 26 日)

THE DETERMINATION OF ^{147}Pm BY LIQUID-SCINTILLATION COUNTING TECHNIQUE

CHEN PEIXIAN WANG XIAOYING

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

ABSTRACT

The method of measuring β particle of ^{147}Pm directly in the solution which contains α -hydroxy isobutanoic acid (α -HIBA), HNO_3 and ^{241}Am is described in this report. The effect of scintilliquid (PPO-POPOP-naphthalene dioxane) and α -HIBA and HNO_3 on the measurement of ^{147}Pm is studied. The effect of ^{241}Am on the measurement of ^{147}Pm is also studied. Relative counting efficiency in the measurement of ^{147}Pm for several measured solution is determined. If the activity of ^{147}Pm and ^{241}Am is about the same in the sample, they can be measured at a threshold of 1.40—5.35 V and 6.00—7.40 V respectively and interference is smaller than 1%. Absolute content of ^{147}Pm in 12 samples of high-level liquid waste was measured by this method. The results are satisfactory. The relative standard deviation of measurement for the same kind of samples is $<1\%$.

Key words Promethium, Liquid-scintillation counting technique.