

# 用萃取液闪 $\alpha$ 谱分析法测定样品中的钍铀含量

何蔚瑜 李易好

(中国科学院上海原子核研究所 上海 201800)

**摘要** 介绍了采用萃取液闪与 $\alpha$ 谱分析相结合的方法来测定样品中的钍铀含量。结果表明:该法制样简便,对 $\alpha$ 粒子的探测效率为98%,分析误差小于 $\pm 5\%$ ,本底计数小于10cpm,最小可探测的样品量为5mg/L。

**关键词** 萃取,液闪, $\alpha$ 谱分析,钍,铀

## 1 原 理

液闪技术用于 $\alpha$ 核素测量虽具有探测效率高、制源简便等优点,但因 $\alpha$ 粒子的相对光产额低而存在本底高、分辨率差(一般 $> 650\text{keV}$ )等问题<sup>[1]</sup>。

在钍铀核燃料后处理过程中测定废液样品中钍铀含量时,为了提高液闪的探测效率及简化样品制备过程,我们采用了萃取液闪与 $\alpha$ 谱分析相结合的方法,在闪烁液中分别加入萃取剂P350(甲基磷酸二甲酯)及P204(二(2-乙基己基)磷酸酯)<sup>[2]</sup>。样品中的钍铀与萃取剂形成络合物而溶于闪烁液。利用这两种萃取剂对钍铀的不同萃取率与液闪谱仪测得的 $\alpha$ 能谱中峰面积的关系,解谱方程式获得样品中钍铀的含量。解谱方程式可如下表示:

$$\begin{cases} N = AS + CT \\ M = BS + DT \end{cases} \quad (1)$$

$$S = (N - CT)/A \quad (2)$$

$$T = (BN - MA)/(BC - DA) \quad (3)$$

式中,  $A$ 、 $C$ 分别为钍铀在P350-甲苯闪烁液中获得的峰面积( $\times 10^3\text{cpm/g}$ ),  $B$ 、 $D$ 分别为钍铀在P204-甲苯闪烁液中获得的峰面积( $\times 10^3\text{cpm/g}$ ),  $A$ 、 $B$ 、 $C$ 、 $D$ 可由已知量的钍铀在某一酸度下进行的实验中测得,  $S$ 、 $T$ 分别为钍铀的浓度(g/L),  $N$ 、 $M$ 分别为待测样品在P350及P204-甲苯闪烁液中获得的峰面积( $\times 10^3\text{cpm/L}$ )。

图1为高放废液(1AW)样品在P350-甲苯闪烁液中测得的钍铀 $\alpha$ 能谱图,其中98%以上是铀。图2为高放废液(1AW)样品在P240甲苯闪烁液中获得的钍铀 $\alpha$ 能谱图,其中90%左右是钍。

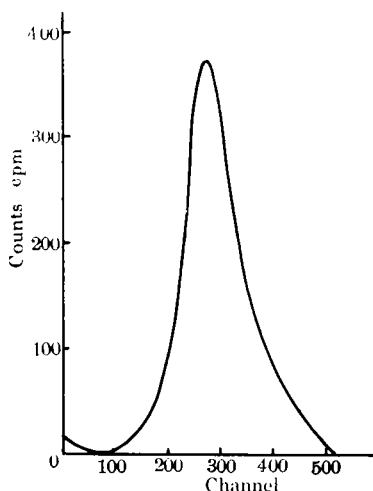


图1 高放废液(1AW)样品在P350-甲苯闪烁液中的钍铀 $\alpha$ 能谱图

Fig.1 P350-liquid scintillation  $\alpha$  energy spectrum for Th-U in high activity waste solution sample

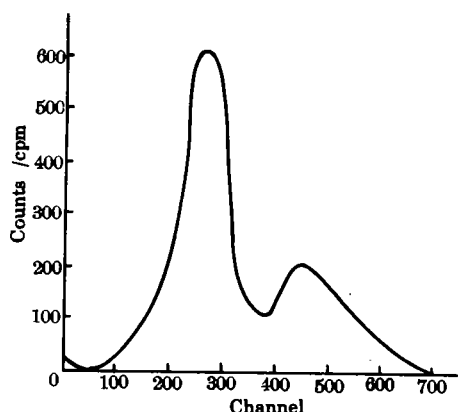


图2 高放废液(1AW)样品在P204-甲苯闪烁液中  
的钍铀 $\alpha$ 能谱图

Fig.2 P204-liquid scintillation  $\alpha$  energy  
spectrum for Th-U in high activity waste  
solution sample

当样品中含有较多其它的 $\alpha$ 粒子或低能 $\beta$ 粒子的核素干扰时,待测样品先萃取后再取有机相加入到含有闪烁液的闪烁瓶中测量。

### 3 结 果

用本方法测定了钍铀核燃料后处理溶剂萃取过程中A槽料液(1AF)及水相废液(1AW)中的钍铀含量,结果见表1及表2。表中1AF的编号代表三次料液的配制,1AW的编号代表在不同后处理条件下得到的水相废液。

表1 料液1AF中钍铀含量的测定

Table 1 Determination of Th-U in aqueous solution 1AF

$\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$

| 样品编号<br>Sample No. | Th          |              |           | U           |              |           |
|--------------------|-------------|--------------|-----------|-------------|--------------|-----------|
|                    | 本方法         | 化学法          | 偏差/%      | 本方法         | 化学法          | 偏差/%      |
|                    | This method | Chem. method | Deviation | This method | Chem. method | Deviation |
| 1AF(I)             | 222.3       | 217.2        | 2.3       | 22.75       | 23.47        | -3.1      |
| 1AF(II)            | 238.7       | 232.7        | 2.5       | 22.99       | 22.75        | 1.0       |
| 1AF(III)           | 243.6       | 249.4        | -2.0      | 24.75       | 23.63        | 4.7       |

表2 废液1AW中钍铀含量的测定

Table 2 Determination of Th-U in waste solution 1AW

$\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$

| 样品编号<br>Sample No. | Th          |              |           | U           |              |           |
|--------------------|-------------|--------------|-----------|-------------|--------------|-----------|
|                    | 本方法         | 化学法          | 偏差/%      | 本方法         | 化学法          | 偏差/%      |
|                    | This method | Chem. method | Deviation | This method | Chem. method | Deviation |
| 1AW-1              | 87.2        | 89.3         | -2.4      | 7.1         | 7.3          | -2.7      |
| 1AW-2              | 122.0       | 125.0        | -2.4      | 15.7        | 15.0         | 4.7       |
| 1AW-3              | 73.7        | 78.3         | -5.9      | 17.0        | 17.5         | -2.8      |
| 1AW-4              | 269.7       | 279.6        | -3.5      | 15.8        | 16.7         | -5.4      |
| 1AW-5              | 46.1        | 44.7         | 3.1       | 8.3         | 8.8          | -5.7      |

· 实验结果表明,本方法分析的值与化学分析值比较,它们的偏差为 $\pm 5\%$ 。样品的测量时间为5—10min。

## 4 讨 论

(1) 我们曾试验了五种不同的闪烁液体系对铀的探测效率和脉冲高度的影响。特别试验了PPO-POPOP-甲苯体系加萘的影响。在某些实验中加萘可提高闪烁液的抗化学淬灭性能,但本实验的结果表明影响不大。这可能由于萃取液闪本身就减少了样品的淬灭。使用本实验的甲苯闪烁液,对 $\alpha$ 粒子的探测效率为98%。本底计数小于10cpm。

(2) 钍铀浓度在10g/L之内,用0.2mol/L P350-甲苯和P204-甲苯萃取剂,它们的萃取率基本达到平衡。

(3) 由于钍铀核燃料后处理的溶剂萃取过程在硝酸体系中进行,所以样品制备也在一定硝酸浓度下进行。实验结果指出,在1-2mol/L样品测试范围内,除P350对钍的萃取率随酸度略有增大外,酸度对萃取率的变化影响不大。

(4) 待测样品是由相同浓度的铀中加入不同浓度的钍及相同浓度的钍中加不了同浓度的铀所组成。测得 $\alpha$ 谱峰面积后再用公式(2)、(3)计算,得到样品中的钍铀含量。结果表明,当钍铀浓度为10-0.01g/L、钍铀比为100:1时,将本实验测得的值与化学分析法测得的值作图,它们是通过原点的直线,其偏差为 $\pm 3\%$ (见图3)。

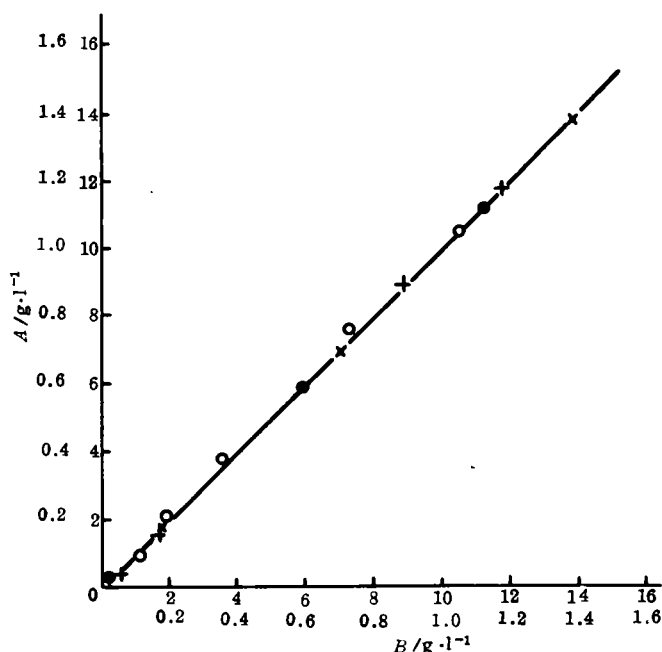


图3 本方法测得值(A)与化学方法测得的值(B)的相关性

×● 1-16g·l<sup>-1</sup>, +○ 0.1-1.6g·l<sup>-1</sup>

Fig.3 The relativity of measured value with this method(A) and chemical method(B)

(5) 在钍铀含量小于50mg/L时,由于取样及测量误差增大使分析误差也增加,但仍落在 $\pm 5\%$ 范围内。

## 参 考 文 献

1 McDowell W J. Appha liquid scintillation: Past, present, future. In: Chin-Tzu Peng et al eds. Liquid

scintillation counting recent applications and development, 1979; 1:315

2 Bouwer E J, Mcklveen J W. Nucl Technol, 1979; 42(1):102

## **The determination of Th and U by the extraction—liquid scintillation— $\alpha$ spectrum analysis method**

He Weiyu    Li Yihao

*(Shanghai Institute of Nuclear Research, Academia Sinica, Shanghai 201800)*

### **Abstract**

A method for assaying Th and U by mixing extraction agent and liquid scintillation combined with  $\alpha$  spectrum analysis was introduced. The method has such advantages as simple sample preparation, high detection efficiency for  $\alpha$  - particles( $\sim 98\%$ ) and low background counting( $<10$  cpm). The analytical error and the detection limit is  $< \pm 5\%$  and 5mg/l respectively.

**Key words** Solvent extraction, Liquid scintillation,  $\alpha$  spectrum analysis, Thorium, Uranium