

## 核烟云中剩余钚-239量的测定

放射化学研究室

(西北核技术研究所)

用质谱和 $\alpha$ 谱分析法测定了核爆炸烟云中的剩余钚-239量( $^{239}\text{Pu}_R$ )。由 $^{238}\text{U}$ 的( $\alpha, \gamma$ )反应并经级联 $\beta$ 衰变而产生的 $^{239}\text{Pu}$ 的干扰,通过直接扣除或线性拟合法予以校正。制定了适合测试要求的放射分析程序,并对低浓度( $\sim 10^{-9}\text{M}$ )的钚稀释剂溶液的贮存方法作了探讨。直接扣除法的误差不大于 $\pm 5\%$ ,但仅适用于 $^{238}\text{U}$ 产生量较少的情况,且应尽早地进行铀、镅、钚的定量分离。线性拟合法的误差一般小于 $\pm 4\%$ ,对于 $^{238}\text{U}$ 产生量较多的情况显得优越。

### 一、原理

核烟云中的 $^{239}\text{Pu}$ 包括两个来源:一是装料燃烧剩余的 $^{239}\text{Pu}_R$ ;另一部份则由反应 $^{238}\text{U}$ ( $n, \gamma$ ) $^{239}\text{U}$ 并经两次 $\beta$ 衰变产生。因此,为了测定 $^{239}\text{Pu}_R$ 量,必须从总量中扣除后一部份的贡献。表示式如下:

$$\begin{aligned} ^{239}\text{Pu}_R &= ^{239}\text{Pu}_t - ^{239}\text{U}_0 \left( 1 - \frac{\lambda_1^9}{\lambda_1^9 - \lambda_2^9} e^{-\lambda_2^9 t} \right) \\ &= ^{239}\text{Pu}_t - ^{239}\text{U}_0 (1 - 1.007 e^{-\lambda_2^9 t}). \end{aligned} \quad (1)$$

式中, $^{239}\text{Pu}_t$ 表示爆后 $t$ 时刻烟云中钚-239总量; $\lambda_1^9, \lambda_2^9$ 分别表示铀-239、镅-239的衰变常数; $^{239}\text{U}_0$ 为爆炸瞬时烟云中铀-239的总量。

由式(1)可知,为了测定 $^{239}\text{Pu}_R$ ,需实验测出 $^{239}\text{Pu}_t$ 和 $^{239}\text{U}_0$ 。关于 $^{239}\text{U}_0$ 的测定方法,已有专文介绍<sup>[1]</sup>。计算 $^{239}\text{Pu}_R$ 的方法有以下两种:

1. **直接扣除法** 从一份分析样品中的 $^{239}\text{Pu}$ 量换算为核烟云中的总量,就必须知道该份样品在整个核烟云中占的份额,即取样系数 $\epsilon$ 。由于烟云中的 $^{237}\text{U}$ 总量( $^{237}\text{U}_0$ )可以准确测定<sup>[1]</sup>,因而我们同时测定一份样品中的钚-239量( $^{239}\text{Pu}_t$ )<sub>s</sub>和铀-237量( $^{237}\text{U}$ )<sub>s</sub>,通过铀-237求取该样的取样系数。此时,式(1)可写成

$$^{239}\text{Pu}_R = \frac{1}{\epsilon} [ (^{239}\text{Pu}_t)_s - ^{239}\text{U}_s (1 - 1.007 e^{-\lambda_2^9 t}) ]$$

1980年5月16日收到。

$$= {}^{237}\text{U}_0 \left[ \frac{({}^{239}\text{Pu}_t)_s}{{}^{237}\text{U}_s} - \frac{{}^{239}\text{U}_s}{{}^{237}\text{U}_s} (1 - 1.007e^{-\lambda_2^9 t}) \right]. \quad (2)$$

式中的  ${}^{239}\text{U}_s/{}^{237}\text{U}_s$  值可以另取样品测得<sup>[1]</sup>。( ${}^{239}\text{Pu}_t$ )<sub>s</sub> 用质谱同位素稀释法测定;  ${}^{237}\text{U}_s$  用  $\gamma$  谱仪测定。

**2. 直接拟合法** 取若干份样品, 分别测定爆炸后不同时刻烟云样品中钚-239 与另一种其含量不随时间变化的钚同位素  $i\text{Pu}$  (如钚-238、钚-241) 的丰度比的变化。此时式(1)可写成

$$\frac{{}^{239}\text{Pu}_t}{i\text{Pu}} = \frac{{}^{239}\text{Pu}_R}{i\text{Pu}} + \frac{{}^{239}\text{U}_0}{i\text{Pu}} (1 - 1.007e^{-\lambda_2^9 t}). \quad (3)$$

令

$$\frac{{}^{239}\text{Pu}_t}{i\text{Pu}} = Y; \quad \frac{{}^{239}\text{Pu}_R}{i\text{Pu}} = b; \quad \frac{{}^{239}\text{U}_0}{i\text{Pu}} = a; \quad 1 - 1.007e^{-\lambda_2^9 t} = x.$$

则可得一直线方程

$$Y = b + ax. \quad (4)$$

用  $\alpha$  谱和质谱分析法测出一系列的  ${}^{239}\text{Pu}_t/i\text{Pu}$  值后, 按最小二乘法处理实测的  $Y$  和  $x$  值, 即可算出截距  $b$  和斜率  $a$ 。由式(3)和(4)得到

$${}^{239}\text{Pu}_R = \frac{b}{a} {}^{239}\text{U}_0. \quad (5)$$

由于丰度比  ${}^{239}\text{Pu}_t/i\text{Pu}$  的测量误差比  ${}^{239}\text{Pu}_t$  的定量测定误差小, 从而提高了  ${}^{239}\text{Pu}_R$  值的准确度。

综上所述,  ${}^{239}\text{Pu}_R$  测定的准确度主要取决于以下几个因素: ① 式(2)、(3)中各量测定的准确度; ② 直到分离钚时刻为止整个样品处理过程中钚和铀、镅的化学损失的不同步程度; ③ 钚与铀、镅的分离时刻准确度; ④ 钚的分离流程对铀和镅的去污程度; ⑤ 钚和铀的分凝程度。

## 二、实验部分

### 1. 试剂与仪器

${}^{242}\text{Pu}$  稀释剂:  ${}^{239}\text{Pu}/{}^{242}\text{Pu}$  (原子比) = 8.656%;  ${}^{238}\text{Pu}$  稀释剂:  ${}^{239}\text{Pu}/{}^{238}\text{Pu}$  (原子比)  $\approx 9\%$ ; 均由中国科学院原子能研究所提供。

阴离子交换树脂: Dowex 1 $\times$ 2 树脂 (100—200目,  $\text{NO}_3^-$ 型)。201 $\times$ 5 树脂 (100—160目,  $\text{NO}_3^-$ 型), 北京铀矿选冶研究所提供。

电沉积装置: 与文献 [2] 同。

质谱计: 西德 CH<sub>4</sub>/I 型表面热电离质谱计 (蒸发带为国产钽带, 电离带为国产铯带)。钚同位素丰度比的测定精度约为  $\pm 0.5\%$ , 准确度以铀丰度测定的准确度为准, 取  $\pm 1.0\%$ 。

$\alpha$  栅网电离室: 分辨率约 1%, 绝对测量误差 1% 左右, 中国科学院原子能研究所产品。

半导体  $\alpha$  谱仪: 由法国 SAIP 谱仪与金硅面垒型  $\alpha$ - 半导体探测器配 Didac-800 型 800 道分析器组成。分辨率约 0.5%, 丰度比测量准确度可达  $\pm 1.5\%$ <sup>[3]</sup>。

## 2. 分析程序

根据上述剩钚测定的特点, 我们拟定了如下放化分析程序。

(1) **样品的分解** 平底烧瓶盛以适量的浓硫酸, 预热至硫酸冒烟 (定量样品需预先准确加入钚释稀剂), 放入收集有烟云样品的过氯乙烯滤布碎块。回流炭化至深棕色后, 加入过氧化氢氧化至呈清液。转至铂蒸发皿中, 用浓硝酸洗涤烧瓶数次, 加氢氟酸赶硅。最后以10毫升 1N HNO<sub>3</sub> 溶液浸取残留物。

我们用模拟样品 (<sup>239</sup>Np, <sup>239</sup>Pu 及 <sup>235</sup>U 指示剂和 1000cm<sup>2</sup> 滤布) 检验样品酸法分解过程中钚和铀、镎化学损失的不同步程度。按酸溶法处理样品, 将所得 10 毫升 1N HNO<sub>3</sub> 样品溶液, 用 NaI(Tl) 多道 γ 谱仪测定其中 <sup>239</sup>Np, 然后分别定量加入天然铀稀释剂和钚-240 稀释剂 [<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu (原子比)=31.76%, 浓度误差±3%]。用质谱同位素稀释法测定该样品溶液中的 <sup>239</sup>Pu 和 <sup>235</sup>U<sup>[4,11]</sup>。结果见表 1。

表 1 样品分解过程中钚和铀、镎化学损失的不同步检验

样品号	1	2	3	4	5	平均值
U/Pu	0.903	0.933	0.989	0.998	1.002	0.965(1±0.040)
Np/Pu	0.931	0.922	0.943	0.943	0.972	0.942(1±0.011)

由表 1 结果可知, 采用酸法分解样品, 铀、镎、钚溶样的损失不同步程度小于 5%, 满足测试要求。

(2) **钚的分离、纯化程序** 利用价态的变化, 进行钚的分离、纯化。在 1N HNO<sub>3</sub> 介质中用氨基磺酸亚铁和亚硝酸钠将钚调节为 Pu(IV)。此时镎为 Np(V), 而铀和镅一般为 U(VI) 和 Am(III)。采用 TTA 萃取法<sup>[5]</sup> 从上述样品溶液中首先提取 Pu(IV), 达到与 U(VI)、Np(V)、Am(III) 定量分离。最后用阴离子交换法纯化 Pu(IV)<sup>[6]</sup>。

一般情况下, 通过以上两步纯化即能满足要求。但当 <sup>239</sup>Np 生成量大时, 为了提高对镎的去污和缩短除镎的时间间隔。我们研究了在 8N HNO<sub>3</sub> 介质中将 Pu(IV) 定量还原到 Pu(III), 而镎为 Np(IV), 通过阴离子交换柱进一步除去镎<sup>[7]</sup>。

钚流程各分离步骤的去污和化学回收率分别见表 2—4。

表 2 流程各分离步骤对铀、镎、镅和总裂片的去污

去污因子 / 分离步骤 \ 核素	U	Np	Am	总裂片*
TTA 萃取 Pu(IV)	10 <sup>3</sup>	5×10 <sup>2</sup>	4×10 <sup>3</sup>	10 <sup>2</sup>
Pu(III) 通过 201×5 树脂柱	—	10 <sup>3</sup>	—	—
201×5 树脂柱纯化 Pu(IV)	2×10 <sup>2</sup>	—	1.6×10 <sup>4</sup>	2×10 <sup>3</sup>

\* 90% 浓缩铀于反应堆辐照后, 冷却四天。

表3 8N HNO<sub>3</sub> 溶液中 Pu(IV) 的还原

Fe(NH <sub>4</sub> SO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> , M	N <sub>2</sub> H <sub>4</sub> ·H <sub>2</sub> O, M	流出液中的Pu(III), %	残留在柱上的Pu(IV), %	备 注
0.016	—	38.0	—	柱内出现气泡
0.025	—	68.2	—	柱内出现气泡
0.012	0.024	57.0	—	
0.016	0.016	74.2	15.9	
0.020	0.020	83.0	10.1	
0.025	0.025	85.1	9.1	
0.032	0.032	82.4	9.8	

由表3的结果可看出,在8N HNO<sub>3</sub>溶液中加入0.020—0.025M Fe(NH<sub>4</sub>SO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>及N<sub>2</sub>H<sub>4</sub>·H<sub>2</sub>O,并在室温下还原数分钟,然后以0.6—0.8毫升/分的流速通过内径0.4厘米,高2—3厘米的201×5树脂柱,用2—3毫升8N HNO<sub>3</sub>溶液淋洗,收集液含有约83%的钷。据文献报道<sup>[7]</sup>,降低酸度可减少Pu(IV)在阴离子交换树脂上的分配系数而提高钷的洗提效率。实验证明,若用3毫升5.5N HNO<sub>3</sub>溶液淋洗,钷的回收率可提高到94%以上,对铈的去污均可达到10<sup>3</sup>。

表4 钷各步纯化程序的回收率

回收率, % 分离步骤	样品号	样品号					平均值
		1	2	3	4	5	
201×5树脂柱纯化Pu(IV)		94.8	96.5	—	—	—	95.7
TTA萃取+阴离子交换		91.5	96.0	91.6	92.6	—	92.9(1±2.3%)
两次离子交换		94.7	90.6	93.1	91.4	91.1	92.2(1±1.8%)

根据上述的实验结果,钷分离、纯化的步骤应为:

①于1N HNO<sub>3</sub>样液中,加入氨基磺酸亚铁溶液(使其[Fe<sup>2+</sup>]=0.02—0.025M),将钷还原为Pu(III),然后在约90℃水浴中,以适量亚硝酸钠将Pu(III)氧化至Pu(IV)。用0.5M TTA-二甲苯萃取Pu(IV)15分钟(V<sub>有</sub>/V<sub>水</sub>=1/2)。萃取停止,记录钷的分离时刻。

②用1N HNO<sub>3</sub>溶液洗涤有机相2—3分钟。

③用8N HNO<sub>3</sub>溶液从有机相中反萃取Pu(IV)10分钟(V<sub>有</sub>/V<sub>水</sub>=1/1)。

④用二甲苯洗涤反萃液2—3分钟。

⑤在上述8N HNO<sub>3</sub>反萃液中同时加入氨基磺酸亚铁和水合肼还原剂(使其浓度均为0.02—0.025M),数分钟后,以0.6—0.8毫升/分的流速通过阴离子交换柱(柱高2—3厘米,柱内径0.4厘米,100—160目201×5树脂),并用少量5.5N HNO<sub>3</sub>溶液淋洗,合并流出液和淋洗液。

⑥用亚硝酸钠在约90℃水浴中氧化上述钷溶液,以约0.25毫升/分的流速通过阴离子交换柱(柱高5—6厘米,柱内径0.2—0.3厘米,100—160目201×5树脂或100—200目Dowex 1×2树脂),分别用8N、5.5N HNO<sub>3</sub>溶液洗涤。最后用6毫升1N HCl或10毫升

0.3N HNO<sub>3</sub>, 在室温下解吸 Pu(IV)。

⑦蒸干解吸液, 用少量浓硝酸破坏微量有机物。用数滴 1N HNO<sub>3</sub> 溶液浸取钚, 并转移到玻璃小样品瓶中, 于红外灯下烘烤至约几微升供质谱分析。或者, 在 pH 2—3 的草酸铵-硝酸钠的体系中, 于 8—10 伏, 200mA/cm<sup>2</sup> 电流密度下电沉积 1 小时<sup>[3]</sup>, 供  $\alpha$  谱分析。

(3) 钚稀释剂的保存和标定方法 根据我们工作特点, 以 4N HNO<sub>3</sub> 溶液配制钚稀释剂, 贮存在聚乙烯瓶中, 并保存在其底部盛有与稀释剂溶液酸度一样的干燥器内。使用时用拉尖的约 10 毫升聚乙烯称量瓶从贮存瓶中吸出一部份, 用后仍保存在干燥器内。据文献报道<sup>[8]</sup>; 用聚乙烯瓶保存放射性溶液, 可减少非放射性杂质的引入, 因而有利于  $\alpha$  测量源的制备。

表 5 聚乙烯称量瓶中钚稀释剂溶液的渗透和挥发性\*

保存天数	1	2	5	15	40
溶液变化量, 毫克	+0.08	+0.26	+0.38	+1.60	+2.20
实验次数	5	10	7	6	3

\* 称量瓶及溶液总重 5—9 克。

由此可见, 在短期保存时间内, 分样瓶中溶液的渗透和挥发损失现象可以忽略。

标定时, 准确称取一定量的钚稀释剂溶液, 直接滴在直径 25 毫米的不锈钢片中部, 室温凉干, 用  $\alpha$  电离室进行绝对测量。

用法国 BNM 公司的钚-239 标准溶液 (误差 0.9%) 检验了上述制源方法及电离室测量

表 6 法国钚-239 标准溶液校对结果

编号	源液重, mg	测量值, dpm	浓度, dpm/mg 溶液	$\Delta\sigma, \%$
1	14.003	21978.4	1567.0	-0.5
2	28.267	44584.9	1576.9	0.1
3	29.715	46905.0	1578.1	0.2
4	85.595	135065.9	1577.6	0.2
平均			1575.0	$\pm 0.33$

表 7 两种钚溶液保存过程中浓度鉴定结果

溶液种类	<sup>239</sup> Pu*	标定年月	1976,7		1977,3		1978,8	
		<sup>239+240</sup> Pu, dpm/mg 溶液	20.77		20.77		20.71	
		标准偏差, %	$\pm 0.6$		$\pm 0.4$		$\pm 0.4$	
溶液种类	<sup>238</sup> Pu	标定年月	1976,6	1977,3	1977,8	1978,1	1978,10	1979,4
		<sup>238</sup> Pu, dpm/mg 溶液	46.66	47.00	46.44	46.79	46.67	46.73
		标准偏差, %	$< \pm 1.0$	$< \pm 1.0$	$< \pm 1.0$	$< \pm 1.0$	$< \pm 1.0$	$< \pm 1.0$

\* <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu (原子比) = 2.795%。

的准确度。检验结果见表6。与标准值(1589.5 dpm/mg 溶液)比较偏低0.9%,但在误差范围以内。

观察了两种钚稀释剂在保存过程中的浓度变化情况,结果见表7。

### 3. 测量方法

(1) **质谱分析** 用质谱计测定样品中 $^{239}\text{Pu}$ 与 $^{241}\text{Pu}$ 的丰度比;或者分别测定未加钚稀释剂和加入钚稀释剂后样品中 $^{242}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}$ 的丰度比,按下列质谱稀释法公式计算样品中 $^{239}\text{Pu}$ 量:

$$^{239}\text{Pu}_s = ^{242}\text{Pu}_d \times \frac{R_d - R_M}{R_M - R_s} \times \frac{242}{R_d \times 239} \quad (6)$$

式中 $^{239}\text{Pu}_s$ 表示待测样品中 $^{239}\text{Pu}$ 的重量; $^{242}\text{Pu}_d$ 表示加入稀释剂中 $^{242}\text{Pu}$ 的重量; $R_d$ 表示 $^{242}\text{Pu}$ 稀释剂中 $^{242}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}$ 的原子比; $R_M$ 表示加入 $^{242}\text{Pu}$ 稀释剂后待测样品中 $^{242}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}$ 的原子比; $R_s$ 表示样品中 $^{242}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}$ 的原子比。

(2)  **$\alpha$ 谱分析** 用半导体 $\alpha$ 谱仪测定样品中 $^{238}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性比值;或者测定加入 $^{238}\text{Pu}$ 或 $^{239}\text{Pu}$ 稀释剂后待测样品中 $^{238}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性比值,按下列 $\alpha$ 稀释法公式计算样品中 $^{239}\text{Pu}$ 量<sup>[3]</sup>:

①当样品中 $^{238}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性比值较小(一般小于10%)时,为

$$^{239+240}\text{Pu}_s = \frac{^{238}\text{Pu}_d}{\alpha_2 - \alpha_1} \quad (7)$$

②若样品中 $^{238}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性比值较大(一般大于100%)时,为

$$^{239+240}\text{Pu}_s = \frac{\alpha_2 - \alpha_3}{\alpha_1 - \alpha_2} \times ^{239+240}\text{Pu}_d \quad (8)$$

式中, $\alpha_1$ 表示样品中 $^{238}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性比值; $\alpha_2$ 表示加入 $^{238}\text{Pu}$ 或 $^{239+240}\text{Pu}$ 稀释剂后待测样品中 $^{238}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性比值; $\alpha_3$ 表示 $^{239+240}\text{Pu}$ 稀释剂中 $^{238}\text{Pu}$ 与 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}$ 的 $\alpha$ 放射性比值; $^{238}\text{Pu}_d$ 、 $^{239+240}\text{Pu}_d$ 分别表示加入 $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}$ 的稀释剂量(dpm); $^{239+240}\text{Pu}_s$ 表示待测样品中 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}$ 的量(dpm)。

## 三、讨 论

### 1. 误差分析

(1) **直接扣除法** 除了核烟云中钚和铀的分凝以及化学操作中钚和铀、镅的不同步损失影响外,由式(2)可知 $^{239}\text{Pu}_R$ 的测试误差主要取决于式中各量的测试误差。

假设以 $^{239}\text{U}_0$ 为取样系数( $\varepsilon$ ),则式(1)可写为

$$^{239}\text{Pu}_R = ^{239}\text{U}_0 \left[ \frac{(^{239}\text{Pu}_t)_s}{^{239}\text{U}_s} - (1 - 1.007e^{-\lambda_2^9 t}) \right] \quad (9)$$

一般说来,烟云中 $^{239}\text{U}_0$ 的分析误差小于3.5%;样品中 $^{239}\text{U}_s$ 及 $t$ 时刻 $^{239}\text{Pu}$ 量的测量误差分别可达到3.0%和2.0%。则由式(9)可知, $\Delta^{239}\text{Pu}_R / ^{239}\text{Pu}_R$ 不大于 $\pm 5.0\%$ ,且随着 $^{239}\text{U}_0$ 量的增加迅速增大。因此,此法比较适用于 $^{239}\text{U}_0 / ^{239}\text{Pu}_R$ 小的情况,并应尽早地使

铀与钚定量分离。

(2)线性拟合法 由式(5)可知,误差主要决定于 $b/a$ 值测量准确度和 $^{239}\text{U}$ 量分析的误差。一般说来,  $\Delta^{239}\text{Pu}_R/^{239}\text{Pu}_R < \pm 4.0\%$ 。若 $^{239}\text{U}$ 量大时, $b$ 值的误差会略增大,但 $a$ 值的误差反而小些。反之,若 $^{239}\text{U}$ 量很小时, $a$ 值的误差可能很大,以至不能由 $b/a$ 直接求 $^{239}\text{Pu}_R$ 。故当 $^{239}\text{U}_0/^{239}\text{Pu}_R$ 较大时,本方法显得优越。

## 2. 通过铀求得取样系数可能带来的误差

核爆炸中的分凝现象是一个普遍存在的问题。铀、钚的物理化学性质有差别,在某些特定爆炸条件下,二者之间发生分凝,但大多数情况下并不明显,不致影响剩钚测定的准确度。

本文由陈忠对、刘国兴执笔。

## 参 考 文 献

- [1] 二十一研究所七室,科技, 2,166(1980)。
- [2] 徐秉森等,科技, 2,106(1986)。
- [3] 李庚卯等,试验与研究, 2,16(1981)。
- [4] 西北核技术研究所,沉降物中微量钚的质谱分析(内部报告)。
- [5] R. A. Schneider et al., HW-53368(1961)。
- [6] Ivan k. Kressin et al., *Anal. Chem.*, 34, 1598(1962)。
- [7] G. A. Burney, DP-689(1962)。
- [8] G. C. Lowenthal et al., *Nucl. Instr. Method*, 112, 367 (1973)。

# THE DETERMINATION OF THE AMOUNT OF RESIDUAL PLUTONIUM-239 IN THE NUCLEAR EXPLOSION DEBRIS

DIVISION OF RADIOCHEMISTRY

(North-Western Institute of Nuclear Technology)

## ABSTRACT

The amount of the residual plutonium-239 in the nuclear explosion debris was determined by mass-spectrometric and alpha-spectrometric analyses. The error caused by the influence of neptunium-239 on the determination of plutonium-239 was corrected by direct subtraction or linear extrapolation. A radiochemical analytical procedure was proposed and a method for storing the plutonium isotopic diluent of very low concentration ( $10^{-9}M$ ) was recommended. An error less than  $\pm 5\%$  could be obtained for the direct subtraction method which is applicable only when the total yield of uranium-239 is small, and when using this method, the uranium and neptunium must be separated from plutonium as early as possible. The error of the linear extrapolation is generally less than  $\pm 4\%$ , and this method is superior to the former one when the total yield of uranium-239 is large.