

简报

## 萃取-液体闪烁计数法测定 $^{241}\text{Am}$

庄永能 梁俊福 王守忠

(清华大学核能技术研究所,北京)

**关键词** 萃取液闪计数法,  $^{241}\text{Am}$ 。

### 一、引言

在 $^{241}\text{Am}$ 的提取和纯化工艺研究时常常需要大量样品测量,虽然 $^{241}\text{Am}$ 可以用 $\gamma$ 能谱法测量,但探测效率低。为保证工艺研究中测量数据的准确性,必须加大放射性量,这给工艺研究人员增加了辐照量。液闪法能达到高的探测效率<sup>[1]</sup>,但是液闪法的缺点在于把干扰核素和淬灭离子同时引入闪烁液,有时会给测量造成困难。萃取-液闪法在一定程度上能克服液闪法的不足,尤其是大大减少水引入闪烁液中,它比液闪法的脉冲幅度和能量分辨率高得多,如图1所示,同时水溶液样品的允许加入量也大大增加(文献[1]和本文有关部分)。实验结果表明,本方法具有简便、快速、准确、探测效率高和水溶液样品允许加入量大的优点。

### 二、实验部分

#### 1. 主要仪器和试剂

双道液体闪烁计数器, FJ-353G型, 国营262厂; pH5-3型, 数字式精密酸度计, 武汉电工仪器厂; 二氧六环, 北京化工厂; 2,5-二苯基噁唑(PPO), 上海试剂一厂; 2-乙基己基磷酸单2-乙基己基酯(P507), 上海试剂四厂; 二(2-乙基己基)磷酸(P204), 实验试剂, 北京化工厂; 加氢煤油, 锦州240号煤油, 使用前经过蒸馏, 取180—220℃馏份;  $^{233}\text{U}$ ,  $^{241}\text{Am}$ , 原子能科学研究院提供;  $^{147}\text{Pm}$ , 美国橡树岭实验室提供; 其它试剂均为分析纯。

#### 2. 测定步骤

把待测核素标准液与 $\text{HNO}_3$ 配成所需的浓度和体积, 放入液闪测量瓶中, 再加入所要求的闪烁液, 在室温下, 用电磁搅拌萃取, 待分相后(必要时用离心分离), 直接置于双道液体闪烁计数器测出微分、积分谱(图2), 分别得出待测核素的蜕变率和脉冲幅度(微分谱峰位处的阈值)。

1987年9月21日收到,

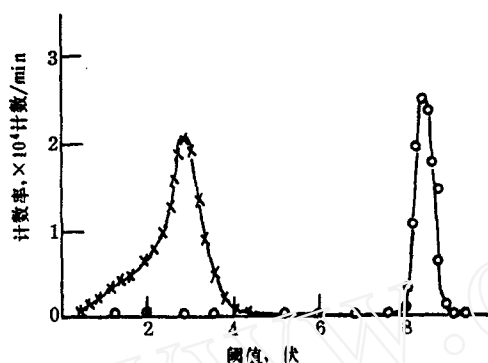


图1 用萃取-液闪法和液闪法测得的 $^{241}\text{Am}$   $\alpha$ 粒子微分谱

×——液闪法; 10ml 4.5g/l PPO-二氧六环, 2ml  $^{241}\text{Am}$ 硝酸溶液 (pH=3.0); ○——萃取-液闪法; 10ml 30% P<sub>507</sub>-4.5g/l PPO-二甲苯, 2ml  $^{241}\text{Am}$ 硝酸溶液 (pH=3.0)。

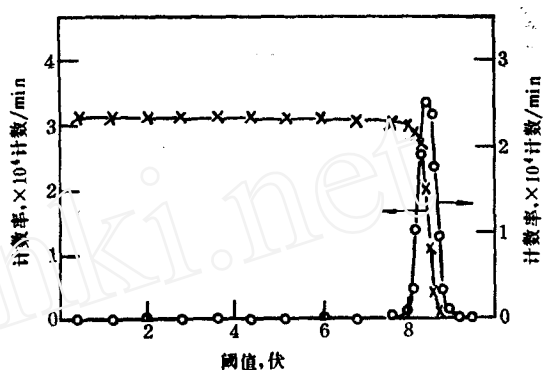


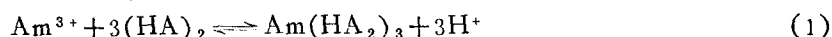
图2 萃取-液闪法测得的 $^{241}\text{Am}$   $\alpha$ 粒子微分、积分谱

×——积分谱曲线; ○——微分谱曲线。10ml 30% P<sub>507</sub>-4.5g/l PPO-二甲苯; 2ml  $^{241}\text{Am}$ 硝酸溶液 (pH=3.0)。

### 三、实验结果与讨论

#### 1. 闪烁液中P<sub>507</sub>浓度与 $^{241}\text{Am}$ 的萃取率和脉冲幅度的关系

2ml  $^{241}\text{Am}$ 硝酸溶液 (pH=3.0), 用10ml不同P<sub>507</sub>浓度-4.5g/l PPO-二甲苯萃取结果表明, P<sub>507</sub>浓度大于15%时,  $^{241}\text{Am}$ 能全被萃取。P<sub>507</sub>萃取Am一般认为按如下机理进行。



从式(1)可知, P<sub>507</sub>浓度增加有利于 $^{241}\text{Am}$ 的萃取。实验还表明, 脉冲幅度随P<sub>507</sub>浓度增加而下降。这主要是P<sub>507</sub>是一种浅黄色的液体, 随浓度的增加颜色淬灭随之增大所致。因此在工作中应根据具体要求选择合适的浓度, 本实验除注明外, 均选用30% P<sub>507</sub>-4.5g/l PPO-二甲苯。

#### 2. 水相pH值与 $^{241}\text{Am}$ 萃取率关系

2ml不同pH值的 $^{241}\text{Am}$ 硝酸溶液用10ml闪烁液萃取。实验结果表明, pH大于2.0时,  $^{241}\text{Am}$ 就能完全被萃取。从式(1)可知, pH提高有利于 $^{241}\text{Am}$ 的萃取, 但是pH过高容易造成某些金属离子(如Fe<sup>3+</sup>)水解, 同时也容易使萃取过程产生乳化, 使分相困难。本实验除注明外均选用pH=3.0。

#### 3. 水相体积与 $^{241}\text{Am}$ 萃取率关系

10ml闪烁液和不同体积的 $^{241}\text{Am}$ 硝酸溶液 (pH=3.0) 于30ml离心管中振荡萃取, 离心分相后, 取有机相测量。实验结果表明, 10ml闪烁液加入10ml水溶液 (pH=3.0),  $^{241}\text{Am}$ 还能定量地被萃取。本实验一般直接在测量瓶(本仪器所用测量瓶体积小于20ml)中用电磁搅拌萃取。因此, 除注明外均加2ml水相。

#### 4. 不同稀释剂对计数率和脉冲幅度影响

我们测定了正十二烷、正庚烷、加氢煤油、甲苯和二甲苯五种稀释剂。结果表明,就计数率而言,五种稀释剂都能满足要求,而脉冲幅度前三者差别不大(均约3伏),但甲苯和二甲苯则比它们高得多(约8伏)。因此需要进行大量的一般 $\alpha$ 粒子测量时,用加氢煤油代替有毒的二甲苯(或甲苯)作稀释剂是可能的,这对测量人员的健康是有益的。

#### 5. 其他放射性核素的干扰

(1) **U, Th, Pa等 $\alpha$ 核素干扰的消除**  $P_{507}$ 萃取U的能力大于Am,利用这一特征可在酸度较高时先定量地萃取U,而Am定量留在水相,再用 $NH_4OH$ 把水相调至 $pH=3.0$ 后,定量萃取Am。分别取2ml 1mol/l  $HNO_3$ 含 $^{233}U$ 和 $^{241}Am$ 溶液,加10ml 闪烁液萃取,结果列入表1。

表1 1mol/l  $HNO_3$ 时 $P_{507}$ 对U, Am的萃取率

样号	$^{233}U$			$^{241}Am$			
	萃前水相总 $^{233}U$ 量, 计数/min	萃后有机相总 $^{233}U$ 量, 计数/min	萃取率, %	萃前水相总 $^{241}Am$ 量, 计数/min	萃后有机相总 $^{241}Am$ 量, 计数/min	萃取率, %	
1	15809	15619	98.8	16064	254	1.6	
2	14895	15104	101.4	15867	150	0.9	
3	14682	14491	98.7	16000	301	1.9	
4	15405	15467	100.3	15945	87	0.5	
5	14900	14528	97.5	16735	119	0.7	
平均萃取率, %			99.3 $\pm$ 1.5	平均萃取率, %			1.1 $\pm$ 0.6

由表1数据说明在1mol/l  $HNO_3$ 下, U被定量地萃入有机相, 而Am则定量留在水相。在 $P_{507}$ -二甲苯硝酸体系中萃取Pa, Th, U的顺序为 $Pa \gg Th > U^{[2]}$ , 因此Pa, Th在1mol/l  $HNO_3$ 下也必然先被定量地萃入有机相。

(2) **能量不太高 $\beta$ 核素干扰的消除** 我们着重研究了 $^{147}Pm(E_{\beta(max)}, 0.2MeV)$ 。由于萃取-液闪法, 大大减少了淬灭物质引入闪烁液, 使得能量分辨率大大提高, 如图3,4所示。从图4可见, 通过选择合适的测量条件, 即使不用复杂的化学分离,  $^{147}Pm$ 的 $\beta$ 干扰也可消除, 这是萃取-液体闪烁法优于液体闪烁法的另一例证。

(3)  **$^{241}Am, ^{233}U, ^{147}Pm$ 混合液中 $^{241}Am$ 的测定** 取2ml 1mol/l  $HNO_3$ 含 $^{241}Am, ^{233}U, ^{147}Pm$ 的混合溶液( $^{241}Am, ^{233}U$ 和 $^{147}Pm$ 含量分别为19943, 20557和20211计数/min), 加10ml 闪烁液于离心管振荡萃取, 离心分离后取有机相测 $^{233}U$ , 水相用 $NH_4OH$ 调至 $pH=3.0$ 后, 再加10ml 闪烁液萃取, 离心分相后, 取有机相测 $^{241}Am$ 和 $^{147}Pm$ , 结果列入表2。

由表2可知 $^{233}U, ^{147}Pm$ 的干扰能有效地消除,  $^{241}Am$ 的测量误差小于3.5%。实际上经简单的化学处理和选择适当的测量条件, 就能同时测定上述三个核素。

$P_{204}$ 萃取情况与 $P_{507}$ 类似, 就不再赘述。只是 $P_{204}$ 的酸性比 $P_{507}$ 更强些, 因此 $P_{204}$ 能在酸性较高的条件下定量萃取 $^{241}Am$ , 如 $pH=1$ 时,  $P_{507}$ 萃取 $^{241}Am$ 的萃取率为6.5%, 而 $P_{204}$ 仍能定量地萃取 $^{241}Am$ 。

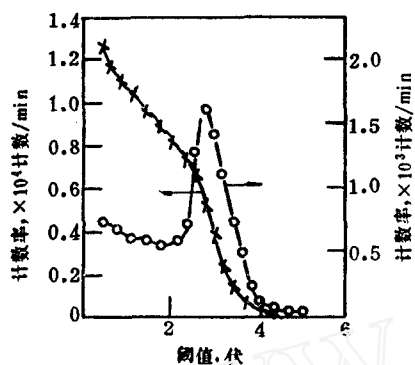


图3 液闪法测得的 $^{241}\text{Am}$   $\alpha$ 粒子和 $^{147}\text{Pm}$   $\beta$ 粒子混合微分、积分谱  
 ×——积分曲线；○——微分曲线；10ml 4.5g/l PPO-二氧六环；2ml含 $^{241}\text{Am}$ 和 $^{147}\text{Pm}$ 的硝酸溶液 (pH=3.0)。

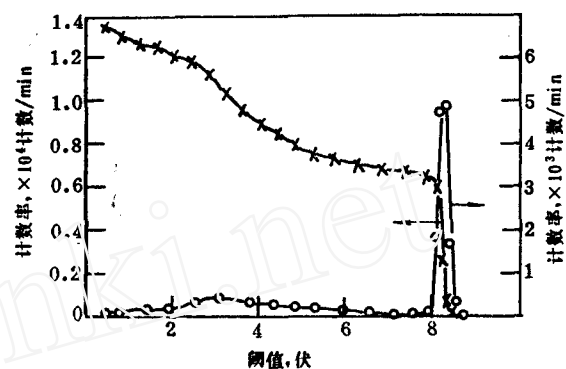


图4 萃取-液闪法测得 $^{241}\text{Am}$   $\alpha$ 粒子和 $^{147}\text{Pm}$   $\beta$ 粒子混合微分、积分谱  
 ×——积分曲线；○——微分曲线；10ml 30% P<sub>507</sub>-4.5/l PPO-二甲苯2ml含 $^{241}\text{Am}$ 和 $^{147}\text{Pm}$ 的硝酸溶液 (pH=3.0)。

表2 混合溶液中 $^{241}\text{Am}$ ,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ 的测定

样号	$^{241}\text{Am}$		$^{233}\text{U}$		$^{147}\text{Pm}$	
	测得值, 计数/min	测得百分数, %	测得值, 计数/min	测得百分数, %	测得值, 计数/min	测得百分数, %
1	19204	96.3	20249	98.5	21282	105.3
2	20422	102.4	19755	96.1	19928	98.6
3	20641	103.5	20598	100.2	19564	96.8
4	19345	97.0	20249	98.5	20373	100.8
5	19444	97.5	21297	103.6	20009	99.0
平均值		99.3±3.3		99.4±2.8		100.1±3.2

#### 四、结 论

本文提出用萃取-液体闪烁法测定 $^{241}\text{Am}$ 的方法具有简便、快速、准确、探测效率高和水溶液样品允许加入量大的特点，当 $2 \times 10^4$ 衰变数/min时，测量误差小于3.5%。

#### 参 考 文 献

- [1] 孟祖贵等, 原子能科学技术, 4, 454 (1982)。
- [2] 庄永能等, 核化学与放射化学, 8 (1), 20 (1986)。
- [3] 王守忠等, 原子能科学技术, 5, 610 (1985)。
- [4] Kimura, K. et al., *Bull. Chem. Soc. Jap.*, 33 (8), 1038 (1960)。

## THE DETERMINATION OF $^{241}\text{Am}$ BY EXTRACTION -LIQUID SCINTILLATION COUNTING METHOD

ZHUANG YONGNENG LIANG JUNFU

WANG SHOUZHONG

*(Institute of Nuclear Energy Technology, Qinghua University, Beijing)*

### ABSTRACT

Several factors which effect the determination of  $^{241}\text{Am}$  by extraction-liquid scintillation counting are discussed. The interference of other  $\alpha$ -particles and low energy  $\beta$ -particles and its elimination are studied. Organic phosphorus extractants such as HDEHP, HEHEHP are used as extractants. Several solvents are tested, and the results indicate that it is feasible to use hydrogenated kerosene instead of xylene (or toluene) as solvent in the determination of  $\alpha$ -particles.

The method is accurate and less labor-consuming. Its detective efficiency is rather high.

**Key words** Extraction-liquid scintillation method,  $^{241}\text{Am}$ .

(上接第55页, Continued from p.55)

-6 (PDB-18C6) in hydrochloric acid medium is studied and it is shown that the adsorption of Tl(I), Au(III), and Cu(II) depends on the particle size of the crown ether resins, hydrochloric acid concentration and amount of the crown ether resins used. The difference in the adsorption behavior of different particle sizes of crown ether resins may be used for separating Tl(I), Au(III), and Cu(II) ions. The best eluant of Tl(I) and Au(III) is 0.4mol/l perchloric acid and 2-ethoxy-ethanol. The recovery for Tl(I) is 82—98.9%. The gold target is bombarded in a 1.2 m cyclotron with 25—27 MeV  $\alpha$ -particle with a cumulative beam intensities of 27 $\mu\text{A}\cdot\text{h}$ , and  $^{199}\text{Tl}$  is separated from the gold target with PDB-18C6.  $\gamma$ -spectrometry has shown that the Tl obtained is  $^{199}\text{Tl}$  of high purity containing only about 0.50%  $^{200}\text{Tl}$ .

**Key words** Thallium, Polymer of methyl aldehyde of dibenzo-18-crown-6, Perchloric acid, 2-Ethoxy-ethanol.