

文章编号:0253-9950(2005)04-0216-04

^{132}I 半衰期的测量

毛国淑, 张生栋, 杨 磊, 丁有钱, 崔安智

中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413

摘要:采用位置接力法和 HPGe 谱仪跟踪测量 ^{132}I 的半衰期。位置之间的交替测量避免了效率刻度, 设定每次跟踪测量的真时间相等, 简化数据处理, 并用平移和迭代两种方法进行数据处理。实验测得 ^{132}I 的半衰期为 $(2.283 \pm 0.002) \text{ h}$, 经检验数据可靠。

关键词: ^{132}I ; 半衰期; 测量

中图分类号: TL241 **文献标识码:** A

^{132}I 是一个短寿命 ($T_{1/2} = 2.28 \text{ h}$) 的裂变核素。在上世纪五六十年代, 文献[1—5]报道了 ^{132}I 半衰期的测量值, 所使用的测量仪器是电离室和闪烁探测器。这些仪器只能探测 ^{132}I 的总或放射性计数, 不能分辨测量源中可能存在的微量放射性杂质。在随后的 40 年内, 没有新的 ^{132}I 半衰期测量数据报道。近年来, 随着核电子学技术的发展, 以及高分辨率的半导体探测器的诞生, 应用新型探测器精确测量 ^{132}I 的半衰期成为可能。

根据核素半衰期的长短, 半衰期的测量方法主要分为两类。对于半衰期长的核素, 可通过测量核素的放射性活度和原子数而得到其半衰期^[6] ($T_{1/2} = \ln 2 N/A$); 对于半衰期短的核素, 则采用跟踪测量核素的放射性活度随时间的变化而得到其半衰期^[7]。由于 ^{132}I 核素的半衰期短, 可采用跟踪测量 ^{132}I 的放射性活度计算 ^{132}I 的半衰期。

1 实验部分

1.1 试剂和仪器

I_2 , 分析纯, 北京益利精细化学品有限公司; HNO_3 和 NaHSO_3 , 分析纯, 北京化学试剂研究所; 浓 HBr 和 KI , 分析纯, 北京北化精细化学品有限责任公司; CCl_4 , 分析纯, 北京世纪红星化工有限公司。

GEM-70200-plus 型 HPGe 谱仪探测系统, 美国 ORTEC 公司产品, 与多道计算机系统连接,

高压 2 300 V, 分辨率对 ^{60}Co 的 1 332 keV 射线的 FWHM 为 2 keV, 相对效率为 70%, 有效体积为 353 cm^3 ; 测量源分别放在距探头 25 cm (高位)、10 cm (中位) 和 1 cm (低位) 的 3 个有机玻璃支架上。

1.2 测量原理

放射性核素 ^{132}I 的衰变服从指数衰减规律, 则测量真时间内的总计数 N 可表示:

$$N = A_t \times t = \int_t^{t+t} A_t dt = \int_t^{t+t} A_0 e^{-\lambda t} dt \\ = A_0 \times e^{-\lambda t} \times (1 - e^{-\lambda t}) / \lambda, \quad (1)$$

$$\text{则: } A_t = A_0 \times e^{-\lambda t} \times (1 - e^{-\lambda t}) / (t), \quad (2)$$

两边取对数:

$$\ln A_t = \ln A_0 + \ln[(1 - e^{-\lambda t}) / (t)] - t_0. \quad (3)$$

式中, A_0 为 ^{132}I 在某一给定时刻的计数率, s^{-1} ; A_t 为 ^{132}I 在测量真时间内的平均计数率, s^{-1} ; t 为跟踪测量的真时间, s ; t_0 为某一给定时刻与测量起始时刻的时间差, s 。

在式(3)中, 设定每次跟踪测量的真时间相等 (900 s), 可以简化数据处理。即 $\ln A_0 + \ln[(1 - e^{-\lambda t}) / (t)]$ 为常数, 于是 $\ln A_t$ 与 t 存在线性关系, 以 $\ln A_t$ 对 t 作图, 可以得到斜率为 $-\lambda$ 的直线, 从而求得 ^{132}I 的半衰期 ($T_{1/2} = \ln 2 / \lambda$)。

1.3 ^{132}I 测量源的制备

^{132}I 是从裂变产物中分离的。将硝酸铀酰溶液 (含 ^{235}U 90%) , 在中子注量率 $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$

收稿日期:2005-01-13; 修订日期:2005-04-25

基金项目:国防预研基金资助项目(4160205)

作者简介:毛国淑(1972—), 女, 重庆璧山人, 助理研究员, 硕士, 核燃料循环与材料专业。

下,在反应堆中辐照 10 min,得到裂变产物溶液,放置一天,取一定量的溶液按以下步骤分离,得到无测量干扰的放化纯 ^{132}I 溶液。

(1)在裂变产物溶液中加入 5 mL 浓 HBr,蒸至近干,重复一次,再加 5 mL 水蒸干。用 0.5 mol/L HNO_3 溶液溶解并转入萃取离心管中,体积为 2.5 mL。

(2)在上述溶液中加入 0.12 mL KI 溶液(含 12 μg KI),将其放置 12 h 后,用 2.5 mL 含有 I_2 的 CCl_4 (100 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 的 I_2) 萃取,振荡 2 min 后静止分相,取出有机相于另一支试管中。

(3)用 2.5 mL 0.5 mol/L HNO_3 溶液洗涤有机相 2 次,弃水相。

(4)用等体积含有 SO_2 的水溶液反萃 ^{132}I ,将含 ^{132}I 的反萃液放于聚乙烯测量管中,盖上塞子,作 ^{132}I 测量用。

1.4 测量方法

将制好的 ^{132}I 液体源,用 HPGe 谱仪跟踪测量,每 900 s 记录一次数据。在高位测量约 6 h;在中位与高位之间交替测量约 2 h;在中位测量约 4 h;在低位与中位之间交替测量约 2 h;在低位测量约 6 h。共跟踪测量 20 h,约为 ^{132}I 的 9 个半衰期。

1.5 数据处理

采用迭代和平移方法分别处理测量计数。

1.5.1 迭代法 以某一位置某一时刻的测量值 A_0 ,按照 $A_t = A_0 e^{-(t-t_0)}$ 和 ^{132}I 半衰期的某一文献值^[8]计算 t 时刻的值 A_t 。与另一位置相同时刻的测量值 A_t' 相比较,求出不同位置之间的计数率比。根据计数率比,将中位和低位的测量数据归一到高位的数据,以 $\ln A_t$ 对 t 作图,求出直线的斜率,得到 ^{132}I 的半衰期。再用得到 ^{132}I 的半衰期进行迭代,直到 ^{132}I 的半衰期不改变为止。

1.5.2 平移法 按照 $\ln A_t$ 的关系式,将高位和中位的数据分别作图,求得直线方程。根据方程计算出 t 时刻的 $\ln A_t$,然后与不同位置同一时刻测得的 A_t' 取对数进行比较,求出不同位置间 $\ln A_t$ 的差值,根据差值将中位和低位的测量数据转换为高位的 $\ln A_t$ 值,以 $\ln A_t$ 对 t 作图求 ^{132}I 的半衰期。

2 结果和讨论

2.1 干扰核素的消除

^{132}I 有两条分支比大的 γ 射线,其能量分别

为 667.7 keV (分支比 98.7%) 和 772.6 keV (分支比 75.61%)^[8],所以实验跟踪这两条 γ 射线。

短半衰期的同质异能素 $^{132\text{m}}\text{I}$ ^[8] (1.387 h) 与 ^{132}I 一样也有 667.7 keV 和 772.6 keV 两条相同的 γ 射线,干扰 γ 射线的测量。但是辐照后铀酰溶液放置一天使 $^{132\text{m}}\text{I}$ 衰变,加之用浓 HBr 蒸发时对碘有很好的去污,这样完全消除了 $^{132\text{m}}\text{I}$ 的干扰。

由于 ^{132}I 的母体 ^{132}Te 能不断生长出 ^{132}I ,所以 ^{132}I 源中不能含有 ^{132}Te ,否则会测量带来大的误差。本文选择的萃取条件对 ^{132}Te 有很好的去污(去污因子 $\text{DF} > 10^3$),保证 ^{132}I 测量源中没有 ^{132}Te 沾污。

2.2 探测效率

对于 ^{132}I 半衰期测量,要求跟踪测量时间长(8~10个半衰期),源的活度相对高。若用同一个源在同一位置跟踪测量,计数率的变化达 10^3 倍,仪器难于适应这样大的变化,可以用源接力或位置接力来克服这一困难。虽然不同活度多源接力可消除对效率的影响,但会引入称量的不确定度,还需考虑作不同活度源时稀释介质对测量的影响,并且源的总活度比单源强,操作过程受剂量大。位置接力,只用单源在不同位置测量,可通过位置之间的交替测量来计算不同位置的计数率比,避免了效率刻度。故采用位置接力跟踪测量法。测得其中一个计数率比(计数率比 $p = A_{t,\text{中位}} / A_{t,\text{高位}}$)列入表 1。

2.3 ^{132}I 的半衰期

用上述两种方法得到了 4 条直线,本文给出其中一条,并示于图 1。根据直线的斜率 计算出 ^{132}I 的半衰期($T_{1/2} = \ln 2 / \text{斜率}$),得到的半衰期列入表 2。将求得的 4 个半衰期进行平均值和标准偏差计算,得到 ^{132}I 半衰期为 $(2.283 \pm 0.002) \text{ h}$ 。

Emery 等^[1]和 Keene 等^[3]用电离室跟踪测量 ^{132}I 的总 γ 放射性,得到 ^{132}I 的半衰期,分别为 $(2.259 \pm 0.008) \text{ h}$ 和 $(2.292 \pm 0.007) \text{ h}$; Wahl 等^[2]用闪烁探测器测量 ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I 和 ^{135}I 的所有 γ 能峰总和,根据半衰期不同分别进行分解扣除,从而得到 ^{132}I 的半衰期为 $(2.30 \pm 0.05) \text{ h}$ 。Marais 等^[5]用阱型闪烁探测器跟踪测量 ^{132}I 的所有 γ 能峰总和,总测量时间为 12.4 h,约为 ^{132}I 的 6 个半衰期,测得 ^{132}I 的半衰期为 $(2.2846 \pm 0.0004) \text{ h}$ 。本工作应用了不同于前人的测量方法,跟踪测量了更长的时间,得到了较准确的半衰期

表 1 667.7 keV 射线测量中位与高位计数率比

Table 1 Ratio of count rate of high place to that of middle place for $E_{\gamma}=667.7\text{ keV}$

| t/min | $A_{t,\text{high}}/\text{s}^{-1}$ | $A_{t,\text{mid}}/\text{s}^{-1}$ | $p(\text{Efficiency ratio})$ | $\bar{p}(\text{Average value})$ | s_r |
|----------------|-----------------------------------|----------------------------------|------------------------------|---------------------------------|---------|
| 487 | 137.35 | 501.70 | 3.653 | 3.659 | 0.224\% |
| 522 | 115.06 | 420.45 | 3.654 | | |
| 555 | 97.37 | 357.44 | 3.671 | | |
| 587 | 82.82 | 303.10 | 3.660 | | |

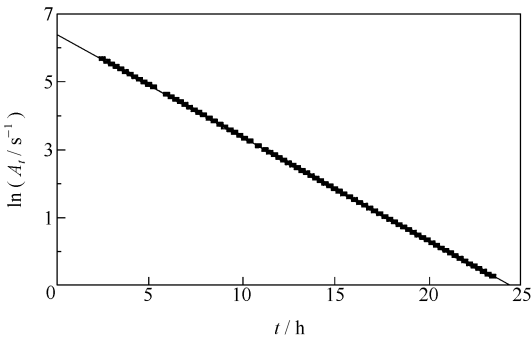


图 1 用平移法得到的 667.7 keV 射线的测量计数率的对数与时间 t 的关系
Fig. 1 Relationship of logarithms of count rates and time by translation for $E_{\gamma}=667.7\text{ keV}$

表 2 ^{132}I 半衰期的测量

Table 2 Measurement of half-life of ^{132}I

| E_{γ}/keV | 方法 (Method) | $T_{1/2}/\text{h}$ | $s_r/\%$ |
|-------------------------|----------------|--------------------|----------|
| 667.7 | 迭代(Iteration) | 2.283 | 0.025 |
| | 平移(Traslation) | 2.281 | 0.025 |
| 772.6 | 迭代(Iteration) | 2.286 | 0.043 |
| | 平移(Traslation) | 2.282 | 0.041 |

值。对于 Marais 等给出的数值,误差小于 0.02%,如此小的误差,我们是存疑的。核数据中心给出的编评值^[9]为 $(2.295 \pm 0.013)\text{ h}$,编评时对 Marais 数据的权重给予比较小。

2.4 数据可靠性的检验

为了有效地检验 ^{132}I 半衰期测量值的可靠性,我们试图把数据点之间的差别放大。具体方法是:求出每个测量点起始时刻与第一个测量点起始时刻之间的时差 t ,按照测得的 ^{132}I 的半衰期 (2.283 h) ,将所有数据点分别校正到测量开始时刻的计数,取均值,再把每个计数与均值进行对比求得比值,用 r 表示。然后将比值对时差 t 作图,结果示于图 2 和图 3。从图 2,3 看出,数据点之间的差别很直观。跟踪测量时每个测量点的总计

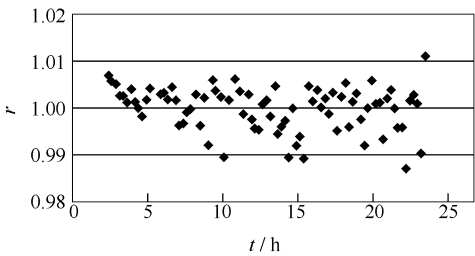


图 2 667.7 keV 射线的 r 与时间 t 的关系
Fig. 2 Relationship of r and time for $E_{\gamma}=667.7\text{ keV}$

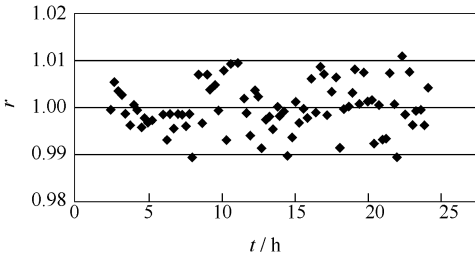


图 3 772.6 keV 射线的 r 与时间 t 的关系
Fig. 3 Relationship of r and time for $E_{\gamma}=772.6\text{ keV}$

数处在 25 000 ~ 500 000 范围内,引起的最大统计涨落误差为 0.63%,其 2 倍为 1.2%。由图 2,3 可见,其比值基本在 1% 的范围内浮动,并且误差大的点多落在每个测量位置的计数最低处。这说明测量过程中仪器正常且计算过程无误,给出的 ^{132}I 半衰期是可靠的。

3 结 论

- (1)在不同位置之间的数据衔接时,采用自身源(^{132}I)在位置之间交替测量来测定其计数率比,避免了不同位置效率刻度带来的误差。
- (2)测得的 ^{132}I 半衰期为 $(2.283 \pm 0.002)\text{ h}$ 。将数据点之间差别放大检验,证明了结果的可靠性。

参考文献:

[1] Emery E W, Veall N. Radiation Dosimetry of Iodine-132[J]. Nature, 1954, 174:889 - 890.

- [2] Wahl A C. Fission of ²³⁵U by 14-MeV Neutrons: Nuclear Charge Distribution and Yield Fine Structure[J]. Phys Rev, 1955, 99:730 - 739.
- [3] Keene J P, Mackenzie L A, Gilbert C W. A General Purpose Direct Current Ionization Chamber [J]. Phys Med Biol, 1958, 2:360.
- [4] Andersson G, Rudstam G, Sorensen G. Decay Data on Some Xe, I, and Te Isotopes [J]. Ark Fys, 1965, 28:37.
- [5] Marais P G, Haasbroek F J, Heyns C F G, et al. Half-life of ¹³²I [J]. S Afr J Agric Sci, 1966, 9: 259.
- [6] 张生栋,刘峻岭,郭景儒,等. ICP-MS 法测量¹²⁶Sn 半衰期[J]. 核化学与放射化学,2000,22(3):129 - 135.
- [7] Adam J, Belov A G, Brandt R. Precision Half-Life Measurement of ¹⁴⁰La With Ge-Detector [J]. Nucl Instrum Methods Phys Res, Sect B, 2002, 187: 419 - 426.
- [8] Firestone R B. Table of Isotope 8th [Z]. USA: Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, 1996.
- [9] Huang Xiao-long, Zhou Chun-mei, Zhuang Your-xiang. Evaluation Group of China Nuclear Data Center[Z]. China:China Institute of Atomic Energy, 2002.

Measurement of Half-life of ¹³²I

MAO Guo-shu, ZHANG Sheng-dong, YANG Lei, DING Your-qian, CUI An-zhi

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275 (26), Beijing 102413, China

Abstract: The half-life of ¹³²I is measured with a HPGe detector by a place-relay method. Calibrating efficiency can be avoided by counting alternately at different places. In order to simplify the dealing process of data, the realtime of every count is set the same. Two ways of iteration and translation are adopted to deal with the data. The obtained value of half-life of ¹³²I is (2.283 ± 0.002) h. The value is checked and proved credible.

Key words: ¹³²I; half-life; measurement

专利介绍

皮肤放射性污染的无水去污胶

公开日:2005.07.27

分类号:C11D17/00

公开号:1644671

申请号:200410014180.5

申请日:2004.02.26

申请人:苏州大学放射医学研究所

文摘:本发明公开一种皮肤放射性污染的无水去污胶,包括去污粉、乙二胺四乙酸二钠、柠檬酸、六偏磷酸钠、胶水、少许普鲁士蓝和超氧化物歧化酶。它能快速有效地去除各种核素造成的皮肤放射性沾污,尽可能地降低其对皮肤的刺激及毒性作用,同时改变了去污方法和程序,以最少的固体量快速地、最大限度地包容绝大部分皮肤表面的放射性沾染物,从而减少去污过程中放射性废水的产生量,同时使后续去污过程中产生的固体污染物的放射性比活度达到放射性物质的豁免水平。

摘自中国原子能科学研究院《核科技信息》