

用 ^{137}Cs 为监测体的放化法测定 核燃料的燃耗

林灿生 朱国辉 平佩贞

(原子能研究所)

本文建立了磷酸锆(ZrP)分离-铂氯酸沉淀分析核燃料溶液中 ^{137}Cs 和 ^{134}Cs 的程序,该程序适用于测定核燃料的燃耗。程序的精密度在 $\pm 0.5\%$ 以内。用所测得的 ^{137}Cs 计算的燃耗值与用 ^{144}Ce 为监测体的结果在1.6%内符合。还测定了 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射性比与燃耗的关系,并给出了经验公式。也简述了有关的制源技术。

关键词 燃耗, 监测体, ^{137}Cs , ^{134}Cs , 磷酸锆, 铂氯酸。

一、前言

放射化学法测定核燃料的燃耗是个经典的方法,常用 ^{137}Cs 作为燃耗监测体。对于辐照温度较低的反应堆,用 ^{137}Cs 为监测体有其突出的优点^[1]:半寿期长;裂变产额高而准确,并受中子能量影响小;蜕变纲图清楚;中子俘获截面小等。 ^{134}Cs 的存在会干扰 ^{137}Cs 的测量,但可用Ge(Li)探测器测量。同时还可以测得 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 的放射性比值,这比值又是与燃耗直接相关的。

作为燃耗监测体的 ^{137}Cs 之放化分析方法已报道过很多,有用铂氯酸^[2-4]、高氯酸^[2,4,5]和四苯硼钠^[3]作沉淀剂的沉淀法;有四苯硼钠萃取法^[3]和二苦胺锂亚化学计量萃取法^[6];有机离子交换法^[3,7]和无机离子交换法^[8]等。文献[3]报道了为测定燃耗目的而用铂氯酸铯沉淀、四苯硼铯沉淀、四苯硼钠萃取、 $\text{K}_2[\text{FeCo}(\text{CN})_6]$ 取代法和有机离子交换等五种方法测定铯溶液中 ^{137}Cs 的比较。认为铂氯酸铯沉淀法最好,误差为 $\pm 3.0\%$ 。文献[4]推荐铂氯酸铯沉淀法为核燃料溶液中 ^{137}Cs 的放化测定标准方法,相对标准偏差 $\pm 1.4\%$ 。

铂氯酸铯沉淀前必须分离其它裂变产物。对铯具有特殊选择性的无机离子交换剂(特别是磷酸锆 $[\text{ZrP}]^{[9-17]}$)用于分离、提取或测定 ^{137}Cs ,前人已进行过很多研究,但用于燃耗测定的报道很少。文献[8]利用磷钼酸铵-硅胶体系分离和测定 ^{137}Cs 计算燃耗,结果与溶液的直接 β 谱法比较,在 $\pm 5\%$ 内符合。我们为了避免铯溶液中引进其它碱金属和 NH_4^+ 离子,用ZrP分离-铂氯酸沉淀来测定铯溶液中的 ^{137}Cs 和 ^{134}Cs 。用热水洗沉淀,使纯度更高;烘干温度控制在 $110 \pm 1^\circ\text{C}$; Cs_2PtCl_6 沉淀被制作成可倒放和竖放并可忽略自吸收的放射源,可在Ge(Li)

1982年5月20日收到。

探测器上确定一致的几何条件进行测量。在燃耗测定中,用本方法分析 ^{137}Cs 的精度为 $\pm 0.5\%$;与铀溶液用直接 γ 谱法测定的结果在 0.7% 内符合。本方法测得 ^{137}Cs 计算的燃耗值与 ^{144}Ce 为监测体的结果在 1.6% 内符合。计算燃耗值时所用的铀数据是采用微量容量法^[18]测定的,其误差为 $\pm 0.5\%$ 。

二、试剂与仪器

氯化铯:光谱纯,上海试剂一厂。用石英重蒸馏水配成溶液。铂氯酸($\text{H}_2\text{PtCl}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$):二级,北京化工厂。用石英重蒸馏水配成 70mg/ml 的溶液。磷酸锆(ZrP):北京有色金属熔炼厂试制。筛选 $60-80$ 和 $80-110$ 目使用。盐酸:优级纯。其余试剂均为二级。

放射性指示剂: ^{137}Cs ,进口分装; ^{134}Cs ,用光谱纯 CsCl 中子活化; ^{95}Zr - ^{95}Nb 、 ^{144}Ce 、 ^{106}Ru 、 ^{103}Ru 、 ^{239}Pu 均是本所产品。

微量分析天平;Ge(Li)探测器-4096道脉冲幅度分析器;NaI(Tl)单道 γ 谱仪;LXJ-64-01型离心机;小型恒温干燥箱,自制^[19], $\pm 1^\circ\text{C}$;不锈钢离心管(内径 18.8mm)和不锈钢托片(直径 22.0mm ,厚 0.28mm),本所工厂加工。

三、推荐程序和核参数的选择

1. 推荐程序

(1)用已处理过的 ZrP 装成 $\phi 4 \times 120\text{mm}$ 的柱子,分别用 $5\text{ml } 6\text{NHCl}$ 和 0.5N HNO_3 洗柱子。

(2)准确称取 1g 左右的 CsCl 溶液(含铯 20mg 左右)到 10ml 试管内,取适量的燃料样品溶液(称重取样)到试管内与 CsCl 溶液混合,调成 $0.5-1\text{N HNO}_3$ 和 $3\% \text{H}_2\text{O}_2$,搅匀,以每分钟 $0.3-0.5\text{ml}$ 的流速通过柱吸附铯。

(3)分别用 $0.5\text{N HNO}_3 + 3\% \text{H}_2\text{O}_2$ 、 $0.5\text{N HNO}_3 + 0.3\text{M H}_2\text{C}_2\text{O}_4$ 以及 0.1N HCl 三种溶液各 10ml 洗涤柱子。

(4)在红外灯照射下(柱子外套温度 $50-60^\circ\text{C}$)用 6N HCl 解吸铯,收集 8ml 解吸液于 10ml 离心管内。

(5)往解吸液中加入 1ml 乙醇,搅匀后加入 1ml 铂氯酸溶液,搅拌沉淀半分钟,于冰浴里放置 $5-10$ 分钟,离心,弃去水相。

(6)用 4ml 无水乙醇洗沉淀一次,弃去乙醇(以除去沉淀母液),然后加 3ml 石英重蒸馏水于沸水浴里煮 5 分钟(不断搅拌),冷却到室温,离心,弃去水相;再用 4ml 无水乙醇洗沉淀两次和 4ml 乙醚洗沉淀一次。

(7)用乙醚将沉淀转移到装有源托片(已称重)的不锈钢离心管内,静置 5 分钟,然后以 4000 转/分的转速离心 10 分钟,弃去乙醚。

(8)将沉淀和源托片一起卸下,用棉球浸乙醚擦净源周围的片,于小型恒温干燥箱内 $110 \pm 1^\circ\text{C}$ 烘 1 小时,在保干器内冷却 30 分钟,称重;重复烘和称重,到两次结果相差 $\leq 0.02\text{mg}$ 。

(9) 称重后沿源周围滴加聚乙酸乙烯-丙酮溶液, 使浸透到源中心, 干后贴一层聚酯薄膜。

(10) 用 Ge(Li) 探测器-4096 道脉冲幅度分析器测量 661.6keV 和 604.7keV 能峰的计数。

(11) 计算样品溶液中 ^{137}Cs 和 ^{134}Cs 的蜕变率。

本程序的化学产额是 40—80%；对冷却八个月的热铀溶液中 ^{137}Cs 的分析精度是 $\pm 0.48\%$ ；程序对其它核素的去污系数是： ^{141}Ce 5.0×10^5 、 ^{140}La 1.2×10^5 、 ^{140}Ba $\geq 1.7 \times 10^4$ 、 ^{103}Ru 5.4×10^4 、 ^{95}Zr 7.0×10^4 、 ^{95}Nb 5.4×10^4 、 ^{239}Pu $> 3.5 \times 10^3$ 和 U $> 1.1 \times 10^3$ 。刻度探测器效率用的 ^{137}Cs 溶液的比放是 245.76dps/mg 溶液, 经本程序操作后, 测得的比放是 245.92dps/mg 溶液。

2. 核参数的选择

由推荐程序测定的 ^{137}Cs 数据, 选用合适的核参数进行堆照史及冷却期校正后的燃耗计算。这里主要的核参数是半寿期和裂变产额。文献[1]搜集了一系列 ^{137}Cs 的半寿期和裂变产额数据。将其主要的汇总成表1, 可供选用。我们选用的半寿期数据是 30.174y；裂变产额数据是 6.22% (^{235}U 裂变) 和 6.62% (^{239}Pu 裂变)。并根据具体的反应堆参数, 再求得 ^{137}Cs 的有效裂变产额用于计算燃耗。

表1 ^{137}Cs 的半寿期和裂变产额数据

半 寿 期		裂 变 产 额		
资料发表或 推荐年代	半 寿 期, y	资料发表或 推荐年代	热 中 子 裂 变 产 额, %	
			^{235}U	^{239}Pu
1955	26.6 \pm 0.4; 33 \pm 2; 30.0 $^{+0.3}_{-0.4}$	1955	6.22; 6.15	
1958	32.6	1961	6.15	6.63
1961	30; 30.4 \pm 0.4	1962	6.17	
1962	30.4 \pm 0.4	1965	6.19	
1963	29.68	1966	6.22	
1970	29.90	1967	6.27 \pm 0.04	
1972	30.18	1970	6.28 \pm 0.03	6.74 \pm 0.14
1973	30.21; 30.17	1972	6.15	
1974	30.0	1973	6.24 \pm 0.16	6.72
1975	30.17	1978	6.234 \pm 0.037	
1977	30.17; 30.174	1979	*6.22 \pm 0.062	*6.62 \pm 0.113

* 原子能研究所裂变产额评价组提供。

四、实验与结果

1. 铯载体溶液的配制和标定

称取 15g 光谱纯氯化铯溶于石英重蒸馏水中, 配成 500ml 溶液, 过滤到 500ml 容量瓶内备用。用铂氯酸铯重量法标定溶液浓度, 结果列于表 2。文献[3]认为此方法对 ^{137}Cs 的回收率可达 99.95%。表 2 的数据也说明方法很稳定。

表 2 氯化铯溶液浓度的标定结果

溶液种类	A		B	
标定时间	1979.1.16	1979.3.5	1979.3.6	1979.4.12
铯浓度, mgCs/g 溶液	26.556±0.083	26.627±0.046	23.732±0.069	23.739±0.061

2. 用 ZrP 分离铯

(1) ZrP 的处理 无机离子交换剂的处理方法 (尤其烘干温度) 不同, 往往影响其交换性质, 处理时要慎重。我们筛选一定粒度的 ZrP 固体, 用 6NHCl 浸泡一昼夜, 倾去溶液, 继续用 6NHCl 洗 3 次以上, 至酸洗出液无色。然后用蒸馏水淘洗到 pH2—4 范围, 于 110℃ 烘 4 小时, 备用。

(2) 单级实验 按拟定的实验条件, 加放射性指示剂于带磨口塞离心管内配好料液, 取样测料液放射性。称取处理过的 ZrP 若干份。逐份加到各离心管内, 于小型振荡器上振摇 10 分钟, 离心, 取水相测量放射性。

1) 硝酸浓度对 ZrP 吸附 ^{137}Cs 、 ^{144}Ce 、 ^{106}Ru 、 ^{95}Zr — ^{95}Nb 的影响 硝酸浓度对 ZrP 吸附 ^{137}Cs 、 ^{144}Ce 、 ^{106}Ru 、 ^{95}Zr — ^{95}Nb 的影响差别很大, 见图 1。在 0.01—1.0NHNO₃ 范围内, ^{106}Ru 在 ZrP 上的吸附率最高只有 10%, 随酸度增到 0.2N, 吸附率降到接近 0。 ^{144}Ce 在 0.01NHNO₃ 时, 吸附率高达 93.6%, 当酸度增到 0.1N 时, 吸附率降到 0.2%。 ^{95}Zr — ^{95}Nb 的吸附率在 0.05NHNO₃ 时最高, 其后随酸度的增加, 吸附率下降, 但比 Ru 和 Ce 要下降得慢得多。随硝酸浓度的增加, ^{137}Cs 的吸附率略有下降, 0.01NHNO₃ 时, 吸附率 99.2%, 1.0N 时为 96.6%, 2.0N 时为 92.6% (图 1 未画出)。

2) 铯载体量对 ZrP 吸附和解吸 ^{137}Cs 的影响 铯在 ZrP 上的吸附平衡需较长的时间 (几天到几十天) 才能达到。为了适应有载体情况下柱上吸附的需要, 我们进行了短接触时间 (10 分钟) 内载体量对吸附和解吸的影响实验, 结果见表 3 和 4。

酸性介质中室温下, 铯强烈地被 ZrP 吸附, 但在 80—100℃ 时容易被洗脱^[12]。我们用 6NHCl 与吸附了铯的 ZrP 接触, 于 90℃ 水浴里放置 5 分钟, 然后振摇 5 分钟, 取溶液测量, 得表 4 数据。

实验结果表明, 在短接触时, 铯载体增加使吸附率下降, 但吸附量增加, 有利于铯解吸。

表3 ZrP对铯的吸附率和吸附量

料液: 0.4NHNO₃-¹³⁷Cs 指示剂; ZrP: 80—100 mesh; 28℃; 振摇 10min.

序号	ZrP量, mg	加入铯载体量, mg	铯吸附率, %	铯吸附量, mgCs/mgZrP
1	421.6	0	98.0	示踪
2	363.2	1.7	94.5	0.0044
3	321.1	6.4	84.2	0.0168
4	327.1	9.1	79.6	0.0222
5	311.9	19.8	59.0	0.0375
6	330.3	34.1	49.6	0.0512

表4 铯吸附量对解吸¹³⁷Cs的影响

序号	ZrP量, mg	吸附总绝量, mg	¹³⁷ Cs 解吸率, %
1	422	示踪	45
2	363	1.61	62
3	327	7.26	72
4	312	11.70	80
5	330	16.91	80

3) 铈量对 ZrP 吸附 ¹³⁷Cs 的影响 实验了铈量对 ZrP 吸附 ¹³⁷Cs 的影响, 结果列于表 5。铈量在 0—225mg 范围内, 每增加 45mg 铈, 使 ¹³⁷Cs 的吸附率下降约 1%。

4) 草酸浓度对 ZrP 吸附 ¹³⁷Cs 和 ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb 的影响 草酸浓度在 0.3M 以内, 对 ZrP 吸附 ¹³⁷Cs 影响不大, 但对吸附 ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb 影响很大。草酸浓度为 0.05M 时, ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb 的吸附率约为 0, 结果见表 6。

表5 铈量对 ZrP 吸附 ¹³⁷Cs 的影响料液: 0.5NHNO₃-¹³⁷Cs 指示剂; ZrP: 80—100 mesh; 28℃; 振摇 10min.

序号	ZrP, mg	铈量, mg	¹³⁷ Cs 吸附率, %
1	344	0	97.3
2	345	45	96.4
3	346	90	95.8
4	318	135	94.5
5	343	180	92.7
6	355	225	90.9

表6 H₂C₂O₄对ZrP吸附⁹⁵Zr-⁹⁵Nb的影响
ZrP: 80-100 mesh, 约 200mg; 27℃; 振摇 10 min.

序 号	HNO ₃ , N	H ₂ C ₂ O ₄ , M	⁹⁵ Zr- ⁹⁵ Nb 吸附率, %
1	0.1	0.1	~0
2	0.1	0.05	~0
3	0.5	0.1	~0
4	0.5	0.05	~0
5	0.5	0.01	1.4
6	0.5	0.005	5.6

还进行了H₂O₂对ZrP吸附¹³⁷Cs和⁹⁵Nb的影响实验。当料液中只加入3% H₂O₂就可以抑制⁹⁵Nb被吸附。而5% H₂O₂以内均不影响¹³⁷Cs的吸附。

(3) 柱上实验 将单级实验的结果应用到用ZrP柱从热铀样品中分离¹³⁷Cs, 如推荐程序操作。铀载体选用20mg, 对于¹³⁷Cs的吸附和解吸以及化学产额测定和制源均合适。⁹⁵Zr-⁹⁵Nb、¹⁰⁶Ru、¹⁴⁴Ce、²³⁹Pu及¹³⁷Cs的淋洗曲线如图2所示。0.3M H₂C₂O₄对⁹⁵Zr和²³⁹Pu的洗脱很有效, 不过对ZrP有轻度的损害, 但不影响¹³⁷Cs的吸附。用0.1NHCl洗去被H₂C₂O₄溶解的微量ZrP, 以免进入解吸液中。用6NHNO₃或6NHCl解吸¹³⁷Cs, 两者无明显的差别, 为了在盐酸介质中沉淀, 故用6NHCl解吸。在13℃解吸时, 则峰位后移, 严重地拖尾。柱上加入100mg铀也不影响¹³⁷Cs吸附。

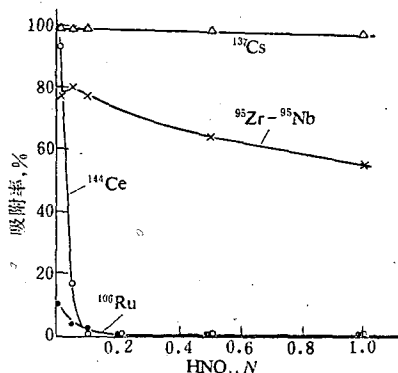


图1 硝酸浓度对ZrP吸附¹³⁷Cs、⁹⁵Zr-⁹⁵Nb、¹⁰⁶Ru和¹⁴⁴Ce的影响

3. 制源与测量

(1) 厚源的制作 厚源是指载带了¹³⁷Cs的Cs₂PtCl₆沉淀, 制成一定的几何形状, 供校正化学产额和测量放射性用。按程序操作, 沉淀恒重后, 用滴管吸取聚乙酸乙烯-丙酮饱和溶液, 小心地在源边沿的片上滴一圈, 让溶液浸透到源中心, 挥发去丙酮后, 聚乙酸乙烯与Cs₂PtCl₆沉淀一起成为“整块”附着于不锈钢片上。然后以聚乙烯醇缩醛酯-丙酮溶液为粘合剂, 在沉淀源周围的片上涂一圈, 贴上一层8μm厚的聚酯薄膜(事先剪成与托片一样大小), 晾干即可测量。这样制作的厚源在测量时, 按需要可在普通Ge(Li)探测器上倒放或在弯头Ge(Li)探测器上竖放都不丢失沉淀物。保存一年之后仍可再测量。

在制作厚源时按文献[4]程序进行,我们发现在不同浓度的盐酸中沉淀结果不一致。而经过本文推荐程序“第6”热水洗一次,则在0.1—6NHCl中沉淀的结果都一致,详见表7。这一步洗涤的效果很好,它虽然使化学产额降低,但分析结果更准确可靠。

表7 Cs₂PtCl₆ 沉淀的洗涤对制作厚源的影响

沉淀时 HCl 浓度, N	测得 ¹³⁷ Cs 溶液的比放, cpm/mg ¹³⁷ Cs 溶液		
	I. 三次乙醇、一次乙醚洗涤	II. 一次热水、三次乙醇、一次乙醚洗涤	I 与 II 相差, %
0.1	145.90	146.56	0.45
0.5	144.88	146.54	0.8
3	143.95	146.58	1.8
6	143.71	146.84	2.2

源的厚度不同,可能造成射线的自吸收不同而影响准确度。我们用同样的¹³⁷Cs 溶液,加入不同量的铯载体,使沉淀重量不同而得不同厚度的源。测量比放射性。结果表明在10—40mg 铯的厚度对测量没有影响,即可忽略自吸收。

(2) 监督源的制作 为了经常观察探测器的探测效率是否有变化或仪器工作是否正常。需要精确的监督源。我们用¹³⁷Cs 制作了若干个监督源,制作方法如下:用厚源的托片,涂上一层聚乙酸乙烯-丙酮溶液,晾干后用毛笔蘸丙酮把中心点(要准确)的聚合物溶解并吸去,使露出不锈钢,直径约2mm。将适当强度的¹³⁷Cs 指示剂溶液滴到中心点,晾干后往中心滴一滴聚乙酸乙烯-丙酮溶液,挥发丙酮后,¹³⁷Cs 即被包裹在有机聚合物内,再贴一层聚酯薄膜即可。这样制作的监督源经过一年多的使用,效果良好,满足了实用要求。

(3) ¹³⁷Cs 和 ¹³⁴Cs 的测量及探测器效率的刻度 核燃料样品溶液中同时存在¹³⁴Cs 和¹³⁷Cs,为了准确地测量¹³⁷Cs 和¹³⁴Cs,使用 Ge(Li) 探测器-4096 道脉冲幅度分析器,测

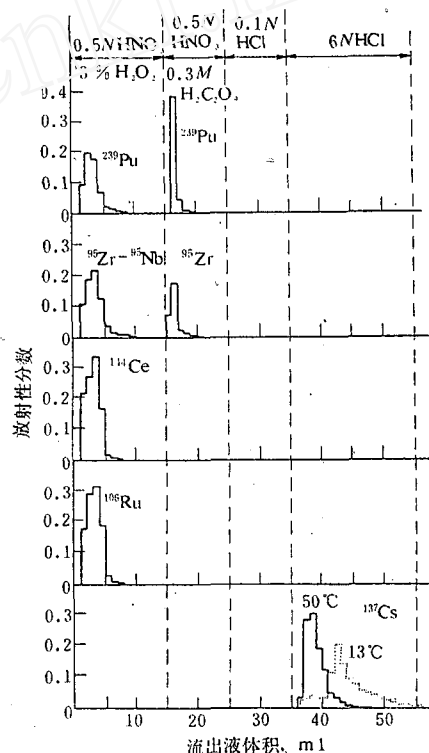


图2 ZrP 柱上⁹⁵Zr-⁹⁵Nb、¹⁰⁶Ru、¹⁴⁴Ce、²³⁹Pu 和¹³⁷Cs 的淋洗曲线

柱子: $\phi 4 \times 120$ mm, ZrP80—100 mesh; 流速: 0.3ml/min; 温度: 6NHCl 淋洗在50—60°C、其它在室温下进行。

量661.6keV (分支比 84.6%) 峰计算 ^{137}Cs 和 604.7keV (分支比98%) 峰计算 ^{134}Cs 。

探测器对 ^{137}Cs 和 ^{134}Cs 的探测效率的刻度是: 用经过鉴定合格的 ^{137}Cs 溶液和 ^{134}Cs 溶液同时制作厚源和 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合绝对测量的薄膜源, 分别在 Ge(Li) 探测器和 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合测量装置上测量放射性, 得到单位重量指示剂溶液的放射性相对强度和蜕变率, 前者与后者比即是 Ge(Li) 探测器的探测效率。刻度了 $27\text{cm}^3\text{Ge(Li)}$ 探测器对 ^{137}Cs 和 ^{134}Cs 的探测效率, 结果列于表 8。其中最后一次刻度的 ^{137}Cs 厚源有经过推荐程序操作和不经过程序的, 结果看不出差别, 说明在方法灵敏度内, 推荐程序不引进系统误差。 ^{137}Cs 的绝对测量的相对误差为 $\pm 1.3\%$; ^{134}Cs 的绝对测量的相对误差 $< 1\%$ 。

表 8 $27\text{cm}^3\text{Ge(Li)}$ 探测器的探测效率

刻度时间	^{137}Cs 的探测效率	^{134}Cs 的探测效率
1978,5	0.001895	
1978,6	0.001899	
1978,8		0.002318
1978,10		0.002342
1979,3	0.001905	
1979,6	0.001909	

4. ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 放射性比与燃耗的关系

从 ^{134}Cs 在辐照燃料中的形成机理可知 ^{134}Cs 与 ^{137}Cs 的比值和中子通量及燃耗深度是直接相关的。人们推荐用 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 之比值作为燃耗监测体^[20-22]。我们测定了一根长 102mm 的燃耗元件轴向不同位置的燃耗和出堆时 ^{134}Cs 与 ^{137}Cs 放射性的比, 见图 3。元件不同部位燃耗的差别与 ^{134}Cs 对 ^{137}Cs 放射性比的变化很一致。以 Bu (兆瓦·日/吨铀) 表示燃耗, x 表示 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射性比, 用最小二乘法处理实验数据得:

$$Bu = (-14.1 \pm 1.2) + (9500 \pm 627)x \quad (1)$$

将实验测得的 x 值代入式 (1) 计算各相应部位的燃耗, 结果与实验值在 -1% $-+0.6\%$ 内符合。式 (1) 可写成通式:

$$Bu = a + bx \quad (2)$$

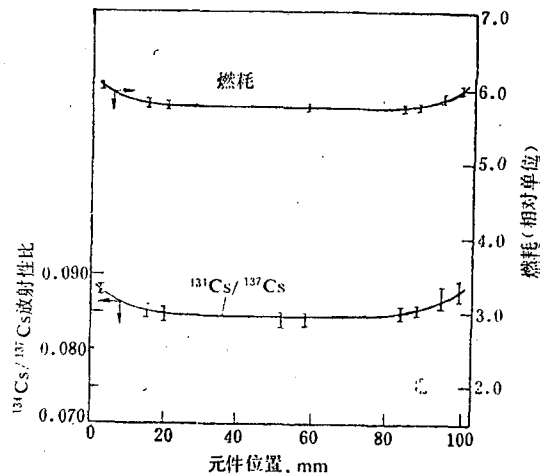


图 3 元件不同部位的 ^{134}Cs 与 ^{137}Cs 放射性比和燃耗的变化

常数 a 和 b 随堆照史的变化而不同。对于辐照史相同的燃料, 用破坏法确定 a 和 b 后, 可通过非破坏法测定 x 值, 由式(2)计算燃耗。对于堆照史不同的燃料, 依堆照史修正 a 和 b 值, 然后计算燃耗, 这时 x 代表 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 的原子数比, 并且关系式(2)与文献[22]给出的公式一样。我们所测定的燃料元件的轴向燃耗分布差异不大, 因此得到的 a 和 b 的误差较大。尽管如此, 所得结果足够说明 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 可作为燃耗监测体, 并有可能用于非破坏法测定燃耗。

五、小 结

1. 建立了 ZrP 分离-铂氯酸沉淀相结合的 ^{137}Cs 和 ^{134}Cs 分析程序。适用于测定核燃料燃耗, 经实际样品考验, 程序精密度在 $\pm 0.5\%$ 内。

2. 在 0.5NHNO_3 中, ^{95}Zr - ^{95}Nb 和 ^{239}Pu 也被 ZrP 吸附, 用 H_2O_2 抑制和 $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$ 洗涤除去。

3. 铯载体的存在有利于 ^{137}Cs 的解吸, 用红外灯代替循环热水加热解吸, 能满足分析样品的要求, 并且设备简单, 同时可操作 6 个柱子。

4. Cl^- 存在可能会影响 Cs_2PtCl_6 沉淀的纯度, 用热水很容易洗去沉淀中的 Cl^- 。

5. 制作了可倒放和叠放测量的厚源以及相应的 ^{137}Cs 监督源。

6. 测定了一根长 102mm 的核燃料元件轴向不同部位的燃耗和 ^{134}Cs 与 ^{137}Cs 的放射性比。求得了燃耗与 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射性比的实验关系式。测定的 ^{137}Cs 结果与直接 γ 谱法在 0.7% 内符合; 用本文实验值计算的燃耗与 ^{144}Ce 为监测体的结果在 1.6% 内符合。

本工作中的 4π 绝对测量由吕峰、陈国安、李泽、贺先运、种培基、陈庆江协助完成。 γ 谱的测量工作由朱荣保、王时举、杨留城、张增瑞协助完成。制作厚源的不锈钢离心管和托片是苏树新、孙淑英设计的, 一并致谢。

参 考 文 献

- [1] 林灿生等, 以 ^{137}Cs 为监测体用放化法测定核燃料的燃耗, 原子能研究所内部资料 (1979).
- [2] ASTM-E219-69 (1974).
- [3] Hiroshi Okashita et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, 9 (4), 241 (1972).
- [4] ASTM-E320-70 (1974).
- [5] W. J. Maeck et al., IDO-14656 (1965).
- [6] J. Krttil et al., *Talanta*, 15, 1423 (1968).
- [7] Haruo Natsume et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, 9 (12), 737 (1972).
- [8] F. Sebesta, J. Dolezal, *Radiochem. Radioanal. Lett.*, 25 (4), 237 (1976).
- [9] G. Alberti et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 28, 225 (1966).
- [10] Kurt A. Kraus et al., *J. Amer. Chem. Soc.*, 78, 694 (1956).
- [11] C. B. Amphlett et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 6, 220 (1958); 10, 69 (1959).
- [12] L. Baetslé et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 21, 124, 133 (1961); 25, 271 (1963).
- [13] G. Alberti et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 36, 2103, 2109 (1974).
- [14] 施肅等, 磷酸铈分离铷和铯的研究, 原子能研究所内部资料, 原成 [76]-030 (1976).
- [15] 于学仁等, 用磷酸铈从酸性强放废液中提取铯-137研究, 原子能研究所内部资料 (1978).
- [16] 阎和信, 科技, 10, 1169 (1964).
- [17] 石森富太郎等, 分析化学, 19, 1289 (1970).
- [18] 陈静仪, FeSO_4 - $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ 微量容量法测定铈, 原子能研究所内部资料, 原成 [76]-008(1976).

- [19] 林灿生等, 科技, 4, 511 (1981).
[20] Harumichi Tsuruta et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, 14 (1), 43 (1977).
[21] S. T. Hsue et al., *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 27, 191 (1977).
[22] V. Petényi et al., *J. Radioanal. Chem.*, 51 (1), 133 (1979).

RADIOCHEMICAL DETERMINATION OF BURNUP OF NUCLEAR FUEL WITH ^{137}Cs AS MONITOR

LIN CANSHENG ZHU GUOHUI PING PEIZHEN

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

ABSTRACT

An analytical procedure for the separation and determination by zirconyl phosphate and chloroplatinate-precipitation for cesium is developed with an accuracy $\delta_b \pm 0.5\%$. Decontamination factors for other nuclides are: ^{141}Ce 5.0×10^5 , ^{140}La 1.2×10^5 , $^{140}\text{Ba} \geq 1.7 \times 10^4$, ^{103}Ru 5.4×10^4 , ^{95}Zr 7.0×10^4 , ^{95}Nb 5.4×10^4 , $^{239}\text{Pu} > 3.5 \times 10^3$ and $U > 1.1 \times 10^3$. The calculated values of burnup with ^{137}Cs and ^{144}Ce as monitors are compared and differ by 1.6%, and the dependence of $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio on the burnup is determined.

Key words Burnup, Monitor, Cesium-137, Cesium-134, Zirconyl phosphate, Chloroplatinic acid.