# 高放废液处理过程中总 $\beta$ 放射性活度的分析

# 梁俊福 刘秀琴 郭一飞

(清华大学核能技术设计研究院,北京 102201)

研究了高放废液处理过程中总  $\beta$ 放射性活度的分析方法。用液体闪烁计数法甄别  $\alpha$ 和 Y射线的干扰,测量水相和有机相总  $\beta$ 放射性的计数率。把  $\beta$ 放射性核素分成 4 组,用液闪仪和 Ge (L i) Y 谱仪分析各组样品和各种淬灭条件下的等效效率和权重因子,通过效率等效法计算得到样品的总  $\beta$ 放射性活度。分析了 TR PO 处理生产堆高放废液流程中各液流的总  $\beta$ 放射性活度。总  $\beta$ 测量的不确定度小于 5%。

**关键词** 总 β 放射性 液体闪烁计数法 高放废液 效率等效法 **中图分类号** O · 615.13

在铀和钚的核裂变过程中,产生的大量裂变产物和锕系核素绝大部分是 β放射性核素。在 核燃料后处理和核废物处理过程中,监测各组分的总 β放射性活度是十分必要的。由于 β放射 性核素较多,能量分散,含量随冷却时间而不断变化。因此,通过逐一分析 β核素活度来测量总 β放射性活度的方法既费时费力又不实际,人们总是用各种近似的办法测量总 β放射性活 度<sup>11</sup>。本文根据我国高盐分高放废液的实际情况,采用液体闪烁计数法和效率等效法分析高放 废液及其处理过程中的总 β放射性活度。

#### 1 测量原理

液体闪烁计数法分析  $\beta$ 放射性活度具有制样简单、探测效率高、可以甄别 α 粒子和  $\lambda$ 射线 干扰等优点, 对<sup>3</sup>H 的探测效率可达 69%。 在 α 放射性活度比  $\beta$ 高 10 倍的情况下, 应用液闪仪 器的脉冲形状甄别功能, 可以使 α 对  $\beta$ 的干扰小于 2%。冷却时间超过 10 a 的高盐分高放废液, 主要的  $\lambda$ 放射性核素是<sup>137</sup>C s, <sup>134</sup>C s, <sup>155</sup>Eu, 这些核素的  $\lambda$ 射线对总  $\beta$ 测量的干扰都在 2% 以下。

根据核裂变知识和前人的分析结果<sup>[2]</sup>, 冷却 10 a 以上的生产堆高放废液中 β 放射性核素 约有 20 多个, 按照液体闪烁计数法测量 β 放射性时探测效率( $\epsilon$ ) 和 β最大能量( $E_{\theta}$ ) 的关系, 把 这些 β 放射性核素分成 4 组, 每组在不同淬灭条件下的探测效率用一个指示核素的效率来代 表, 每组的活度权重因子用 1—2 个核素测量后再通过计算得到。表 1 列出了核素分组情况。液 闪等效效率  $\epsilon$  由式(2) 给出。

收稿日期: 1997-04-02 收到修改稿日期: 1997-09-16 梁俊福: 男, 53 岁, 应用化学专业, 硕士, 副研究员

$$A = N / (\boldsymbol{\epsilon} \times 60) , \qquad (1)$$

$$\epsilon = \Sigma \epsilon W_{\rm b} \tag{2}$$

式中, A 为总  $\beta$ 放射性活度, Bq; N 为样品计数率, m in <sup>-1</sup>; G 为第 *i* 组的液闪探测效率, *i*= 1- 4; W ; 为第 *i* 组的活度权重因子。

表 1 高放废液中主要  $\beta$ 核素组成及指示核素 Table 1 Major  $\beta$  nuclein compositions and indicating nuclein in HLW

组号	<i>Eβ</i> /keV	主要核素	效率指示核素	权重指示核素
1	< 100	<sup>106</sup> R u	<sup>3</sup> H	<sup>106</sup> R h
2	100—500	<sup>99</sup> Tc <sup>125</sup> Sb <sup>129</sup> I <sup>144</sup> Ce <sup>147</sup> Pm <sup>155</sup> Eu	<sup>14</sup> C	<sup>155</sup> Eu <sup>99</sup> Tc
3	500—1000	<sup>90</sup> Sr <sup>134</sup> Cs <sup>137</sup> Cs <sup>154</sup> Eu	<sup>90</sup> Sr	<sup>137</sup> C s <sup>90</sup> Sr
4	> 1000	<sup>90</sup> Y <sup>106</sup> R h	<sup>90</sup> Y	<sup>144</sup> Ce <sup>90</sup> Sr
	551)			

### 2 实验部分

#### 2.1 试剂和仪器

2.1.1 试剂 TRPO, 化学纯, 上海试剂厂产品; 240<sup>#</sup> 加氢煤油, 锦州炼油厂产品, 经蒸馏处理; 30% TRPO-煤油, 用 1 mol<sup>1</sup>/L HNO<sub>3</sub>, 50 g<sup>1</sup>/L Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 各洗涤 3 次, 再用水洗至中性; Triton X-100, 进口分装; 水相闪烁液: 将 5 g PPO、0.5 g M <sub>2</sub>PO PO P、60 g 萘溶于 1 L 50% 二 甲苯-Triton X-100; 有机相闪烁液: 将 5 g PPO、0.5 g M <sub>2</sub>PO PO、60 g 萘溶于 1 L 二甲苯。标准 溶液: <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs 为中国原子能科学研究院产品, <sup>3</sup>H、<sup>14</sup>C 为中国计量科学研究院产品。

2.1.2 仪器 Tri-Cab 2200CA 液体闪烁分析仪,美国 PACKARD 公司产品;α谱仪为北京核 仪器厂生产的 FH 445B Si (Au) 面垒 α探头(直径 20 mm)-OR TEC 线性放大器-PC 多道分析 系统。Ge (Li) 多道分析谱仪为美国 OR TEC 公司产品。

#### 2.2 实验方法

2.2.1 <sup>90</sup>Y 标准溶液的制备 将HC1介质的<sup>90</sup>Sr<sup>-90</sup>Y 标准溶液用 5 mol/L HNO<sub>3</sub> 经 3 次反复 蒸干溶解,转成 HNO<sub>3</sub> 体系,用 1 mol/L HNO<sub>3</sub> 溶解后,用 30% TR PO -煤油等体积萃取 1 次, 0.5 mol/L HNO<sub>3</sub> 洗涤 1 次,此有机相即为<sup>90</sup>Y 标准溶液。用半衰期法检验标准溶液的纯度,测 得<sup>90</sup>Y的半衰期为 64.12 h,与文献值[3,4]很好地一致。放射性活度的测量误差在 1% 以内。<sup>90</sup>Y 萃取后的溶液即为<sup>90</sup>Sr 标准溶液。

2.2.2 总 β计数率的测量 根据高放废液及其处理过程样品的放射性活度,水相、有机相样 品分别用 1 mol/L HNO<sub>3</sub>和二甲苯稀释一定倍数 K,使稀释后的溶液总 β活度在 10—10<sup>5</sup> Bq (低含量样品则适当浓缩)。在闪烁瓶中加入 10 mL 水相或有机相闪烁液,在液闪仪上测量 0—2000 keV 窗宽下的本底计数率  $N_{b}$  (m in<sup>-1</sup>) 后,分别加入 0.1 mL 水相或有机相样品溶液, 测量 0—2000 keV 的样品总计数率  $N_{b}$  (m in<sup>-1</sup>)。样品的放射性浓度 N (m in<sup>-1</sup>·mL<sup>-1</sup>)为:

$$N = 10K (N_{\rm t} - N_{\rm b})$$

(3)

**2.2.3** 效率指示核素的效率测量 在实验条件下,影响水相核素测量效率的主要因素是酸度 ③ 1994-2006 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

和含盐量。为此,根据高放废液及其处理过程样品的情况,分别测量了各种条件下<sup>3</sup>H、<sup>14</sup>C、<sup>90</sup>Sr、 <sup>90</sup>Y的探测效率。将加有标准溶液的模拟样品 0.1 mL 加入到 10 mL 闪烁液中,在液闪仪 0—2000 keV 窗宽下测量,计算各种条件下的探测效率。

2.2.4 放射性核素的活度测量  ${}^{90}$ Sr 和 ${}^{90}$ Y 活度用 30% TR PO-煤油萃取-液闪法分析 ${}^{[2]}, {}^{99}$ T c 活度在 1 mol/L H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 介质中用环己酮萃取-液闪法分析 ${}^{[5]}$ 。Np、Pu、Am 活度用溶剂萃取分 离,液滴法制源,α谱仪分析 ${}^{[6]}$ 。铀的质量浓度用液体激光荧光法分析,铀的比活度为 25 Bq/mg  ${}^{[7]}$ 。 ${}^{137}$ C s,  ${}^{155}$ Eu、 ${}^{144}$ Ce,  ${}^{106}$ Rh 的活度用 Ge (L i) Y谱仪分析。

# 3 结果和讨论

#### 3.1 Ge(Li) 》 谱仪的能量刻度和效率标定

Ge (L i) У谱仪为ORTEC659 高压电源-ORTEC Ge (L i) 探测器-FH1001A 线性放大器-8192 模数变换器-DD 8000M CA 系统,实验条件为:高压为+3500V,时间常数为0.8×0.8 μs, 放大倍数为 16,8192 道活时间测量。能量刻度用<sup>137</sup>Cs,<sup>152,154</sup>Eu 标准源完成,其回归关系式为:

 $E = 0.2485 \times C + 94.04_{\circ}$  (4)

式中, C 为道数。在 100-800 keV 范围内, 误差在 ± 2 道以内。

效率标定用标准源<sup>137</sup>Cs, <sup>152</sup>Eu, <sup>60</sup>Co 完成, 1 mL 标准液置于直径为 10 mm 的塑料小瓶中, 置于探头中心正上方 2 cm 处测量, 在 100—1400 keV 范围内, 效率-能量关系在双对数坐标上 为一直线。其回归关系式为:

$$\lg \eta = - 0 \ 807 \ 7 \ \lg E + 0 \ 620 \ 6_{\circ} \tag{5}$$

式中,  $\eta$ 为探测效率; E 为光电峰能量, keV。在 100—700 keV 时的误差在 ± 2% 以内。

3.2 效率分析结果

表 2 给出不同介质条件下的探测效率。多次液闪测量结果的统计误差小于 2%。表中同时 还给出了反映淬灭程度的参数和外标准反谱指数 TSE 值。该数值越大,淬灭程度越小,无淬 灭时,TSE= 1000。

Table 2 Detection efficiences in the different solutions					
<u>^ ج</u>					
介质	<sup>3</sup> H	<sup>14</sup> C	<sup>90</sup> Sr	$^{90}$ Y	TSIE
	67	97	99	99	1 000
HLLW	8.5	68.0		93.2	78.4
稀释 3 倍 HLLW	36.0	91.0	97.1	98.2	287
稀释 10 <sup>4</sup> 倍 HLLW	53.5	94.2	98.9	99.0	542
30% TRPO -煤油	59.5	95.2	99.2	99.4	678
5.5 mol/L HNO 3	52.7	94.0	98.8	98.9	500
0.6mol/LH2C2O4	58.5	94.9	99.1	99.4	646
50 g/L N a2CO 3	60.7	95.5	99.2	99.5	705
0.1 mol/L 冠醚-正辛醇	59.6	95.3	99.2	99.4	681
Sr 反萃液	58.7	95.0	99.1	99.1	651
Cs 流出液	44.5	92.5	98.2	98.3	378

表 2 不同介质条件下的探测效率

#### 3.3 权重因子的计算方法

3.3.1 原始料液权重因子的计算 用 Ge (L i) У 谱仪和液闪分析仪测量权重指示核素的放射 性活度, 并根据<sup>235</sup>U 的裂变产额 裂变产物的衰变关系和后处理流程对裂变产物的去除率等计 算, 可以得到平均冷却 10 a 以上裂变产物的相对活度, 进而可得到各组分的权重因子。表 3 给 出了中国生产堆高放废液中 β 放射性核素的相对活度(A)和权重因子(W)。 计算得到的核素 相对活度与主要核素分析结果比较, 误差皆在 3% 以内。

	Table 3	Kelative activity and weigh fac	wr or prautonucrides in	
No.	核素	$E_{\beta}^{*}/\text{keV}$	A ∕Bq	W
1	<sup>106</sup> R u	39	$4 \times 10^{-5}$	4 × 10 <sup>-5</sup>
2	<sup>155</sup> Eu	247	1 × 10 <sup>-3</sup>	$\bigcirc$
	<sup>125</sup> Sb	302	~ 10 <sup>-6</sup>	
	<sup>144</sup> Ce <sup>147</sup> Pm <sup>99</sup> T c	310	3 × 10 <sup>-5</sup>	1.0.10-2
		225	$1.1 \times 10^{-2}$	$1.3 \times 10^{-2}$
		293	6 × 10 <sup>-5</sup>	
	129 I	150	~ 10 <sup>-6</sup>	
	<sup>154</sup> Eu	580	3 × 10 <sup>-4</sup>	
3	<sup>134</sup> C s	658	$2 \times 10^{-4}$	
	<sup>137</sup> C s	512	4. 07 × 10 <sup>-1</sup>	6.97 × 10 <sup>-1</sup>
	<sup>90</sup> Sr	546	$2.90 \times 10^{-1}$	
4	<sup>90</sup> Y	2274	2.90 × 10 <sup>-1</sup>	
	<sup>106</sup> R h	3550	4 × 10 <sup>-5</sup>	2.90 × 10 <sup>-1</sup>
	<sup>144</sup> Pr	2990	3 × 10 <sup>-5</sup>	

表 3 HLLW 中 $\beta$ 放射性核素相对活度和权重因子

注: \* 按分支比最大时计算

3.3.2 高放废液处理流程中权重因子的计算 用 Ge(L i) Y谱仪和液闪分析仪测量原始料液 中  $\beta$ 核素的权重示踪核素的放射性活度,并根据工艺处理流程中各个元素萃取分配的计算机 模型、流比、物料衡算,可以得到流程中各级水相和有机相中  $\beta$ 核素的相对组成和各组分的权 重因子。例如计算 046 样品的权重因子,这是 30% TR PO-煤油经过 12 级萃取再分别经 5.5 mol/L HNO<sub>3</sub>和 0.6 mol/L H<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub> 反萃后的有机相样品。分析结果表明,仍有 16% <sup>99</sup>Tc 留在有机相中。通过 Y谱分析<sup>106</sup>Ru 子体<sup>106</sup>Rh 511 和 622 keV 的活度,可知此样品有约 6.8% 的总Ru 在有机相中。根据萃取数学模型和冷实验结果,此样品中的稀土元素含量小于总稀土 的 0.01%,样品 Y谱分析时已看不到<sup>144</sup>Ce 和<sup>155</sup>Eu 的峰。冷实验结果和<sup>137</sup>Cs 的 Y谱、<sup>90</sup>Sr 的液 体闪烁分析均表明: 此时样品中锶、铯含量低于初始值的 0.000 1%。这样,此样品主要核素的 相对强度为: <sup>106</sup>Ru、<sup>106</sup>Rh: 2.72 × 10<sup>-6</sup>; <sup>99</sup>Tc: 9.6 × 10<sup>-6</sup>; <sup>147</sup>Pm: 5 × 10<sup>-7</sup>; <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, <sup>90</sup>Y: 1 × 10<sup>-7</sup>。计算得到各组的权重因子分别为: 0.172, 0.638, 0.013, 0.177。

#### 3.4 标准加入法验证方法的可靠性

根据 TR PO 处理高放废液流程的情况,选择了 3 种介质,即稀释 10<sup>4</sup> 倍的模拟高放废液、 5.5 mol/Ĺ HNO<sub>3</sub> 和锶反萃液,加入不同量的<sup>3</sup>H、<sup>14</sup>C、<sup>90</sup>Sr<sup>-90</sup>Y 和<sup>137</sup>Cs 标准溶液混合物,按照前 述方法分析了其总 β放射性活度,将其结果与标准加入活度相对照,多次分析的误差皆在 ±4% 以内。在上述溶液里又加入不同量的<sup>241</sup>Am 标准溶液,液闪分析仪甄别 α粒子后,总 β测 ② © 1994-2006 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net 量误差在  $\pm$  5% 以内。这些结果说明用效率等效法测量总  $\beta$ 放射性活度是可靠的。

#### 3.5 总 $\beta$ 放射性分析结果

TRPO 处理生产堆高放废液的流程是用 30% TRPO-煤油去除U、Np、Pu、Am、Cm 等  $\alpha$  核素,用 0.1 mol/L 冠醚-正辛醇去除<sup>90</sup>Sr,用亚铁氰化钛钾离子交换剂去除<sup>137</sup>Cs。用上述方法 分析高放废液和 50 级萃取设备中每级水相、有机相样品以及离子交换流出液的总  $\beta$ 放射性活度。表 4 给出了部分实验的结果。

	Table 4	Analytical results of the gross $\beta$ activity			
样品名称	N/m in <sup>-1</sup> · mL <sup>-1</sup>	ε	$c/Bq \cdot mL^{-1}$	主要 $\beta$ 核素	TSIE
HAW *	5.4 × $10^{10}$	0.989	9. 1 × 10 <sup>8</sup>	<sup>90</sup> Sr <sup>-90</sup> Y <sup>137</sup> Cs	440
A 1	$1.8 \times 10^{10}$	0.989	$3.0 \times 10^{8}$	<sup>137</sup> C s	398
A 9	2.1 × $10^{10}$	0.989	$3.5 \times 10^{8}$	<sup>137</sup> C s	390
A 11	2.4 × $10^{10}$	0.989	$4.0 \times 10^8$	<sup>137</sup> C s	403
A 17	6. $0 \times 10^{10}$	0.990	$1.0 \times 10^{9}$	<sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y <sup>137</sup> Cs	583
A 32	5.2 × 10 <sup>8</sup>	0.975	8.9 × $10^{6}$	<sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y <sup>137</sup> Cs	553
A 33	$2.9 \times 10^{8}$	0.945	5.1 × $10^{6}$	<sup>147</sup> Pm <sup>155</sup> Eu	574
A 40	$1.8 \times 10^{6}$	0.948	3.2 × $10^4$	<sup>147</sup> Pm <sup>155</sup> Eu	553
A 41	$3.3 \times 10^{6}$	0.949	5.8 × $10^4$	<sup>147</sup> Pm <sup>155</sup> Eu	410
A 47	5.3 × $10^5$	0.875	$1.0 \times 10^{4}$	$^{99}$ T c $^{106}$ R u - $^{106}$ R h	410
A 50	2.2 × 10 <sup>5</sup>	0.870	4.2 × $10^3$	$^{99}$ T c $^{106}$ R u - $^{106}$ R h	474
C s-2	4.9 × $10^7$	0.989	8.3 × $10^5$	<sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y <sup>137</sup> Cs	614
C s-4	6.4 × $10^7$	0.989	$1.1 \times 10^{6}$	<sup>90</sup> Sr <sup>-90</sup> Y <sup>137</sup> Cs	614
01	$1.7 \times 10^{8}$	0.974	2.9 × $10^{6}$	<sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y	633
010	3.3 × $10^{10}$	0.974	5.6 × $10^8$	<sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y	629
016	6. 2 × $10^8$	0.972	$1.1 \times 10^{7}$	<sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y	630
028	4.8 × $10^9$	0.983	8.1 × $10^7$	<sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y <sup>147</sup> Pm	791
032	4.3 × 10 <sup>9</sup>	0.985	7.3 × $10^7$	<sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y <sup>137</sup> Cs	679
038	9.9 × $10^{6}$	0.940	$1.8 \times 10^5$	<sup>147</sup> Pm <sup>155</sup> Eu	609
040	$1.0 \times 10^{7}$	0.941	$1.8 \times 10^{5}$	<sup>147</sup> Pm <sup>155</sup> Eu	636
046	2.7 × 10 <sup>6</sup>	0.896	5.0 × 10 <sup>4</sup>	<sup>99</sup> Tc <sup>106</sup> Ru <sup>-106</sup> Rh	609
047	2.8 × 10 <sup>6</sup>	0.898	5. 2 × 10 <sup>4</sup>	$^{99}$ T c $^{106}$ R u - $^{106}$ R h	618
050	2.8 × 10 <sup>5</sup>	0.950	4.9 × $10^3$	<sup>99</sup> T c	714

表4 总 $\beta$ 放射性分析结果

注:\*稀释一定倍数

#### 3.6 分析误差

β放射性的活度测量过程中, 无论是用参数法, 外推法还是示踪法, 由于 β 谱是从零到最 大能量的连续谱, 因此总存在着一定的测量误差。探测效率对测量结果的影响是十分明显的, 一般认为探测效率越高, 由此引起的测量准确度越好<sup>[8]</sup>。本研究中液闪分析仪对所有 β 核素的 探测效率都在 50% 以上, 主要核素的探测效率都在 90% 以上, 由此引起的误差在 2% 以下。表 5 给出了总 β放射性分析的不确定度。A 类不确定度:  $S_j = (\Sigma S_j)^{1/2} = 1\%$ ; B 类不确定度:  $U_j = (\Sigma J_j)^{1/2} < 5\%$ ; 合成不确定度:  $(S_j^2 + U_j^2)^{1/2} < 5\%$ ; 按照分析测量的不确定度合成方法, 总 β 放 射性测量的总不确定度小于 5%。

Table 5 Uncertainty in analyzing of the gross $\beta$ activity					
不确定度分类	不确定度名称	不确定度值/%	不确定度依据		
	计数统计	1	$(1/\Sigma N_i)^{1/2}$		
	取样误差	1	微量移液器误差		
	稀释误差	1.5	每次1%,共2次		
	标准源	< 2	计量部门给出		
B 类不确定度	效率测量	< 2	外推偏差		
	权重测量	< 3	合成样品计算统计		
	本底	< 1	$1/N_{t} \times (N_{b}/t)^{1/2}$		
	其它	1			

#### 表 5 总 $\beta$ 放射性分析的不确定度

#### 参考文献

1 吕 峰,林灿生,张先梓,等.高放废液总β放射性活度测量.原子能科学技术,1992,26(5):89

- 2 罗文宗. 高放废液中放射性核素分析. 原子能科学技术, 1992, 26(5): 6
- 3 马崇智, 等. 放射性同位素手册. 北京: 科学出版社, 1979, 559
- 4 梁俊福, 刘秀琴, 郭一飞, 萃取液闪法测定高放废液及其处理工艺中<sup>90</sup>Sr. 清华大学学报, 1996, 36(11): 86
- 5 刘秀琴,梁俊福,郭一飞,萃取液闪法测定高放废液及其处理工艺中<sup>99</sup>Tc 核电子学与探测仪器,1997, 17(3):180
- 6 田国新, 梁俊福. TR PO 处理高放废液过程中 α 核素的分离、测定方法. 核化学与放射化学, 1996, 18(2): 122
- 7 郭一飞,梁俊福,焦荣洲.激光荧光法测定高放废液及其处理工艺中的铀.原子能科学技术,1997,31(4): 321
- 8 Bearg AP. The Efficiency Extrapolation M ethod in Coincidence Counting Nucl Instrum M ethods, 1973, 112(1, 2): 143

# ANALYSIS OF GROSS BETA ACTIVITY IN THE TRPO PROCESS

Liang Junfu Liu Xiuqin Guo Yifei

(Institute of N uclear Energy Technology, Tsinghua University, P. O. B ox 1021, B eijing 102201)

#### ABSTRACT

A nalysis of gross beta activity in the TRPO process for treating high level liquid waste is studied The gross beta activity in aqueous or organic phase samples are determined by liquid scintillation analyzer. Interference with determination of  $\alpha$  and  $\gamma$  to  $\beta$  is discriminated  $\beta$ nuclides are divided into four groups based on  $\beta$ maximum energy. Equivalent efficiency and weigh factor of each group are analyzed by liquid scintillation analyzer and Ge (L i)  $\gamma$  spectrometer. Gross  $\beta$  activities of the samples are calculated by equivalent efficiency method. The method is applied to analysis of gross  $\beta$  activity in the TRPO process with satisfactory results

**Key words** Gross beta activity Liquid scintillation counting High level liquid waste Equivalent efficiency method