

# 8000居里<sup>60</sup>Co辐射源铈

## 化学剂量测定的试验报告\*

王 农 汪夕彬

### 提 要

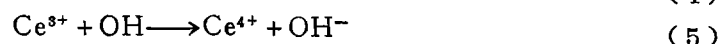
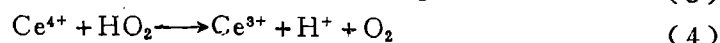
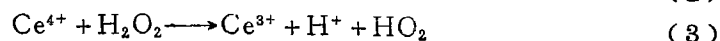
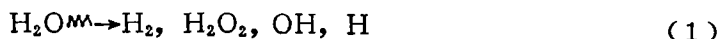
本文介绍了8000居里(13000克镭当量)<sup>60</sup>Co辐射源Ce化学剂量测定的原理和具体实验方法,对水的精制与纯度检验、辐照容器及其净化、应使用的仪器药品、剂量率计算公式、硫酸铈溶液的配制、铈溶液的辐照及 $G_{Ce^{3+}}$ 值的测定、化学剂量与PTW万用剂量仪的比较、硫酸铈法对空心源内腔剂量的测定作了试验总结,指出本实验的最大误差为4.8%。

随着原子能在农业、化工、医学等各方面的广泛应用,强辐射源在各地先后建成。为了更好地发挥其作用和推广其应用成果,剂量探测工作更显重要;一般通用的电离型剂量仪难以测量能量高于3 MeV、剂量率很高的电离辐射。而化学剂量法不仅能较满意的解决上述问题,而且其优越性还在于它更容易解决组织等效性问题,可以直接测得被照射物质的吸收剂量。因此,目前国内外对硫酸铈法已作了大量研究,硫酸铈剂量计亦得到广泛应用。

### 原 理

硫酸铈水溶液在 $\gamma$ 射线作用下,四价铈离子被水的辐解产物还原为三价铈离子。在0.8N硫酸溶液中, $Ce^{4+}$ 浓度从0.001—0.05M,辐照剂量在 $10^5$ — $10^7$ 伦之间, $Ce^{3+}$ 的生成量与辐照剂量成正比,并且不受剂量率影响。因此硫酸铈的0.8NH<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>水溶液被用作高水准剂量计。通常所用的硫酸亚铁剂量测量法只适合测量 $4 \times 10^3$ — $4 \times 10^4$ 伦的辐照剂量。它在实际使用上有一定的局限性,例如在测定强辐射源的高剂量率时(>20伦/秒),硫酸亚铁剂量测量法失效,而硫酸铈剂量测量法就显示出它的价值。

硫酸铈水溶液的辐射化学反应过程如下:



\* 本工作得到中国科学院吉林应用化学研究所二室同志的指导和支援。在测定过程中陕西省农林科学院刘耀华、刘淑容、牛淑贞等同志给予热情帮助,特此致谢。

由上述反应过程计算的 $G(\text{Ce}^{3+}) = G_{\text{H}} + 2 G_{\text{H}_2\text{O}_2} - G_{\text{OH}} = 2.4$ , 接近实验值(2.3—2.5)。

$\text{Ce}^{4+}$ 溶液中有氧或无氧对于 $G(\text{Ce}^{3+})$ 值没有影响。温度在7—35℃之间几乎不改变 $G(\text{Ce}^{3+})$ 值。

杂质对硫酸铈水溶液的辐射化学反应具有敏化的作用。它的存在会导致上述反应过程和 $G(\text{Ce}^{3+})$ 值的改变。因此所用药品必须很纯。配制溶液必须用特制的三次蒸馏水。

## 实 验 方 法

### (一) 水的精制与纯度检验

水的纯度对 $G(\text{Ce}^{3+})$ 有很大影响, 当溶液中存在少量有机杂质, 会使 $\text{Ce}^{4+}$ 还原速度增大, 所以实验中必须采用三次蒸馏水(不得用离子交换水代替)。其导电应在 $5 \times 10^{-6} \Omega^{-1}$ 以下。必要时还可利用硫酸亚铁剂量法进行检验。

1. 精制方法: 将普通蒸馏水每升加1.0g  $\text{KMnO}_4$ 和5ml 浓 $\text{H}_2\text{SO}_4$ 蒸馏一次得一次蒸馏水, 在每升一次蒸馏水中加0.1g  $\text{KMnO}_4$ 和5g  $\text{NaOH}$ , 蒸馏得二次蒸馏水, 再将二次蒸馏水蒸馏一次得三次蒸馏水。各次蒸馏水均在全部磨口蒸馏器中进行蒸馏。

2. 水纯度的检验: 利用硫酸亚铁剂量法可以很方便地检验水的纯度; 如果用同一种水配制的硫酸亚铁溶液, 无论加入和不加入 $\text{NaCl}$  ( $10^{-3}\text{M}$ ), 若能得到相同的结果, 即可认为此水的纯度是足够的。

### (二) 辐照容器及其净化

1. 液体剂量系统: 辐照时应放在较大的容器中进行, 以保持该系统内的电子平衡。辐照管的内径应该不小于0.8mm。一般辐射管的内径应为9—20mm。国产硬质玻璃带磨口的辐照管, 其壁厚在0.5—2.5mm范围内对结果无影响。

我们辐照时采用的辐照管为纳氏比色管, 内径16mm, 壁厚1.5mm, 高度150mm。测定平均剂量时管内溶液高度应相当于源的总高度, 测定点剂量时所取液高为2cm。

2. 容器净化: 实验用玻璃器皿先以洗液浸泡, 用自来水和普通蒸馏水洗涤, 然后加热硝酸处理。另一个清洗的有效方法是把经过洗液浸泡, 自来水和普通蒸馏水洗涤过的玻璃器皿充满三次蒸馏水, 放入辐射源装置中用 $\gamma$ —射线辐照到 $10^6$ 伦以上的剂量, 取出倒掉蒸馏水, 再以少量三次蒸馏水洗涤1—2次。

### (三) 仪器、药品

我们使用的MPS—50L型紫外分光光度计, 使用的铈铵盐试剂为E·Merck。

根据北京化工研究院采用国产二级铈盐试剂和E·Merck铈铵盐试剂比较试验结果, 国产二级铈铵盐试剂不经精制, 亦可得到满意的结果, 其相对误差不超过 $\pm 5\%$ 。在采用一级硫酸的条件下, 我们使用国产硫酸铈试剂, 亦得到比较满意的结果。

### (四) 剂量率计算公式

关于剂量率计算的公式在文献中也有些介绍, 我们采用的公式如下:

$$\text{剂量率 (R/S)} = \frac{\text{Ce}^{3+} \times 6.023 \times 10^{23} \times 100}{1000 \times G \text{Ce}^{3+} \times 5.48 \times 10^{13} \times 1.024 \times t}$$

式中:  $\text{Ce}^{3+}$ 为 $\text{Ce}^{3+}$ 离子浓度 (M)

$6.023 \times 10^{23}$ 为阿伏加德罗常数。

$5.48 \times 10^{13}$ 为相当于1伦的电子伏特数。

1.024为剂量体系 ( $0.8N H_2SO_4$ ) 的密度 ( $g/cm^3$ ),  $t$ 为辐照时间(秒)。

#### (五) 硫酸铈铵溶液的配制

1. 储备溶液: 用  $0.8N H_2SO_4$  配制  $0.1N Ce(SO_4)_2 \cdot 2(NH_4)_2SO_4 \cdot 2H_2O$  溶液。然后用  $Na_2C_2O_4$  标定后贮存棕色瓶中备用。

2.  $Ce^{4+}$  离子对其光密度的标准曲线: 测定照射后铈溶液中铈离子浓度的含量, 采用的是相减法, 即根据照射前后溶液中四价铈浓度之差来确定在辐照中产生的三价铈。因此, 应做  $Ce^{4+}$  离子浓度对其光密度的标准曲线。

(1) 将标定后的储备液分别稀释至浓度为20, 40, 60, 80,  $100 \mu mol/L$ , 在波长  $320 m\mu m$ , 窄缝  $0.32 mm$ , 以  $0.8N H_2SO_4$  作空白测其各点光密度读数。

(2) 绘制标准曲线: 见图1。

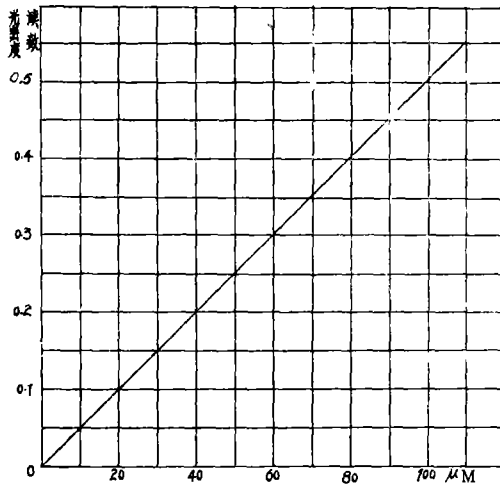


图1  $Ce^{4+}$  标准曲线

3. 辐照溶液: 我们选择的辐照溶液浓度为  $0.001M$ 。

辐照溶液的选择, 必须是照射剂量在  $10^5 - 10^7$  伦范围内,  $Ce^{4+}$  的反应量在20—80%之内, 否则对测定结果影响较大。

#### (六) 铈溶液的辐照及 $G_{Ce^{3+}}$ 值的测定

1. 未辐照及被辐照的铈溶液均以  $0.8N H_2SO_4$  作空白, 波长  $320 m\mu m$ , 测定其光密度, 二者光密度差即为被射线还原的四价铈的光密度, 代入公式, 即可求得该点的剂量或剂量率。我们实验中, 辐射溶液均需稀释后测定。

2.  $G_{Ce^{3+}}$  值的测定: 由于  $G_{Ce^{3+}}$  值与许多因素有关, 如微量的杂质、光等。所以必须在自己的实验条件下, 用第二标准剂量计——硫酸亚铁剂量计来校正; 在  $\gamma$  辐射场内, 选择一个位置, 此处既能用亚铁剂量计来校正, 又能用铈剂量计来测定。因而此处先用亚铁剂量计正确的测出该处的剂量率, 然后在同一位置, 以相同的条件用铈剂量法来测量, 由于剂量率已知,  $G_{Ce^{3+}}$  值因而也可算出, 我们求得结果如表1。

### (七) 化学剂量与PTW万用剂量仪的比较

PTW万用剂量仪是从联邦德国进口的,经中国国家计量院标定,其误差为 $\pm 3\%$ 。为了确知我们在化学剂量法操作过程的精度。在辐射场内,我们选了几个位置,分别用PTW剂量仪和硫酸亚铁法进行测定。从测定结果来看,两者最大偏差为 $\pm 2.0\%$ ,结果见表2所示。

通过比较测定,不仅说明我们用化学剂量法测定结果是可靠的,而且使我们有可能用PTW剂量仪与硫酸铈法配合测定整个辐射场剂量分布。

### (八) 硫酸铈法对空心源内腔剂量测定

由于空心源内腔剂量率较高,超过PTW万用剂量仪的量程。所以我们采用硫酸铈法对内腔剂量进行了测定。从测定结果(表3)来看,除一组数据误差为 $\pm 4.8\%$ 外,

表1 GCe<sup>3+</sup>值测定结果

| 测定次数              | I    | I    | II   | IV   | 平均值             |
|-------------------|------|------|------|------|-----------------|
| GCe <sup>3+</sup> | 2.46 | 2.49 | 2.53 | 2.49 | 2.49 $\pm$ 0.03 |

表2 硫酸亚铁与PTW测定结果

| 位 置<br>(距源的厘米数) | 硫酸亚铁测定<br>(伦/分) | PTW测定<br>(伦/分) | 相 对 误 差<br>(%) |
|-----------------|-----------------|----------------|----------------|
| 77              | 296.0           | 293.4          | 0.9            |
| 66              | 399.9           | 393.3          | 1.7            |
| 59              | 495.6           | 486.0          | 2.0            |
| 54              | 589.2           | 580.1          | 1.6            |

表3 空心源内腔剂量测定结果

| 距辐射源中部的<br>相对高度<br>(cm) | 测 定 I<br>(伦/分) | 测 定 II<br>(伦/分) | 相 对 误 差<br>(%) |
|-------------------------|----------------|-----------------|----------------|
| + 8                     | 20308.2        | 19385.1         | 4.8            |
| + 6                     | 25846.8        | 25231.4         | 2.4            |
| + 4                     | 28000.7        | 27385.3         | 2.2            |
| + 2                     | 29846.9        | 30154.6         | 1.0            |
| 0                       | 31077.7        | 31693.1         | 2.0            |
| - 2                     | 30154.6        | 30154.6         |                |
| - 4                     | 28000.7        | 27385.3         | 2.2            |
| - 6                     | 25846.8        | 24923.7         | 3.7            |
| - 8                     | 20308.2        | 20000.5         | 1.0            |

其余各组数据均在4.0%以下,其重复性与资料所介绍是完全一致的。

## 小 结

1. 所用三次蒸馏水的电导应控制在 $5 \times 10^{-6} \Omega^{-1}$ 以下。离子交换水的电导甚至为 $1 \times 10^{-7} \Omega^{-1}$ ,但由于微量有机杂质的影响,不能得到好的结果。辐照溶液必须置于暗处。
2. 在硫酸纯度保证的条件下,采用二级硫酸铈仍可得到满意的结果。
3. 在自然体系中如 $Ce^{4+}$ 的浓度为 $1 \times 10^{-3} M$ ,  $Ce^{4+}$ 的反应量控制在30%以上,会得到较好的重复。
4. 本实验的最大误差为4.8%。

## 参 考 文 献

- [1] 铈剂量测量法:在 $10^5-10^7$  rads下的例常应用,《原子能快报》,1959年,第19、20、21期。
- [2] 陈鹤鸣:硫酸铈剂量计,《化学通报》,1964年,8期。
- [3] 北京化学工业研究院九室编:《同位素在化学工业中的应用》,中国工业出版社,1962年。
- [4] 查子英:剂量测量中的化学剂量法,《原子能科学技术》,1964年,7期。
- [5] 安藤亘:化学剂量计的最近发展,《同位素应用译丛》,1966年,7期。
- [6] 洪瑞祥、谢益美:硫酸亚铁法测定 $^{60}Co\gamma$ 射线剂量的研究,《原子能科学技术》,1965年7月。

## Test Report on Measuring the Radiative Source $^{60}Co$ With 8-Kilocurie by Assaying Ceric Sulfate

Wang Nong      Wang Xibin

**Abstract** If the pureness of sulfuric acid is assured, the satisfactory results can be got atill by using A.R Ceric sulfate, it repeats well if the concentration of  $Ce^{4+}$  is  $1 \times 10^{-3} M$  and the reaction amounts of  $Ce^{4+}$  are controlled over 30%. The maximum of relative errors was 4.8% of the dose.