

生长发育时期代谢旺盛有关。马绍尔群岛蒙难儿童,肿瘤发生的时间为9~11年,因治疗而接受放射性作用后,肿瘤发生的潜伏期平均为20.3年,一般定为25年。

为了保护甲状腺,采用各种甲状腺稳定剂以阻断放射性碘进入甲状腺,以降低甲状腺的吸收剂量。为保证较好的防护效果,建议普遍采用稳定性碘制剂,并要求稳定性碘制剂于放射性碘进入之前或进入后不久使用。短寿命核裂变产物的毒性在很大程度上决定于放射性碘。因此,放射性碘在肿瘤发生中起一定作用。无论是放射性产物的急性损伤,或对远期的致癌效应,采用药物甲状腺保护均有一定价值。评价药物保护效果的条件是该裂变产物放射性碘的活性必须是由短寿命同位素 $^{131}\text{I}$ ~ $^{135}\text{I}$ 构成,其半衰期属于小时级,甲状腺的吸收剂量亦主要是这类同位素的贡献。

根据甲状腺的吸碘功能及甲状腺的坏死和萎缩程度、致肿瘤作用等指标比较, $^{131}\text{I}$ ~ $^{135}\text{I}$ 的效应比 $^{131}\text{I}$ 高10~25倍。

$^{131}\text{I}$ ~ $^{135}\text{I}$ 的高生物效应可能与甲状腺结构内吸收能量的微量分布特点有关。 $^{131}\text{I}$ 属软 $\beta$ 射线( $E=0.2\text{ MeV}$ ),在很大程度上由滤泡内的胶质吸收。而 $^{132}\text{I}$ ~ $^{135}\text{I}$ 属较硬 $\beta$ 射线( $E=0.46\sim0.65\text{ MeV}$ )它的剂量分布于甲状腺实质、血管和神经结构内,这样的剂量分布差别是有重要意义的。比较证明,防护系数愈低,则半衰期愈短。例如,进入放射性碘前1小时给碘化钾时,甲状腺对 $^{131}\text{I}$ 的吸收量可降低26倍。 $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、 $^{134}\text{I}$ 、 $^{135}\text{I}$ 的防护系数相应为2.7、8.4、1.6和5.0。

(金性江节译 王貽琮校 刘 及申)

## 反应堆核燃料溶液的采样和分析

Smith DH等; Anal Chem 54(7): 827A~832A, 1982(英文)

为了防止核扩散,国际原子能机构(IAEA)提出了核材料防护措施的国际方案。与此方案有关的科学家负有计算核工厂所使用的和生成的放射性物质的平衡的责任。为此,需要对铀和钚进行监测,因为它们可用于制造核武器。由于在一些国家出现了增殖反应堆,专门的加工厂可以从增殖反应堆燃耗过的核燃料中回收精炼的铀和钚。防护措施方案的确立更显得有必要了。

燃耗过的反应堆核燃料溶液的采样,是防护方案中最难的问题之一。这些溶液具有很高的活性,除了剩余的核燃料和在核增殖过程中产生的钚之外,还含有许多长半衰期和短半衰期的裂变产物。在国际防护方案中为分析这些溶液,按照常规技术,需要把大量样品送往维也纳的国际原子能机构,这不仅费用大,而且分离元素很费时。因为对钚必需采取屏蔽防护,这样包装材料的重量远远超过了样品的重量,运送这类样品非常困难。由于近来对运送这类物质的数量加以限制,这就需要科学工作者提供所需样品量减至最少的分析方法。

为此,我们实验室最近研究了利用阴离子交换树脂珠的一种新的采样技术。这种微量采样技术有三方面的优点。第一,吸附的量非常少(每种元素1~3ng),使运送不再成为问题。第二,在适当条件下铀和钚被

吸附到树脂珠上,因而可与裂变产物和大多数其他锕系元素分离。第三,每粒树脂珠均可作为方便的载体以把样品送到最终用质谱法分析的丝极上。

### 一、采样

从溶解器中取出已知量燃耗过的核燃料溶液,调节成8M $\text{HNO}_3$ 溶液。取足够量溶液分成两份,使每粒树脂珠能有大约1 $\mu\text{g}$ 的铀。往一份溶液中加入已知量的高纯度示踪同位素,所用的示踪同位素是纯度>98%的 $^{233}\text{U}$ 和 $^{244}\text{Pu}$ 。使样品和示踪同位素达到平衡,这是用同位素稀释技术进行任何定量测定所必要的决定性的化学步骤。铀的平衡只需要把样品和示踪同位素溶液彻底混匀即可建立。但对钚而言,由于它的氧化态多种多样和有形成聚合物及络合物的倾向,因而需要特别注意。Marsh等比较过各种平衡方法的效果,发现用 $\text{Fe(II)}$ 和氨基磺酸还原,继之用 $\text{NaNO}_2$ 氧化,可以得到最一致的结果。知道了示踪同位素、未加入示踪同位素的样品以及示踪同位素和样品混合液的同位素组成,便可计算出溶液中铀或钚的含量。

把一千粒树脂珠放入每份溶液,每粒直径为100~200 $\mu\text{m}$ 的树脂珠提供质谱仪的一份样品。1000粒树脂珠提供的样品总共约含1mg铀,相当于某些其他分析方法所需的样品量。因此,采用这种技术,污染的危

险性小于通常所用技术。用涡旋搅拌器搅拌,使树脂珠与溶液接触10分钟,之后除去溶液,并冲洗树脂珠,可以除去其表面的污染物。

通过这种简单技术可以达到铀和钚与裂变产物的完全分离。观测到在约8 M $\text{HNO}_3$ 条件下,铀和钚在强碱性阴离子交换树脂(Dowex 1-X2)上发生最大吸附。除铀和钚之外,吸附程度较明显的元素是钍和镅。所存在的镅的质量数仅为237,它与任何有意义的元素都不发生质量干扰。如果一直采用钍作为基本增殖反应堆系统,质量数为232的钍也不会引起干扰,这是很有意义的。燃耗过的核燃料溶液的U/Pu比值大约为100,但因为钚在树脂珠上的吸附系数约为铀的100倍,因此树脂珠吸附这两种元素的量大约相等(每珠吸附1~3ng铀和钚)。钚的这个量相当于 $10^{-9}$ 居里,为工作人员所允许的每天受照水平的十分之一,由包装材料提供的防护可更进一步减小搬运时的照射。因此,不需要特殊的屏蔽防护。

由树脂珠携带样品的装运很方便。可以用火棉胶把许多树脂珠固定在显微镜玻片上运送,或者将树脂珠装入专门设计的特殊容器内直接运送。这两种办法运送一个样品的成本都大约只要100美元,而旧方法运送一个样品则需要700美元。

## 二、质谱测定法

阴离子交换树脂珠不仅可用作化学分离的手段,而且用于把试样引入质谱仪的丝极进行质谱分析。如此少量试样的质谱分析,需要有能单独计数到达收集器的离子脉冲计数系统,用单个钨丝极分析这两种元素。钚的离子化势能比钍低,因此钚首先被分析(在大约1450 $^{\circ}\text{C}$ 时),多余钚被烧去后,开始分析铀(在大约1700 $^{\circ}\text{C}$ )。编制计算机程序,自动地算出同位素组成,并对质量为238的两种元素间的干扰予以修正。

我们用这种技术分析了数百个样品,精确度和准确度一般都较好。该树脂珠可作为质谱仪离子光学的极近似的点源,也可作为一种有效的还原剂,以防止因氧化核素作用而使样品损失,从而提高总收集效率。此外,把作为样品储存器的树脂珠送到离子化区比送溶液更易控制。树脂珠的平均收集效率为丝极上每700个铀原子可给出一个离子;对于钚,其效率为丝极上每80个钚原子可给出一个离子。结果表明这种方法比用溶液所得的结果提高约一个数量级。

## 三、结 果

用国家标准局(NBS)检定过的同位素标准反复

分析所得结果如表1所示。全部结果为从树脂珠中分析铀和钚所得的数据。微量同位素分析的结果表明,多级质谱仪能够进行低丰度同位素的精确测定。标准差在1 $\sigma$ 置信限内。

表 1 NBS标准分析的原子比值

	NBS-947Pu同位素标准			
	238/239	240/239	241/239	242/239
测定值(9份样品)	0.00371	0.24156	0.04281	0.01559
NBS检定值	0.00371	0.24147	0.04309	0.01559
标准差	0.00002	0.00057	0.00025	0.00008
	NBS-500U同位素标准			
	234/235	235/238	236/235	
测定值(9份样品)	0.01034	0.99851	0.001522	
NBS检定值	0.01042	0.99970	0.001519	
标准差	0.00005	0.00209	0.000005	

完成了确定应用这种技术的U/Pu比值范围的实验。比值低于10时,提示树脂珠中钚达到饱和,这使铀的分析结果很不可靠。而比值超过1000时,则暗示铀已达到饱和。但反应堆核燃料燃耗的时间未必会长到足以使U/Pu的比值低于10。另一实验确定了为进行可靠的同位素分析所要求钚的最低量。如果测定其全部同位素,则这种最低量约为0.1ng,如果不考虑 $^{238}\text{Pu}$ ,则可更低些( $<0.05\text{ng}$ )。

在进行这些研究的过程中,观测到 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的比值始终低于元素化学分离这样一些常规方法所观测到的比值。由于后者中存在 $^{241}\text{Am}$ ,所以这是必然的。 $^{241}\text{Am}$ 存在于燃耗过的核燃料中,并且也来自 $^{241}\text{Pu}$ 的衰变。树脂珠能够分离钚和镅,是此项新技术的一个重要优点。

为此,我们已开始把树脂珠技术优先于以前的溶液装样方法,而用作常规方法。

## 四、与常规技术的比较

任何新分析方法的决定性检验,在于用它所得结果与试图取代的旧方法所得结果相比较。在应用质谱分析法之前的常规铀和钚同位素的定量分析技术,包括将铀和钚与反应堆的其他产物以及铀钚之间的化学分离。为此需把蒸发后的样品残渣运送到有关实验室进行上述化学分离。

为比较起见,在橡树岭国家实验室(ORNL)受过树脂珠技术培训的日本人,用树脂珠技术采取了动

表 2

燃耗过的核燃料溶液的同位素分析

实 验 室	方 法	铀 （重量百分数）				浓度（克/升）
		234	235	236	238	
PNC	常 规	0.0191	1.0942	0.3746	98.512	164.70
IAEA	蒸 干	0.0211	1.0876	0.3718	98.519	164.83
IAEA	树脂珠	0.0206	1.0905	0.3699	98.519	164.68
ORNL	树脂珠	0.0201	1.0965	0.3722	98.511	163.95
平 均		0.0202	1.0922	0.3721	98.515	164.54
标准差		0.0009	0.0039	0.0019	0.004	0.40

实 验 室	方 法	钚 （重量百分数）					浓度（克/升）
		238	239	240	241	242	
PNC	常 规	1.458	60.178	22.623	11.515	4.227	1.507
IAEA	蒸 干	1.369	60.301	22.642	11.483	4.206	1.492
IAEA	树脂珠	1.375	60.171	22.599	11.624	4.231	1.498
ORNL	树脂珠	1.366	60.232	22.635	11.529	4.239	1.492
平 均		1.392	60.221	22.625	11.538	4.226	1.497
标准差		0.044	0.060	0.019	0.061	0.014	0.007

力反应堆和核燃料发展有限公司 (PNC) 在 Tokai 经营的核燃料回收厂的样品。然后把这树脂珠样送往 ORNL 和 IAEA 两处进行分析。在 PNC 用他们的标准方法分析了相同的样品, 并把其溶液蒸发后的干残渣送往 IAEA 进行分析以作比较。结果见表 2。从表 2 所列数值的极相一致可以看出, 在用其他技术难于取样的场合, 用本文所述技术是可行的。特别需提

及的是, 两组树脂珠的分析结果与常规方法所得两组结果之间没有统计学差别。

国际防护措施方案采用这种技术, 结果是降低了运输费用, 减少了因接触大量样品受到照射引起的健康危害, 而所得资料的质和量却没有受到影响。

(罗明泉节译 章仲侯审校)

## 吸入螯合剂对田鼠体内 $^{239}\text{PuO}_2$ 的促排作用

Stather JW et al, Health Phys 42(4):520~525, 1982 (英文)

$^{239}\text{PuO}_2$  粒子被吸入以后,  $^{239}\text{Pu}$  转移入血的量受肺中直径 1 $\mu\text{m}$  左右的粒子形成的影响, 有的作者认为这些粒子是由于辐解碎裂所产生的。已经证实 DTPA 或其亲脂性衍生物 Puchel 的气溶胶吸入对排除在此过程中形成的可转移的  $^{239}\text{Pu}$  和大部分滞留在肺泡巨噬细胞中的  $^{239}\text{Pu}$  有效。本文报告动物吸入多分散相的  $^{239}\text{PuO}_2$  气溶胶后延迟给药对排除  $^{239}\text{Pu}$  的效果。

作者介绍了材料的准备及实验方法。用雄性田鼠做两个实验。

第一个实验, 动物吸入  $^{239}\text{PuO}_2$  气溶胶 (AMAD

0.82 $\mu\text{m}$ , 6g2.23)。将一组动物于吸入后 7 天活杀, 作为开始螯合剂治疗时  $^{239}\text{Pu}$  在肺与其它组织中分布的参考资料。随后各组田鼠用 DTPA、Puchel 或两者的气溶胶每周或每月吸入一次直至 147 天, 所有动物于 154 天活杀。对照组以同样条件吸入水蒸气。

对照组的肺含量在 154 天时已排出第 7 天时含量的 60% (表 1), 其中约有 95% 系通过纤毛向上输送随后由粪便排出的, 残余部分由肺转移至其它组织或由尿排出。此时转移入血的总量 (约为第 7 天肺含量的 4.7%) 与这个时期  $^{239}\text{PuO}_2$  混悬液中可超滤部分的