

# 我国核化学与放射化学研究进展

孙雪杰, 张生栋\*, 黄昆, 余振华, 马恩钊, 刚发源, 杨素亮, 王秀凤, 丁有钱

中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413

**摘要:** 核化学与放射化学是保障国家核安全以及核能可持续发展的基础性学科之一。本文论述了我国核工业创建 70 年来在核化学与放射化学领域的主要研究成果, 重点介绍了在裂变化学、核数据测量、短寿命核素快化分离、长寿命痕量核素分离测试、制源制靶、新核素制备及医用同位素制备方面的技术研究进展, 并结合我国核能可持续发展对核化学研究的要求, 展望了学科未来的重要方向。

**关键词:** 裂变化学; 核数据测量; 放化分离分析; 核素制备

中图分类号: O6-1; O615

文献标志码: A

文章编号: 0253-9950(2025)04-0295-18

doi: [10.7538/hhx.2025.47.04.0295](https://doi.org/10.7538/hhx.2025.47.04.0295)

## Research Advance of Nuclear Chemistry and Radiochemistry in China

SUN Xue-jie, ZHANG Sheng-dong\*, HUANG Kun, YU Zhen-hua, MA En-zhao, GANG Fa-yuan,  
YANG Su-liang, WANG Xiu-feng, DING You-qian

Department of Chemistry, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China

**Abstract:** Both nuclear chemistry and radiochemistry are fundamental disciplines, which play a vital role in national nuclear safety and sustainable development of nuclear energy. Nuclear chemistry and radiochemistry use chemical methods to study nuclear properties and use nuclear properties to study chemical phenomena. The research scopes involve the structures of nuclear, the laws of nuclear transformation, and the chemical effects during nuclear transformation. The development of nuclear chemistry and radiochemistry is extremely important for national security. It is the fundamental support for the continuous development of nuclear basic research, nuclear fuel cycle system improvement, nuclear energy development, nuclear technology application and other fields. The nuclear chemistry and radiochemistry in China originated in the 1950s, which has gradually grown and developed alongside national defense construction and the utilization of nuclear energy. This article reviews the main research achievements in the fields of nuclear chemistry and radiochemistry in the past 70 years since the establishment of China's nuclear industry. The progress of techniques and researches were focused on fission chemistry, nuclear data measurement, rapid separation of short-lived nuclides, separation and determination of long-lived trace nuclides, target preparation, synthesis of new nuclides, and preparation of medical isotopes. Combined with the requirements of sustainable development of nuclear energy for nuclear chemistry research, the future directions are also prospected. Nuclear chemistry and radiochemistry, as fundamental disciplines for the development of nuclear energy and the application of

nuclear technology, will focus on the fission chemistry of plutonium and transplutonium elements, rapid radiochemical separation technology for short-lived nuclides, design of new ligands and functional materials, and mechanisms for the separation and purification of radioactive nuclides in the future. Although the development of nuclear chemistry and radiochemistry in China is currently rapid, there is still room for improvement in terms of theoretical innovation and technological innovation. Compared with foreign countries, previous work in China has placed more emphasis on application-oriented research and insufficient attention on basic research, which has to some extent affected China's original innovation capability in the field of nuclear chemistry and radiochemistry. The overall research level still lags behind that of the United States, Europe, and Japan. Therefore, researchers in nuclear chemistry and radiochemistry should continue to explore the cross application of radioanalytical chemistry methods in emerging fields and to expand interdisciplinary research. With the increasing emphasis on innovative development in China, basic research related to nuclear chemistry and radiation will see rapid and significant progress.

**Key words:** fission chemistry; nuclear data measurement; radiochemical separation analysis; nuclide preparation

核化学与放射化学作为探索物质世界规律、支撑核科学技术发展的基础理论学科之一,是一门极具生命力的前沿科学,主要利用化学的方法研究核性质、核结构、核转变规律及核转变的化学效应。核化学与放射化学在我国国家安全中发挥了重要作用,是核基础研究、核燃料循环体系完善、核能开发、健康中国、核技术应用等领域持续发展的理论先导和技术支撑。

我国的核化学与放射化学学科始于20世纪50年代,并伴随国防建设及核能的利用而逐步发展壮大。该学科在核工业的发展过程中大体经历了三个阶段:从20世纪50年代到60年代,我国开始建立并完善核工业体系,1955年国家做出创建核工业的战略决策后,中国科学院近代物理研究所等研究所开展早期科研探索,北京大学、清华大学、复旦大学、中国科学技术大学和兰州大学等高校设置放射化学专业,并培养了大批国家急需的放射化学人才;20世纪60年代至21世纪初,围绕着国防建设和核能发展需求,研究聚焦于核数据测量、核燃料生产和辐照核燃料后处理,我国放射化学步入快速发展阶段;2000年之后,重心逐步转移到核能可持续发展和核技术应用,特别是与核医学、环境安全、前沿科学的结合,放射化学在新兴领域的交叉应用不断深化<sup>[1-2]</sup>。

中国原子能科学研究院(以下简称原子能院)自建院之初即开启了核化学与放射化学研究,70年来,从国防建设相关研究到核能“三步走”

战略稳步推进,先后完成多项国家重点任务,推动了核化学与放射化学学科建设,为我国国防安全和核能可持续发展做出了重要贡献。

本文综述了我国核化学与放射化学在裂变化学、核数据测量、快速放化分离、痕量核素分析、制源制靶技术及核素生产制备六个重要分支的研究工作和成果,并对今后的发展趋势和研究方向进行展望。

## 1 裂变化学

裂变化学是核化学的重要分支,以可裂变核素和裂变产物为研究对象,以裂变规律为研究目的,以放化法为主并结合核物理技术为研究手段。其系统性研究始于美国的曼哈顿计划,而我国则于20世纪60年代初由原子能院首先开始了裂变化学研究。裂变产额是重要核参数,原子能院放化组取得了包括中子源制备、裂变产额测量等诸多辉煌的成就,并获得了中子诱发<sup>235,238</sup>U、<sup>232</sup>Th、<sup>252</sup>Cf、<sup>239</sup>Pu等锕系元素的裂变产额数据。化学形态方面的研究则集中在核燃料后处理流程多价态裂变产物,原子能院、清华大学等开展了相当多的工作;近年来随着新型反应堆的发展,燃料元件中裂变产物的化学行为和分布研究增多,以清华大学和中国科学院上海应用物理研究所(以下简称上海应物所)为主。西北核技术研究院(以下简称西核所)在裂变产物的分凝效应方面有一定研究基础。

## 1.1 裂变产额测量

中子诱发铀钚等重核裂变的裂变产额是绘制质量分布曲线、检验理论模型的基础,更为研究核结构和裂变机制提供关键信息,并且在裂变能耗测定、反应堆设计运行、核燃料后处理、辐射防护设计等方面有重要应用。

自裂变现象发现以来,人们从未停止过对裂变产额的研究。早期由于核辐射测量技术的限制,对核素的放化分离要求极高,为此原子能院先后建立多种裂变产物的放化分离分析方法,郭景儒<sup>[3]</sup>在《裂变产物分析技术》中进行了详细综述。随着放化法、中子活化分析、直接 $\gamma$ 能谱法、质谱法等测定技术的发展,以及绝对测量技术研究的深入,我国逐步开展了不同能量中子诱发<sup>235</sup>U裂变关键核素产额的精准测量,并扩展至其他锕系元素(<sup>232</sup>Th、<sup>252</sup>Cf、<sup>239</sup>Pu等)裂变化学研究。近年来,人工智能发展迅猛,基于机器学习方法对核数据进行分析,对精度不足、不完整、有分歧的裂变产额数据进行研究评价成为新兴的研究方向。

原子能院在<sup>235</sup>U、<sup>238</sup>U、<sup>232</sup>Th、<sup>252</sup>Cf等核素的裂变性能方面开展了大量的研究工作,绘制出不同能量中子诱发<sup>235</sup>U、<sup>238</sup>U裂变产物的质量分布曲线,数据精度达到或超过国外同类工作水平。张生栋等<sup>[4]</sup>利用反冲捕集-中子活化分析法测定热中子诱发<sup>235</sup>U裂变<sup>135</sup>Cs裂变产额为(6.34±0.46)%。余润兰等<sup>[5]</sup>应用放化法首次测定了<sup>252</sup>Cf自发裂变中114链产额,确定了质量数A=113处存在精细结构,澄清了轻峰质量分布有无精细结构的分歧。2000年以后,原子能院采用直接 $\gamma$ 能谱法开展了单能中子(0.57、1.0、1.5、19.1、22 MeV)诱发<sup>235</sup>U的裂变研究<sup>[6-10]</sup>,绝对测量了<sup>95</sup>Zr、<sup>140</sup>Ba、<sup>147</sup>Nd和<sup>99</sup>Mo等关键裂变产物的产额,并将国际上数据精度提高到3%~5%;采用放化法研究了裂变谱中子、3 MeV和14 MeV中子诱发<sup>235</sup>U裂变时<sup>156</sup>Eu和<sup>161</sup>Tb的产额。2020年,采用贝叶斯机器学习方法对所有收集到的中子诱发<sup>235</sup>U裂变产额实验数据进行分析评价,基于该评价方法给出了关键裂变碎片(<sup>97</sup>Zr、<sup>127</sup>Sb、<sup>131</sup>I等)的产额-能量关系<sup>[11]</sup>。这些工作为我国裂变化学研究奠定了理论和实验基础,对研究<sup>239</sup>Pu的裂变化学及数据测量有指导意义。

美欧等核大国开展了大量钚裂变化学研究工

作,目前国际五大核数据库的评价数据主要来源于他们发表的实验值。国内对Pu的裂变化学研究起步较晚,缺乏实验数据,限制了核能的应用和发展。自2010年开始,张生栋团队启动了钚的裂变化学和核数据测量工作,攻克了克量级铀中微克量钚的分离技术<sup>[12]</sup>,首次采用核化学方法制备出超高丰度的<sup>239</sup>Pu样品。之后,该团队为测谷区裂变产物产额,建立了Pu及Pd、Ag、Cd、Sn、Sb、Zr的系统分离方法<sup>[13]</sup>,并将放化法与直接 $\gamma$ 能谱法相结合,初步测定了热堆谱中子诱发<sup>239</sup>Pu的裂变质量分布、裂变/俘获截面。刘世龙等<sup>[14]</sup>采用 $\gamma$ 能谱相对测量法,测量了热中子诱发<sup>239</sup>Pu裂变中<sup>88</sup>Rb、<sup>95</sup>Y、<sup>101</sup>Mo等短寿命裂变产物核素的累积产额,多次实验数据精度好于5%。2020年之后,西核所基于西安脉冲堆跑兔系统,开展了热中子诱发<sup>239</sup>Pu裂变的<sup>85</sup>Kr<sup>m</sup>、<sup>87</sup>Kr和<sup>88</sup>Kr的产额测量研究<sup>[15]</sup>。Pu裂变化学的研究工作为掌握自主数据、澄清分歧、支持核能发展奠定了基础。

随着核技术、核电子学以及人工智能的快速发展,目前对于裂变产额的研究趋向于不经过化学分离的高精设备直接测量或通过机器学习进行的模拟预测。但对于产额低的谷区和两翼核素,直接测量难度极大,放化分离仍是获得其裂变产额实验数据的可靠方法,也是机器学习所需的基础数据来源。

近年来美国开展了单能中子诱发<sup>235</sup>U、<sup>238</sup>U和<sup>239</sup>Pu产额测量工作,并对前面几十年的实验数据进行汇总和重新评价,并建议针对特定核素的产额与能量关系(如<sup>95</sup>Zr、<sup>99</sup>Mo、<sup>144</sup>Ce和<sup>147</sup>Nd),开展新的实验测试。鉴于我国在钚及超钚元素上开展的研究工作较少,所获得的数据难以支撑核能发展、核测试和核取证的需求,亟需获得自主数据,追赶国际先进水平。我国后续应统筹开展<sup>239</sup>Pu的裂变化学及基础数据研究,重点开展不同能量中子诱发重核裂变的关键核素产额-能量关系研究,以及与分离嬗变相关的次锕系元素<sup>237</sup>Np、<sup>238</sup>—<sup>242</sup>Pu、<sup>241</sup>Am、<sup>248</sup>Cm等核素的裂变机理、质量分布、激发曲线、精细结构、中子吸收截面等方面的研究。

## 1.2 裂变产物化学形态

裂变产物化学形态取决于元素性质和环境条件,且与热原子化学和高温化学反应密切相关,

能够反映裂变产物在不同条件下(燃料元件、冷却剂、自然环境等)的分布规律和行为特征,这对燃料棒破损诊断和核事故后果分析至关重要。此外,通过计算机程序模拟裂变产物的释放和迁移规律,可以评估核电厂事故对环境和公众健康的潜在影响。因此,裂变产物化学形态研究在核燃料后处理溶解及萃取分离工艺、反应堆燃耗测量、环境监测和核事故应急响应中发挥关键作用。

尽管我国在裂变产物化学形态研究方面已取得一定进展,但与国外差距较大。国际上对裂变产物的化学形态研究主要集中在气体裂变产物、多价态的金属裂变产物等在其生成瞬间所受到的反冲、价态的变化,以及主要裂变产物在后处理工艺过程的化学形态的研究。国内相关研究始于原子能院,王方定院士在20世纪80年代开展了多价态裂变产物化学状态和自发裂变电荷分布的研究,为我国核工业的发展提供了重要的理论基础和技术支持。原子能院Qi等<sup>[16]</sup>分析了<sup>252</sup>Cf自发裂变时Te的化学形态,否定了国外报道裂变产物在低能区会形成中性粒子的观点。针对裂变气体的释放,西核所李雪松等<sup>[17]</sup>研究了溶液蒸干靶、粉状靶和块状靶中裂变气体产物氪、氙的释放,三者差异较大,说明裂变气体的释放与靶件的化学形态密切相关。

随着动力堆燃耗的增加,高产额裂变产物化学形态和行为研究引起高度重视。我国开展了核燃料后处理时关键核素在PUREX流程的化学形态研究,原子能院林灿生<sup>[18]</sup>详细论述了Zr、Nb、Ru、Mo、I等裂变元素的化学状态和行为,并分析了高产额裂变产物之间化学行为的相互影响,这对核燃料后处理流程优化至关重要。清华大学朱永瞻院士开发了三烷基氧膦(TRPO)萃取流程,并系统地研究了TRPO对高放废液中U、Pu、次锕系元素、裂变产物等的萃取行为和规律。兰州大学Jia等<sup>[19]</sup>建立了乏燃料溶解液中所有形态<sup>129</sup>I的逐级分离分析流程,包括I<sub>2</sub>、I<sup>-</sup>和IO<sub>3</sub><sup>-</sup>等游离态<sup>129</sup>I、胶体态<sup>129</sup>I与总<sup>129</sup>I,并首次报道了游离态与胶体碘形成机理之间的关联性以及模拟溶解过程中各形态碘形成的动态平衡等现象。

裂变产物在核燃料中的微观结构和形态分布与反应堆类型、燃耗深度等密切相关。近年来随着第四代核反应堆系统(高温气冷堆、钍基熔盐

反应堆)的开发,清华大学、上海应物所等单位开展了裂变产物在燃料元件中的行为形态及扩散分布的研究。目前高温反应堆裂变产物形态分为:原子态、分子态、气溶胶,清华大学杨辰<sup>[20]</sup>为此开展了裂变产物Cs、Sr、Ag、I的释放、吸附、沉积行为的多尺度研究,为裂变产物的源项分析及其在燃料元件中的释放研究提出新方法;Li等<sup>[21]</sup>分析了高温气冷堆主回路中Cs、Sr、Ag和I在不同条件下的化学形态,如Cs在250℃时主要为Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>,750℃时为气态CsOH,若发生事故则会形成其他化合物。刘马林等<sup>[22]</sup>开展了乏燃料颗粒中裂变产物分布与迁移研究,探索了核素在燃料颗粒各层中的滞留情况。上海应物所正在研发钍基熔盐堆核能系统,李晴暖团队<sup>[23-24]</sup>研究了熔盐堆内<sup>95</sup>Nb等贵金属裂变产物的行为,考察了FLiBe熔盐中<sup>99</sup>Mo、<sup>103</sup>Ru和<sup>132</sup>Te的沉积和分布规律,该团队还研究了FLiNaK熔盐中CsF(液态燃料盐中Cs主要存在形态)的蒸发与分离,为钍基熔盐堆的安全运行奠定基础。

随着核能技术的发展和环境保护需求的提高,裂变产物的化学形态研究也将面临新的机遇和挑战,未来的研究重点关注多价态裂变产物Mo、I、Tc、Ru等的化学形态变化和分布;贵金属裂变产物合金颗粒的形成机理、回收方法等;低熔点裂变产物(如氙)和挥发性裂变产物(如碘)的释放动力学、热效应研究。此外,通过模拟和实验研究,将会更好地预测和控制裂变产物的释放,从而提高核反应堆的安全性和效率。

### 1.3 裂变产物分凝

裂变产物的分凝是核爆炸中的固有现象。高温高压下,核爆爆心的物质可能被等离子体化或汽化,发生复杂的化学反应;在之后的冷凝沉降过程中,由于裂变产物的化合态和挥发性不同,导致其在不同尺度和性质的载体粒子上的分布发生变化,从而使核爆放射性沾染场与爆炸体系中的裂变产物比例有所差异。分凝效应对评估给定核爆袭击情景下的预期伤亡起到关键作用,因此,在核威胁、核事故、核扩散的危险依然存在的今天,开展核爆炸裂变产物分凝研究和放射性沉降预测研究十分必要。

海军陆战学院的郭立军等<sup>[25]</sup>为研究核爆粒子中放射性核素分凝的影响因素和规律,构建了核爆粒子计算模型,计算了典型的挥发性质量链

89 和难熔性质量链 95 上的核素在不同粒径的粒子中的含量, 给出了挥发性核素全面分布特征、难熔性核素呈体分布特征、粒子粒径和冷凝温度对样品中放射性活度分布有较大影响等结论。清华大学和西核所<sup>[26]</sup>模拟了核爆炸烟云上升过程, 计算了粒子沉降速率及水平扩散情况, 重点考察了在特定粒径分布下 Miller 热力学模型、Freiling-Tompkin 半经验模型(简称 F-T 模型)及玻璃体-晶体模型(简称 G-X 模型)三种分凝模型对不同粒径的粒子中放射性核素含量分布及其对近区剂量场预报结果的影响。曾斌等<sup>[27]</sup>开展了钚材料分散沉降颗粒物中 Pu 和 Am 在中性水中的行为研究。王玉民等<sup>[28]</sup>研究了在事故状态下二氧化钚放射性微粒的粒度特征和扩散行为, 放射性自显影结果显示氧化钚是以亚微米级微粒为主的放射性粒子群。

裂变产物的沉降预测研究与分凝效应息息相关。我国在核试验中曾经采用稳定烟云模型研制了一个沉降预测模型, 在垂直方向分为 64 层。郑毅<sup>[29]</sup>采用 Euler 方法发展了长距离放射性沉降模型, 计算了一次核试验在中国大陆范围的放射性沉降过程。总体来说, 目前研发的模型适用范围有限, 准确性有待提高。

早期技术水平有限, 采用的是经验方法, 理论模拟与实际结果符合性较差。现在虽然不能再进行大气层核试验, 但随着对裂变化学、热力学等认识的加深及计算机技术的发展, 开始考虑多重因素的影响, 模型也不断优化迭代, 有望发展出更加简易准确的分凝预测模型。

## 2 核数据测量

核数据包含核反应数据、核结构及放射性衰变数据, 是核科学和核工程研究应用的关键基础参数。核数据的准确性、精度及可靠性对核电及研究堆设计、医用同位素制备等领域的发展至关重要。目前我国对半衰期、发射几率、反应截面等核数据开展了大量研究工作。

### 2.1 半衰期测量

从 20 世纪末开始, 我国开展了放射性核素半衰期的测定。研究初期, 半衰期测量主要瞄准半衰期适中、活度易测量的中等寿命核素。随着快速化学分离方法及质谱法等测试技术的发展, 半衰期测量向两极发展, 即短寿命核素测量延伸到分秒级、长寿命核素向 10<sup>5</sup> 年拓展。

原子能院张生栋团队在核素半衰期测量方面开展了大量工作<sup>[30-46]</sup>, 具体列于表 1。采用放化法、电感耦合等离子体质谱法和加速器质谱法精确测量了<sup>126</sup>Sn、<sup>79</sup>Se、<sup>93</sup>Zr、<sup>182</sup>Hf 等长寿命核素的半衰期, 其中, <sup>93</sup>Zr 的半衰期是国际上首次用实验方法获得的准确测量值, 填补了数据空白; 采用液闪法测定了<sup>151</sup>Sm 的半衰期。并利用自动快速化学分离方法, 测定了<sup>89</sup>Rb、<sup>90</sup>Rb、<sup>88</sup>Kr、<sup>97</sup>Zr、<sup>101</sup>Tc、<sup>132</sup>I、<sup>175</sup>Hf 等的半衰期, 丰富了核数据库。原子能院物理所开展了低温金属环境中<sup>7</sup>Be、<sup>198</sup>Au、<sup>210</sup>Po 等核素半衰期变化的实验研究, 结果表明, 金属环境中温度对部分核素半衰期的影响可观测到<sup>[47-49]</sup>。

此外, 中国科学院近代物理研究所(以下简称

表 1 原子能院核素半衰期测量工作

Table 1 Measurement of half life for radioactive nuclides by CIAE

核素	半衰期 $T_{1/2}$	测量方法	时间	核素	半衰期 $T_{1/2}$	测量方法	时间
<sup>126</sup> Sn	(2.5±0.2)×10 <sup>5</sup> a	放化法	1996 <sup>[30]</sup>	<sup>151</sup> Sm	(96.7±2.8) a	TIMS+ICP-AES+LSC	2009 <sup>[39]</sup>
	(2.48±0.26)×10 <sup>5</sup> a	ICP-MS	2000 <sup>[31]</sup>	<sup>175</sup> Hf	(70.73±0.25) d	放化法	2017 <sup>[40]</sup>
<sup>79</sup> Se	(4.8±0.4)×10 <sup>5</sup> a	放化法	1995 <sup>[32]</sup>	<sup>97</sup> Zr	(16.755±0.013) h	直接γ能谱法	2006 <sup>[41]</sup>
	(1.13±0.17)×10 <sup>6</sup> a	AMS 法	1996 <sup>[33]</sup>	<sup>88</sup> Kr	(2.796±0.015) h	放化法	2020 <sup>[42]</sup>
<sup>93</sup> Zr	(2.95±0.38)×10 <sup>5</sup> a	AMS 法	2001 <sup>[34]</sup>	<sup>132</sup> I	(2.283±0.002) h	放化法	2006 <sup>[43]</sup>
	(2.80±0.36)×10 <sup>5</sup> a	AMS 法	2004 <sup>[35]</sup>	<sup>101</sup> Tc	(14.02±0.01) min	放化法	2010 <sup>[44]</sup>
<sup>182</sup> Hf	(2.78±0.18)×10 <sup>5</sup> a	AMS 法	2014 <sup>[36]</sup>	<sup>89</sup> Rb	(14.41±0.04) min	放化法	2013 <sup>[45]</sup>
	(1.13±0.11)×10 <sup>6</sup> a	MC-ICP-MS	2010 <sup>[37]</sup>	<sup>90</sup> Rb	(160.50±0.47) s	放化法	2023 <sup>[46]</sup>
<sup>182</sup> Hf	(9.09±0.22)×10 <sup>6</sup> a	MC-ICP-MS	2010 <sup>[38]</sup>				

注: ICP-MS 为电感耦合等离子体质谱法; AMS 法为加速器质谱法; MC-ICP-MS 为多接收器电感耦合等离子体质谱法; TIMS 为热电离质谱法; ICP-AES 为电感耦合等离子体原子发射光谱法; LSC 为液-固色谱法

近代物理所)在制备新核素的研究中,积累了大量新核素的半衰期参数,建立了 $^{128}\text{Pr}$ 、 $^{129,130}\text{Ce}$ 等十种核素较完整的衰变纲图,测定了 $^{235}\text{Am}$ 、 $^{239}\text{Pa}$ 、 $^{237}\text{Th}$ 、 $^{259}\text{Db}$ 、 $^{265}\text{Bh}$ 、 $^{94}\text{Ru}^m$ 的半衰期<sup>[50-55]</sup>。西核所测定了 $^{240}\text{Am}$ 、 $^{94}\text{Y}$ 和 $^{95}\text{Y}$ 等核素的半衰期<sup>[56-57]</sup>。

近年来,欧美国家以多国、多机构合作的方式,在短寿命核素半衰期实验测量方面开展了大量的工作,突破了秒级( $^{26}\text{Al}^m$ 、 $^{85}\text{As}$ 、 $^{30}\text{S}$ 等)、毫秒级核素( $^{34}\text{Ar}$ 、 $^{62}\text{Ga}$ 、 $^{74}\text{Rb}$ 等)半衰期测定,俄罗斯开展了微秒级放射性核素的测量,获得 $^{214}\text{Po}$ 半衰期为 $(163.8\pm3.0)\mu\text{s}$ 。我国目前具备了开展半衰期小于分钟量级的核素分离和测量能力,但在更微尺度的半衰期测量研究方面还有极大潜力。今后,随着快化分离和痕量长寿命测试技术的发展,我国将不断拓展半衰期测量极限,向更短寿命、更长寿命的两极发展,并提高数据的精确度。

## 2.2 发射几率测量

放射性核素发射几率的研究集中于 $\gamma$ 射线发射几率或衰变过程伴生的X射线发射几率的测量。 $\gamma$ 射线的发射几率多数情况下难以通过实验探测直接获得,通常通过测量 $\gamma$ 射线相对强度和核素衰变纲图,根据数据分析评价得到。黄小龙等<sup>[58]</sup>对 $\gamma$ 射线发射几率的各种计算方法进行分析,并给出相应的不确定度计算方式。

原子能院测定了 $^{88}\text{Kr}$ 、 $^{142}\text{La}$ 、 $^{147}\text{Nd}$ 、 $^{155}\text{Eu}$ 、 $^{161}\text{Tb}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{131}\text{I}$ 等核素的主要 $\gamma$ 射线发射几率,西核所给出了 $^{87}\text{Kr}$ 、 $^{101}\text{Mo}$ 、 $^{123}\text{Xe}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{173}\text{Lu}$ 、 $^{174}\text{Lu}^g$ 、 $^{181}\text{Hf}$ 、 $^{182}\text{Ta}$ 等核素的主要 $\gamma$ 射线发射几率,并测量了 $^{75}\text{Se}$ 和 $^{113}\text{Sn}$ 的主要 $\gamma$ 射线和KX射线发射几率,相关研究成果见表2<sup>[59-70]</sup>。对于 $^{88}\text{Kr}$ 等短寿命的裂变产物,原子能院搭建了与反应堆跑兔系统连接的Xe/Kr分离装置用于自动化 $^{88}\text{Kr}$ 分离,并测定 $^{88}\text{Kr}$  $\gamma$ 射线发射几率。师全林等<sup>[69]</sup>在原子能院串列加速器上利用20 MeV质子辐照金属Yb制备含 $^{173}\text{Lu}$ 和 $^{174}\text{Lu}^g$ 的放射性溶液,采用热表面电离质谱及激光共振电离质谱定量浓度后,通过7年测量,获得 $^{173}\text{Lu}$ 和 $^{174}\text{Lu}^g$ 可靠的半衰期及 $\gamma$ 射线发射几率。

## 2.3 反应截面测量

中子反应截面是核反应数据中非常重要的核参数,对于中子活化分析、长寿命放射性核素分离-嬗变等具有指导意义。

20世纪60年代,原子能院叶春堂等<sup>[71]</sup>使用

单能热中子束与载铀载硼原子核乳胶,开展了 $^{235}\text{U}$ 裂变截面的测量,解决了研究分歧。随着可转化核素 $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$ 设计燃料增殖堆的发展, $^{233}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 的热中子截面数据研究日益成熟,可作为热中子能区参考标准。周蕙明等<sup>[72]</sup>用晶体谱仪获得单能热中子束,测量了 $^{233}$ 、 $^{235}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 的裂变截面。随后,热中子反应截面的研究逐步延伸至裂变产物和活化生成的长寿命核素。Zhang等<sup>[73]</sup>通过阴离子交换法和PbS共沉淀从高放废液(HLLW)中无载体分离 $^{126}\text{Sn}$ ,并利用重水反应堆辐照,国际上首次测定了 $^{126}\text{Sn}(n,\gamma)^{127}\text{Sn}^g$ 和 $^{126}\text{Sn}(n,\gamma)^{127}\text{Sn}$ 的热中子反应截面。钱丽娟<sup>[74]</sup>测量的 $^{135}\text{Cs}$ 热中子反应截面为 $(2.58\pm0.80)\text{ b}$  ( $1\text{ b}=1\times10^{-28}\text{ m}^2$ )。蓝小浙<sup>[75]</sup>使用加速器质谱测量 $^{78}\text{Se}(n,\gamma)^{79}\text{Se}$ 的热中子反应截面为 $(0.35\pm0.05)\text{ b}$ 。

鉴于高放废物地质处置潜在的长期风险、分离-嬗变计划的提出,以及对反应堆燃耗的深度监测,我国逐步开展了不同入射能量中子对长寿命核素、超铀核素的反应截面研究。李泽等<sup>[76]</sup>测定了14.6 MeV中子诱发 $^{241}\text{Am}$ 的裂变截面为 $(2.44\pm0.11)\text{ b}$ ,倪建忠<sup>[77]</sup>测定了裂变谱中子引起的 $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242}\text{Am}^{g,m}$ 反应截面。

近年来,随着计算机技术的发展和人工智能应用的扩展,利用机器学习方法再现裂变截面阶梯结构并进行裂变截面数据分析成为核数据评价极具潜力的研究方向。最近,田源等<sup>[78]</sup>利用神经网络方法分析2~20 MeV中子诱发 $^{233}$ ~ $^{238}\text{U}$ 裂变数据,训练验证后的模型可以很好地再现实验数据,与评价数据基本保持一致,对于数据较少且未参与分析的 $^{232,239}\text{U}$ 裂变截面,模型也能预测出与美国ENDF/B-VII评价数据库较为接近的截面数据。

## 3 快速放化分离

快速放化分离技术是随着短寿命核素的准确分析测定需求而发展起来的,在短寿命裂变产物的核数据测量、新元素鉴定、超重元素合成及化学行为研究领域均有应用。国内目前对于快化分离的研究较为分散,应用范围也较窄,主要开展了基于核衰变性质分离、SISAK技术、气相色谱、在线同位素分离器等方面的工作。

### 3.1 基于核衰变性质的分离

大多数情况下,短寿命核素分离的关键是同

表 2 国内关键放射性核素发射几率测量工作

Table 2 Measurement of emission probabilities for key radioactive nuclides in China

核素	$\gamma$ 射线能量	发射几率/%	测试方法	单位	时间	参考文献
<sup>88</sup> Kr	2392.11 keV	34.3±1.1	HPGe探测器	原子能院	2014	[59]
<sup>142</sup> La	641.285 keV	47.3±0.5	4πβ-γ活度测量装置、HPGe探测器	原子能院	2010	[60]
<sup>147</sup> Nd	531 keV	13.11±0.17	4πβ-γ符合装置、HPGe探测器	原子能院	2002	[61]
<sup>155</sup> Eu	18.764 keV	0.048±0.002	4πβ-γ符合装置、小平面Ge探测器	原子能院	2003	[62]
	26.532 keV	0.346±0.011				
	45.297 keV	1.32±0.02				
	57.981 keV	0.067±0.003				
	60.009 keV	1.19±0.04				
	86.545 keV	30.35±0.52				
	105.305 keV	21.20±0.36				
<sup>161</sup> Tb	25.7 keV	23.27±0.53	4πβ-γ符合、低能光子谱仪	原子能院	2003	[63]
	8.9 keV	17.00±0.31				
	74.6 keV	10.01±0.19				
<sup>134</sup> Cs	569.32 keV	15.94±0.16	Ge探测器, 相对发射几率	原子能院	1992	[64]
	604.7 keV	100				
	795.85 keV	87.5±0.7				
	801.93 keV	8.96±0.08				
<sup>131</sup> I	80.18 keV	3.40±0.11				
	284.35 keV	7.80±0.28				
	364.57 keV	100				
	636.97 keV	8.88±0.20				
<sup>87</sup> Kr	402.6 keV	49.46±0.94	HPGe探测器	西核所	2010	[65]
<sup>101</sup> Mo	191.92 keV	18.07±0.19	γ谱仪(强度平衡法)	西核所	2006	[66]
	590.10 keV	19.28±0.41				
	877.39 keV	3.49±0.06				
	1012.47 keV	14.14±0.25				
<sup>101</sup> Tc	127.22 keV	2.60±0.03				
	306.83 keV	88.71±0.80				
	545.05 keV	6.07±0.08				
<sup>123</sup> Xe	148.9 keV	48.64±1.31	HPGe探测器	西核所	2011	[67]
<sup>134</sup> Cs	569.33 keV	15.42±1.43	4πβ+4πγ	西核所	2005	[68]
	604.72 keV	97.76±0.14				
	795.9 keV	85.3±1.4				
<sup>173</sup> Lu	78.63 keV	11.87±0.43	HPGe探测器	西核所	2016	[69]
	100.724 keV	5.24±0.19				
	272.105 keV	21.20±0.76				
<sup>173</sup> Lu <sup>m</sup>	44.683 keV	12.43±0.39				
	67.058 keV	7.25±0.22				
<sup>173</sup> Lu <sup>s</sup>	76.468 keV	5.93±0.28				
	1241.847 keV	5.14±0.13				
<sup>181</sup> Hf	482.0 keV	80.55±0.48	HPGe探测器	西核所	1994	[70]

位素之间的分离, 常规的化学分离手段难以实现, 因此基于核衰变性质设计分离流程, 借助母子体半衰期的关系, 通过控制辐照-冷却-分离时间得到目标核素, 这是核化学方法的特色, 也已成功

用于多种短寿命核素分离体系。

根据裂变产物及其前驱核的核衰变性质, 结合照射和冷却时间因素, 归纳裂变产物核素分离规律为: 长时间冷却-分离法、适中冷却-分离法、两

步延迟法、短照-快分法以及直接分离法,后三种方法主要用于短寿命核素快速放化分离,杨志红等<sup>[79]</sup>在综述中已做了详细阐述。张生栋团队开展了大量的快化分离技术研究和自动化装置研制工作:以两步延迟法规律为基础,实现了<sup>142</sup>La、<sup>132</sup>I、<sup>138</sup>Cs、<sup>91</sup>Sr、<sup>144</sup>La等裂变产物的分离<sup>[43,80-83]</sup>;以“短照-快分”规律为基础,制备了<sup>95</sup>Y、<sup>94-95</sup>Sr、<sup>94</sup>Sr放化纯样品<sup>[84-86]</sup>;为实现样品快速制备,研制了<sup>142</sup>La、<sup>91</sup>Sr、<sup>95</sup>Y等快化分离装置,满足了短寿命核素数据测量需求。

丁有钱等<sup>[80]</sup>用二(2-乙基己基)磷酸(HDEHP)作萃取剂,二甲苯作稀释剂,研究了分离<sup>142</sup>La的最佳条件,基于“两步延迟分离法”,该流程可消除<sup>143</sup>La的干扰,并通过快化分离大大降低<sup>141</sup>La的影响,整个分离流程在1 h以内完成。之后将短照与两步延迟分离相结合,升级为“三步分离法”,进一步降低了<sup>141</sup>La活度,制备了高活度、高丰度、无载体的<sup>142</sup>La样品<sup>[87]</sup>。杨志红等<sup>[82]</sup>将两步延迟分离原理与萃取色层法相结合,设计了2个萃取色层柱前后串联的快速分离流程,在100 s内可得到放化纯的<sup>91</sup>Sr。岳远振等<sup>[88]</sup>以两步延迟分离法为基础,采用抽气法直接从辐照靶内快速提取气体裂变产物<sup>90</sup>Kr,再利用水洗法提取子体<sup>90</sup>Rb,整个分离流程在2.5 min内完成,对主要杂质核素的去污因子可达 $1.0 \times 10^3$ 。崔春盛等<sup>[85]</sup>为准确测定<sup>94,95</sup>Sr的核参数,结合其自身和母核半衰期均较短,使用“短照-快分”方法成功制备出高活度、高纯度的<sup>94,95</sup>Sr样品,Sr的快化分离使用P204树脂分离U基质,然后使用Sr-Spec树脂选择性分离Sr,整个过程在1 min以内完成。

快化分离技术的关键在于“快”,基于核衰变性质的时间选择规律是设计短寿命核素分离流程的基础,但短寿命核素分离的另一个难点是要从成百上千种裂变产物核素中实现快速化学分离,近年来,SISAK技术在该方面展现了其优越性。

### 3.2 SISAK 系统

SISAK采用高速离心萃取技术,是目前使用最广泛的快速化学分离方法之一,尤其在短寿命核素的分离鉴别中发挥了重要作用。徐利军<sup>[89]</sup>建立了国内第一套基于SISAK技术的快速化学分离装置,利用SISAK技术从<sup>235</sup>U裂变产物中分离得到短寿命核素<sup>142</sup>La,验证了SISAK技术在快速化学分离中的优越性。叶宏生等<sup>[84]</sup>建立了SISAK与萃取色层相结合的<sup>95</sup>Y分离流程。白龙等<sup>[83]</sup>基于SISAK技术,建立了两步延迟分离原理与SISAK、萃取色层法相结合的<sup>144</sup>La快化分离流程,并利用<sup>140</sup>La模拟料液对该流程进行了验证,分离时间约为50 s。

原子能院与西核所联合研发,成功将SISAK两级离心萃取分离系统与反应堆、跑兔系统、取样装置相衔接,实现了短寿命核素快速放化分离全流程的自动化。杨建勋等<sup>[86]</sup>依据“短照-快分”的原则,采用“堆辐照+跑兔送样+SISAK分离”联用技术,建立了裂变产物中<sup>94</sup>Sr的全自动快化分离流程(图1),经热实验验证,全流程用时100 s,一次性获得了足够用于直接测量的短寿命裂变产物<sup>94</sup>Sr样品,该工作对半衰期为分钟量级裂变产物的核参数测定与衰变特性研究具有重要参考价值。

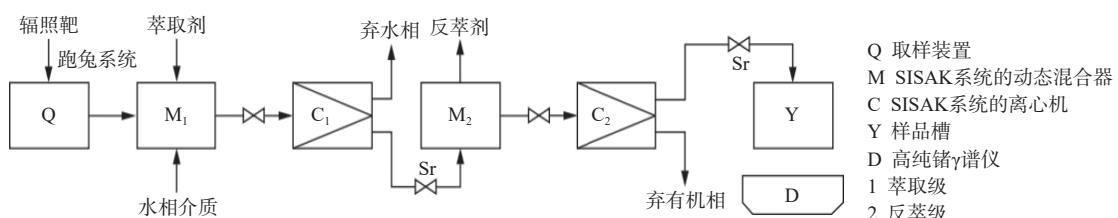


图1 SISAK 分离<sup>94</sup>Sr 示意图<sup>[86]</sup>

Fig. 1 Diagram of SISAK separation process for <sup>94</sup>Sr<sup>[86]</sup>

国外利用SISAK技术,成功分离了短寿命核素<sup>143-146</sup>La、<sup>145-148</sup>Ce和<sup>150</sup>Pr等,并对其半衰期、γ能谱和衰变纲图等基础核数据做了详细的研究,改进的SISAK系统可用于研究半衰期达到

1 s的放射性核素。并且,国外已将SISAK快速萃取装置结合快速固相萃取用于超重元素的分离和鉴定。而国内虽然开展了一定研究,但与国际前沿差距较大,还处于秒级放射性核素分离能力

的建设阶段。建立自主产权的 SISAK 系统, 分离更短寿命的裂变产物, 获得高精度的半衰期核数据, 将是我国 SISAK 技术努力的方向。

### 3.3 气相色谱

气相色谱的分离时间很短, 是核化学与放射化学研究中非常重要的快速分离技术。近几十年来, 气相色谱法在核科学的研究中的应用不断发展, 除了用于分离放射性核素, 亦能为短寿命核素的化学性质测定提供可能性, 尤其是半衰期为秒级或更短的超锕系元素。

气相色谱基于混合物中组分挥发性或在色谱柱中的吸附性不同进行分离, 包括热色谱法(TC)和等温色谱法(IC)。TC 是在固定的负温度梯度上传输分离放射性混合物, 其适用于多种核素分离, 但对色谱带的测量通常在分离完成之后才可进行, 不利于短寿命超锕系核素的测量。IC 是等温环境下的柱分离, 通过调节等温端温度可以调节核素滞留时间及分离情况, 结合后端探测, 获得产额或半衰期信息。

林茂盛等<sup>[90]</sup> 使用在线的 IC 装置对<sup>252</sup>Cf 自发裂变产生的<sup>99</sup>Nb( $T_{1/2}=15$  s)进行溴化反应并分离, 研究了 NbBr<sub>5</sub> 和 NbOBr<sub>3</sub> 的摩尔吸附焓。王洋<sup>[91]</sup> 将高纯 He/Ar 作为载气、CO 作为反应气充入<sup>252</sup>Cf 的反冲靶室并和<sup>252</sup>Cf 的部分短寿命裂变产物反应形成易挥发簇基化合物, 并传输至低温等温色谱, 从而研究了 Mo、Tc、Ru、Rh 等短寿命同位素簇基配合物的气相化学性质。同时通过国际合作, 利用日本理化研究所的 RILAC 加速器提供的束流进行<sup>248</sup>Cm(<sup>22</sup>Ne, 4n)<sup>265</sup>Sg 反应, GARIS 充气谱仪装置为分离器, 利用热色谱和等温色谱研究了 Sg 簇基配合物的气相化学性质。

气相色谱未来将在超锕系元素性质的研究、散裂反应产物的分离以及医用放射性核素的生产等方面继续发挥重要作用: 充分利用气相色谱的快速分离优势, 开发可用于极短寿命核素分离测定的体系; 研究裂变产物的气相化学性质; 将其与质谱等测量装置联用, 实现分子组成的直接测定。

### 3.4 在线同位素分离器

早期, 人工将靶中的核素转化为质谱测量的离子需几分钟甚至十几分钟。目前已发展了在线同位素分离器(ISOL), 从加速器或反应堆靶室出口引出管道连接立即分离和测量的质谱仪, 快

速电离靶中核素后根据荷质比分离同位素, 分离后处于不同位置的各个核素, 由不同的探测器进行测量, 从而连续不断地分离和测定半衰期很短的核素。

近年来我国在线同位素分离器已成功用于加速器上合成短寿命核素的分离鉴定研究, 如北京放射性核束装置在线同位素分离器(BRISOL)和兰州在线同位素分离器(ISOLAN)。原子能院牵头研制了北京放射性核束装置, 利用回旋加速器提供 100 MeV 能量、最大流强 200 μA 质子束与靶材进行核反应生成放射性核素, 并在线电离、引出和分析。在线同位素分离器(ISOL)装置是 HI-13 串列加速器升级工程中产生放射性核束及 13 MeV 串列加速器的注入部分, 将核反应获得的放射性核素在高温条件下迁移离靶并析出, 传送至离子源放电室电离为离子束, 通过分析磁铁快速分离筛选形成目标束流。该装置能产生多种放射性核束, 具有高质量分辨率的特点。目前, 北京放射性核束装置在线同位素分离器(BRISOL)已研究产生 K、Na、Al 的短寿命放射性同位素束流<sup>[92-94]</sup>, 为研究奇异原子核性质和探索核物理新规律提供重要平台。

## 4 长寿命痕量核素分离测试

长寿命痕量核素的分离测试研究是长寿命核素分离嬗变及核数据测量、高放废物地质处置、放射性污染场地治理、辐射环境安全评价、核取证及核应急研究等方面的基础。尤其是近年来, 各类环境样品中长寿命放射性核素的含量、同位素组成及其对环境安全和公众健康的威胁评估已成为核化学与放射化学的关注和研究热点。原子能院杨金玲等<sup>[95]</sup> 系统分析了长寿命痕量核素的前处理及分离方法、质谱技术等研究进展, 并提出今后研究重点和建议。

### 4.1 长寿命痕量核素分离研究

长寿命核素由于含量极少、比活度低, 其分离和制备十分困难, 早期常采用沉淀载带、萃取等方法。随着分离技术和测量仪器的发展, 过去难以测量的核素现在可获得准确快速的测量, 为此需要建立新的分离分析方法, 开发新的分离流程和特效功能分离材料。

为满足裂变产物中关键长寿命核素核数据测量的需要, 原子能院开展了大量样品预处理、分

离净化、分析测试的方法和技术研究,逐步建成长寿命核素分离测试研究平台。张生栋团队建立了硝酸体系中 DMG 色层柱、硅胶柱、Bis-II 色层柱联用的系统分离流程,实现了高放废液中<sup>79</sup>Se、<sup>93</sup>Zr 和<sup>107</sup>Pd 的高效分离<sup>[31,96-98]</sup>;建立了以强碱性阴离子交换树脂分离铀为基础,结合 PbS 沉淀载带痕量锡、磷酸锆离子交换剂吸附铯的方法,成功从辐照铀靶中分离了放化纯的<sup>135</sup>Cs 和<sup>126</sup>Sn 样品,用于热中子反应截面的测量<sup>[73]</sup>。

张生栋团队<sup>[99-101]</sup>还开展了环境样品(岩石)中痕量核素的分离研究,建立了胺类萃取体系分离 W(VI) 与超痕量 Hf(IV) 的方法,该法对毫克量级钨的去污因子为  $4.4 \times 10^7$ ,首次实现了岩石中飞克量级长寿命核素<sup>182</sup>Hf 的定量准确测量;建立了岩石样品中 N256-N256-P204 三柱法分离纯化 Cd 的流程,回收率大于 99%,对钯和锡的同量异位素去除因子大于  $4.0 \times 10^3$ ,成功制备出能准确测定镉同位素比值的高纯样品;研究了以氟化氢铵为消解剂的百克量级花岗岩的全溶解方法,建立了自制 *N,N'*-二甲基-*N,N'*-二辛基-3-氧杂-戊二酰胺(DMDODGA)树脂与阴离子交换树脂联用分离痕量镎的流程,对镎的回收率为 87.6%,对岩石基体元素和铀的去污因子均大于  $10^5$ 。吉艳琴<sup>[102]</sup>在原子能院开展了环境样品中痕量 U、Th、Np 和 Pu 的电感耦合等离子体质谱分析方法研究,在对土壤样品进行预处理后,采用三辛基氧膦(TOPO)萃取色层法分离了 U,采用三辛胺(TOA)萃取色层法分离了 Np,采用 TOA 萃取色层法和阴离子交换法分离了 Pu,实现了 Np 和 Pu 的同时分离测定。

近年来,国内在分离材料方面研制最多的是萃淋树脂,如 TBP 萃淋树脂、P204 萃淋树脂等已经实现商业化,合成了多种功能聚合物,并持续加深对特效功能树脂的自主开发应用,逐步摆脱对美国研制的 Sr、Tc、U、Ra 等特效分离材料的依赖。为了分离足够测量的长寿命痕量核素,通常需要溶解大量环境样品。为此,今后需关注目标痕量长寿命核素在溶解过程中的化学行为及形态;由于环境样品溶解液一般体积较大,且目标长寿命核素总量少,今后需重点开发新型特效功能吸附材料,根据元素的化学结构,通过键合和官能团等理论计算,开展特种萃淋树脂的结构选型和分析,实现痕量核素的高效分离。

## 4.2 长寿命痕量核素分析测试技术

长寿命核素含量常处于痕量或超痕量状态,放射性比活度很低,射线能量弱且测量干扰因素复杂,必须用低本底测量装置(如反康普顿谱仪和低本底液闪谱仪)或超低探测限质谱测量。20世纪初原子能院研制的反康普顿谱仪,对<sup>137</sup>Cs 点状薄膜源的最低可探测活度为 3.8 mBq,用于长寿命痕量核素放射性的测定<sup>[103]</sup>。但大多数长寿命核素放射性难以测准,可采用质谱法测量原子数,为此开发了多种先进的分析方法和技术。例如,多接收电感耦合等离子体质谱法(MC-ICP-MS)、加速器质谱仪(AMS)、激光共振电离质谱(LRIMS)等技术被广泛应用于痕量核素的检测与分析。这些方法具有高灵敏度、低检出限和高准确性等优点,大幅降低了对长寿命痕量核素放化分离的技术要求,能够满足特种样品、环境、食品、土壤等复杂基体中痕量放射性核素的分析需求。

ICP-MS 具有灵敏度高、样品源制作简单、样品通过率大、同位素丰度比可测等优点,在长寿命放射性核素的微量测量及其同位素组成分析中应用广泛,但 ICP-MS 通常会受到同量异位素、多原子离子及非待测元素强峰拖尾的影响。张生栋团队<sup>[31,104]</sup>优化了 ICP-MS 同位素丰度测量条件,校正了质量歧视效应,实现了<sup>93</sup>Zr、<sup>126</sup>Sn、<sup>79</sup>Se 原子数的准确测量。Cao 等<sup>[105]</sup>在 2016 年综述了利用 ICP-MS 快速检测海水样品中超痕量 Pu 的分析方法,总结了其他质谱和辐射检测方法与 ICP-MS 之间的对比。金玉仁等<sup>[106]</sup>研究了 ICP-MS 测定超痕量 Pu 时质谱干扰及干扰元素的去除,对钚的检出限为 43 fg,测定限为 88 fg。而用同位素稀释 ICP-MS 法测量钚时,对<sup>239</sup>Pu 的检出限降为 4.5 fg,定量测定限为 16 fg<sup>[107]</sup>。吉艳琴等<sup>[108]</sup>建立了土壤样品中 Pu 的快速分离方法,有效排除了<sup>238</sup>UH<sup>+</sup>和基体的干扰,<sup>239</sup>Pu 的检测限为 0.48 pg/mL(相当于 1.1 Bq/L),实现了用 ICP-MS 同时测量土壤样品中的<sup>239</sup>Pu 和<sup>237</sup>Np。2023 年,西核所汪伟等<sup>[109]</sup>基于 ICP-MS/MS 和 MC-ICP-MS,实现了 μg 级铀样品中  $10^{-7}$  量级<sup>233</sup>U/<sup>238</sup>U 铀同位素丰度比值的快速准确测量。

与常规质谱相比,AMS 把加速器和重离子探测器引入质谱分析法,有效提高了测量的丰度灵敏度,可以检测同位素丰度低于  $10^{-15}$  的放射性核

素, 样品用量少(一般为 1 mg 或者更少)。Fifield 等<sup>[110]</sup>用 AMS 测量了环境样品中钚的同位素量, 给出钚的探测限是  $10^6$  个原子。但样品制备过程复杂, 且难以完全排除同位素和同量异位素及其它本底的干扰。国内开展 AMS 研制或应用研究的单位主要有原子能院、北京大学、上海应物所和中国科学院地球环境研究所等。其中原子能院的加速器质谱装置自从 1989 年建立至今, 已经成功测量了<sup>126</sup>Sn、<sup>182</sup>Hf、<sup>10</sup>Be 等多种痕量长寿命核素, 蒋崧生等<sup>[33]</sup>用 AMS 测量了<sup>79</sup>Se 的半衰期。凡金龙<sup>[111]</sup>实现了某岩石样品中极低含量<sup>182</sup>Hf( $10^{-10}$  g/g)的测定, 这是国际上首次准确测定岩石样品中如此低含量的<sup>182</sup>Hf。

LRIMS 是一种将激光共振电离和质谱相结合的分析技术, 具有高选择性、高探测灵敏度和高丰度灵敏度等优点, 适用于复杂基体条件下超痕量核素分析需求。西核所自 20 世纪 90 年代开始着手研建 LRIMS 系统, 21 世纪初在相关技术研究的基础上, 建立了大量<sup>173</sup>Yb、<sup>174</sup>Yb 干扰下<sup>173</sup>Lu 和<sup>174</sup>Lu 同位素 LRIMS 定量分析技术<sup>[69]</sup>, 并在国际上首次测得<sup>173</sup>Lu 和<sup>174</sup>Lu 主要  $\gamma$  射线发射几率。2016 年自主研制了 LRIMS 装置, 沈小攀等<sup>[112]</sup>建立了 Sn 的 LRIMS 分析方法, 1  $\mu\text{g}$  Sn 的总探测效率达到  $3 \times 10^{-5}$  以上。2024 年王文亮等<sup>[113]</sup>综述了近年来该课题组基于自研的磁-电双聚焦激光共振电离质谱仪(如图 2), 进行复杂基体条件下超痕量、低丰度长寿命核素<sup>121</sup>Sn<sup>m</sup>、<sup>126</sup>Sn、<sup>233</sup>U、<sup>236</sup>U、<sup>238</sup>Pu 的分析研究, 实现了低丰度( $10^{-11}$  以下)铀同位素的测量; 钚对铀的元素选择性达到  $10^7$ , 在万倍<sup>238</sup>U 干扰下的 pg 级<sup>238</sup>Pu 分析中, 测量了四个

$10^{-5}$  量级的平行样品, <sup>238</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 相对标准偏差( $s_r$ )为 0.17%。

激光共振电离技术可与多种质量分析器(如磁质量分析器、飞行时间分析器、四极杆等)联用, 增大了 LRIMS 的多样性, 可以满足不同的应用场景。但仍需在高效制源、痕量核素原子化过程、共振光致电离等方面开展大量基础研究, 实现常规化分析测试。

## 5 制源制靶技术

制源制靶技术是核数据测量、放射性同位素制备、超重元素研制的核心, 靶化学形态及质量参数的优劣会直接影响核数据精度、核素纯度等。随着前沿科学的发展, 对制靶技术提出了更高的要求: 材料利用率高, 镀层均匀牢固、厚度可控、化学纯度高。但我国核靶制备领域发展较为缓慢, 早期核靶制备曾用滚轧、电喷雾、电泳和滴涂等方法, 目前最为常用的制靶方法是电镀(电沉积)和真空蒸镀, 仅有少数单位掌握相关技术。

近年来制靶的研究趋势是: 密度由低向高、底衬由厚向薄、形状由平面向异形。电镀法应用最广泛, 分为水溶液电镀及有机体系电镀(分子镀), 常用于微量(Bq 量级)锕系测量靶件的制备。我国主要有原子能院、近代物理所和中国工程物理研究院等单位开展相关研究, 实现了 Th、U、Pu、Am 等多种核素的靶件制备。为满足核数据测量需求, 原子能院杨春莉等<sup>[114]</sup>通过分子镀制备了  $100 \sim 200 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  的<sup>232</sup>Th 靶, 可实现<sup>232</sup>Th( $\alpha, 2n$ )<sup>234</sup>U 反应截面测量, 在并在此基础上研究了脉冲分子镀技术<sup>[115]</sup>, 制得了  $0.2 \sim 2.0 \text{ mg}/\text{cm}^2$  的铀靶; 孙晓祎等<sup>[116]</sup>通过沉积-煅烧多次电沉积的方法, 制备了厚度  $> 3 \text{ mg}/\text{cm}^2$  的双面铀靶, 可用于裂变产额测量, 实现了 4  $\mu\text{g}$  钚在直径  $\leq 5 \text{ mm}$  活性区的定量电沉积, 还研究了筒状铀靶以及超大面积铀靶的制备方法<sup>[117-118]</sup>; 原子能院还完成了分子镀<sup>237</sup>Np 靶的制备<sup>[119]</sup>等。中国工程物理研究院研究了超薄底衬分区靶、微区靶以及异型靶的制备, 电沉积制备了  $6 \text{ mg}/\text{cm}^2$  的平面<sup>238</sup>U 靶和  $2.6 \text{ mg}/\text{cm}^2$  的双层管状<sup>235</sup>U 靶<sup>[120-123]</sup>, 并建立了铀在金属基底上的分子镀仿真模型, 将厚度  $200 \sim 300 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  的圆形底衬靶件的不均匀性降低到 3% 以下<sup>[120]</sup>。近代物理所采用分子镀法制备质量厚度较高的镅(<sup>241</sup>,<sup>243</sup>Am)靶<sup>[124]</sup>以及制备薄铝箔上铀靶及一系列

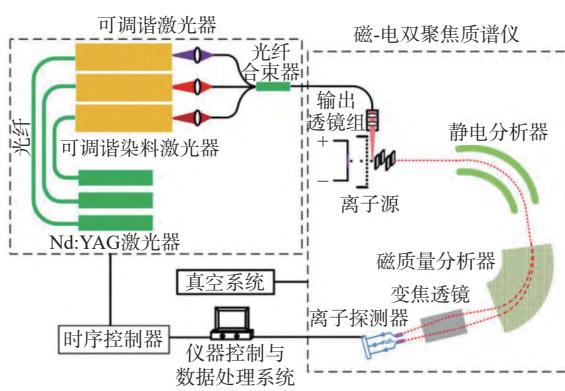


图 2 激光共振电离质谱装置结构示意图<sup>[113]</sup>

Fig. 2 Structure of laser resonance ionization mass spectrometry<sup>[113]</sup>

镧系靶件<sup>[125]</sup>。

真空蒸镀和磁控溅射均是物理沉积方法, 纯度高且均匀性好, 现阶段常用于制备核靶的稳定金属包覆层, 或者均匀性要求高的薄U靶、薄Th靶, 以补充分子镀技术的限制, 但靶材利用率较低, 限制了其在Am、Pu等稀少核素上的应用。中国科学院上海原子核研究所早期利用真空蒸镀法在铝箔、碳膜和VYNS膜上制备了20~100 μg/cm<sup>2</sup>的铀薄靶<sup>[126]</sup>; 为提高LRIMS中待测元素的原子化效率, 原子能院研究了痕量<sup>126</sup>Sn、<sup>237</sup>Np、Pu测量源的制备技术, 杨金玲等<sup>[127]</sup>确定了定量电沉积制备钚镀层、真空蒸镀法制备钛包覆层的路线, 该包覆钚源的原子化效率可达7.7%, 比直接滴源提高了3个数量级, 为激光共振电离质谱法高灵敏测量环境中痕量钚奠定了基础。磁控溅射高速、低温、低损伤, 成膜致密均匀且易制备多层或合金膜, 非常适用于惯性约束聚变(ICF)制靶。中国工程物理研究院鲜晓斌等<sup>[128-130]</sup>在铝薄膜上磁控溅射沉积了由金属铀和UO<sub>2</sub>组成的铀薄膜, 并分析了铀膜的生长模式为层状+岛状生长; 易泰民等<sup>[131]</sup>通过磁控溅射制备了微米级的纯金属态铀膜, 经表征分析, 铀与铝镀层存在界面扩散反应并形成了UAl<sub>2</sub>和UAl<sub>3</sub>合金相。

核靶领域未来需重点突破异形靶的制备, 加强制靶的机理和标准化研究; 分子镀技术是被国内外广泛采用的制备较高质量锕系元素源、靶的技术, 需在原有基础上深入研究和优化参数, 研究包括离子液体在内的新体系; 继续发展真空蒸镀与磁控溅射等传统技术, 开发聚合物辅助沉积、喷墨打印等新方法; 缩小与国外制靶技术的差距, 为高精度核数据测量分析奠定基础。

## 6 新核素、新元素合成及医用同位素制备

### 6.1 新核素合成

地球上目前存在的天然放射性核素和稳定核素分布于核素图上狭长的区域内, 通过在该区域中心绘制曲线即称为β稳定线。新核素的合成, 不仅可以探索核素存在极限, 验证并发展原子核模型和理论, 还可以增强对放射性核素的认识与应用。但新核素的合成极为困难, 一方面, 新核素合成利用的重离子熔合蒸发、弹核碎裂、重核间多核子反应等基础数据较少, 且反应截面小, 为提高产额需要开发建设大型试验装置。另一

方面, 新核素的分离和鉴别也极具挑战性, 有赖于强大的分离鉴定设备。

我国新核素合成研究起步时间较晚, 从20世纪90年代开展相关研究, 主要依托于近代物理所、原子能院等单位的加速器装置。自1991年原子能院鉴别出第一个新核素<sup>90</sup>Ru, 迄今为止, 我国已成功合成鉴定了41种新核素, 其中近代物理所鉴别了39种。2000年, 近代物理所首次成功合成并准确鉴别了我国的第一个超重新核素<sup>259</sup>Db<sup>[53]</sup>, 获得了其能量及半衰期, 这是我国第一次进入超重领域的研究, 跨入了国际核物理最热门、最前沿的行列。最近, Yang等<sup>[132]</sup>利用<sup>192</sup>Os(<sup>40</sup>Ar, 5n)<sup>227</sup>Pu合成新核素<sup>227</sup>Pu并测定其α衰变半衰期为0.78<sup>+0.39</sup><sub>-0.19</sub> s, 这是我国首次发现的钚同位素, 为继续发现其他更轻的钚同位素奠定了基础。接下来, 我国将借助现有的重大科学装置, 如近代物理所重离子加速器、原子能院回旋加速器、东莞中子源等, 持续开展超重核素的合成及化学行为、衰变行为研究, 以及远离β稳定线的新核素的合成及衰变规律研究。

与新核素合成一样, 新元素合成也是国际前沿研究的重要竞争领域, 体现了国家综合科研实力。自2006年发现、2015年确认第118号元素Og后, 尚未确认其他新元素的合成。目前各国正致力于119号和120号元素的合成, 但理论预测这两种元素反应截面极低, 对于新元素的发现, 仍需科研工作者的持续努力攻坚。

### 6.2 医用同位素制备

医用同位素可用于核医学诊断和治疗, 是保障公众生命健康的关键环节。近年来我国医用同位素的生产制备技术取得了显著进展, 但远远难以满足国内的需求。为此, 2021年6月, 国家八部委联合发布了《医用同位素中长期发展规划(2021—2035年)》, 标志着我国医用同位素研究进入高速发展的黄金期。医用同位素的生产方式主要有反应堆(目前占比80%以上)、加速器、高放废液提取、同位素发生器等, 器产和堆产均涉及核反应路径的选择和辐照策略的优化; 放射性核素的分离则需要建立相应的纯化流程、合成新型功能材料, 因此, 医用同位素的生产及分离均属于核化学的研究范畴。

近年来, 我国在<sup>99</sup>Mo、<sup>89</sup>Sr、<sup>225</sup>Ac、<sup>68</sup>Ge、<sup>131</sup>I、<sup>14</sup>C、<sup>10</sup>B、<sup>161</sup>Tb、<sup>64</sup>Cu、<sup>177</sup>Lu等医用同位素制备方面

得到快速发展。2024年,中核秦山同位素生产基地开始投产,成为国内最大的同位素自主生产线,原子能院与秦山核电合作,生产出满足医用要求、核纯度99%的<sup>99</sup>Mo。目前,中国核动力研究设计院通过反应堆辐照生产的首批国产化<sup>89</sup>Sr产品已正式交付用户,标志着我国已具备<sup>89</sup>Sr的供货能力。北京大学陈俊艺等<sup>[133]</sup>基于国产100 MeV回旋加速器,通过<sup>232</sup>Th(p, x)<sup>225</sup>Ac首次成功制备了纯度高于99.5%的<sup>225</sup>Ac,建立了AG50×8、DGA、TRU树脂联用的分离流程。原子能院和近代物理所也研究了相同核反应路径的<sup>225</sup>Ac制备,同样地,<sup>227</sup>Ac的干扰难以避免。东华理工大学则关注<sup>226</sup>Ra(γ, n)<sup>225</sup>Ra-<sup>225</sup>Ac光子器产路线研究。原子能院与原子高科股份有限公司基于Cyclone-30加速器,联合开发了多个医用同位素的生产流程,目前成功制备了<sup>68</sup>Ge。陈玉清等<sup>[134]</sup>利用AG1-X8阴离子交换树脂实现<sup>64</sup>Ni靶溶液中<sup>64</sup>Ni、<sup>57</sup>Co等元素的去除,制备出放射性核纯度大于99.0%的<sup>64</sup>Cu。最近,温凯等<sup>[135]</sup>使用16~18 MeV质子辐照铑靶,通过AG1-X8阴离子交换树脂分离纯化,获得放射性核纯度超过99.99%的<sup>103</sup>Pd,产能大于37 GBq。

此外,高丰度原料是制备高品质医用同位素的关键,电磁分离和激光分离是极具发展潜力的同位素分离方法。我国的电磁分离同位素技术始于20世纪60年代,目前原子能院拥有我国唯一一台EMIS-170同位素电磁分离器装置,该装置已成功制备多种稳定同位素<sup>[136-138]</sup>,其中丰度大于99%、纯度大于99.5%的<sup>176</sup>Yb可用于辐照生产医用同位素<sup>177</sup>Lu。

激光同位素分离是利用激光选择性激发特定同位素原子或分子,实现同位素高效分离的前沿技术。国际上也采用激光法分离镱同位素,但国内尚处于探索研究阶段,近年来国内在原子激光法(AVLIS)浓缩铀、分子激光法(MLIS)分离轻同位素领域取得重要进展。原子激光分离过程通常为原子化、激发电离和离子引出,如图3<sup>[139]</sup>。我国相关研究始于20世纪70年代,由中国科学院长春应用化学研究所牵头开展了原子法两步光电离分离铀同位素的研究,涉及铀的光谱、铀原子的电离等,并于1985年完成了原理性实验<sup>[140]</sup>。核工业理化工程研究院则于1991年采用三色三步共振激发电离技术完成了原子法激光浓缩宏

观量铀收集试验,浓缩铀中<sup>235</sup>U平均丰度超过3%<sup>[141]</sup>;之后张志忠团队发展了四色三步光电离技术,并进行宏观量分离贫化试验,其中精料<sup>235</sup>U的丰度高于8%<sup>[142]</sup>,该团队近年来致力于影响激光分离同位素的因素研究,包括可调谐激光器设计、激光功率配置、最佳激发光线宽范围、原子选择性光电离理论及模型研究等<sup>[143-148]</sup>,为我国AVLIS技术奠定了基础。分子激光同位素分离适合分离具备稳定气态化合物的同位素,如S、Mo、Si、B、C、U等,常用CO<sub>2</sub>作光源,光电转化效率高。国内对于该项技术的研究基础较弱,目前开展了BCl<sub>3</sub>、SF<sub>6</sub>、UF<sub>6</sub>中特定同位素的富集<sup>[149-150]</sup>。目前,核工业理化工程研究院探究了多步多色光电离方法获取高丰度<sup>176</sup>Lu,可用于辐照制备<sup>177</sup>Lu<sup>[151]</sup>,通过激光分离获得医用同位素所需高丰度原料也正逐步受到关注。

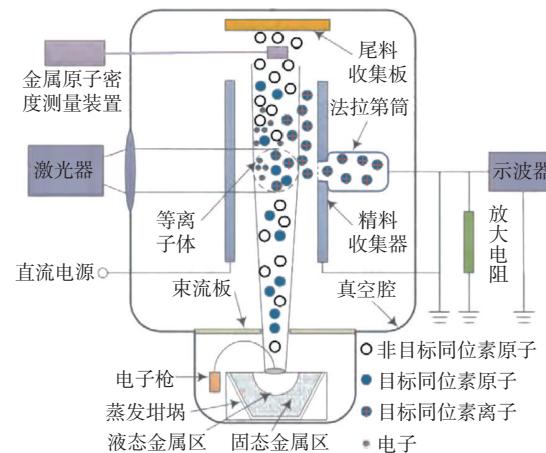


图3 原子激光同位素分离过程示意图<sup>[139]</sup>

Fig. 3 The schematic diagram of atomic laser isotope separation process<sup>[139]</sup>

尽管我国在医用同位素的生产方面取得了一定进展,但目前仍面临高度依赖进口和生产能力不足的问题。未来,随着更多专用生产堆的建设、小型加速器的普及、同位素分离创新技术的发展、核反应辐照策略的完善和新方法新材料的设计,将进一步推动医用同位素的国产化进程,提升我国医用同位素的规模化生产和自主供应能力,以满足日益增长的市场需求,保障公众的生命健康。

## 7 展望

与国外相比,我国此前的研究更注重应用导

向,对基础研究的重视程度不足,这在一定程度上影响了我国在核化学与放射化学领域的原始创新能力,总体水平仍落后于美国、欧洲和日本。近年来,随着我国对创新发展的重视,基础研究得到较大发展,人才队伍不断壮大,学科整体水平显著提升。裂变化学、核数据测量、新核素合成等领域取得了一系列高水平成果,国际影响力持续增强,放射性同位素的生产与应用规模不断扩展,努力满足国内需求并减少进口依赖。此外未详细展开的锕系元素化学及熔盐化学也成为研究热点。目前核化学与放射化学研究水平处于第一梯队,局部领先但非全面领先,在理论创新和技术革新方面与美欧等顶尖实验室相比仍需加强,个别顶级研究设施和尖端分析仪器方面尚存差距。核化学与放射化学研究作为核能发展和核技术应用的基础保障学科,未来发展将聚焦以下几个方面:

(1) 全面开展Pu以及与分离嬗变相关的超Pu元素的裂变化学研究工作,包括裂变机理、裂变产物化学形态变化规律、质量分布、激发曲线以及核数据测量,获得自主实验数据,持续开发机器学习对核化学数据的融合评价工作;

(2) 创新短寿命核素快速放化分离技术,发展更快速的在线辐照-分离-测试全流程一体化系统,实现半衰期为秒级的重点裂变产物的 $\gamma$ /X射线发射几率测量,并逐步拓展到毫秒甚至微秒级的核素核数据测量;

(3) 结合理论计算与实验化学设计新型配体和功能材料,持续提升超痕量放射性核素含量准确测量及化学形态分析测试能力,丰富更长寿命痕量核素的核数据库;

(4) 研究制靶机理及反应新体系,为核素生产提供基础;

(5) 依托大科学装置,持续探索远离 $\beta$ 稳定线的新核素和超重核的合成、鉴定及化学性质,并创新同位素分离技术,实现医用同位素的自主规模化生产;

(6) 深入开展锕系元素化学研究,包括锕系元素的配位及成键特性、固态化合物制备及应用、锕系元素光谱特性及理论化学;

(7) 亟需加强熔盐化学实验及理论研究,涉及熔盐体系中锕系及裂片元素的物理化学行为探索、干法分离先进电极材料和耐腐蚀材料研

究、高温反应介质中关键元素的分离纯化机理等。

## 参考文献:

- [1] 刘培.中国放射化学的发展历程(1934-2000)[D].安徽:中国科学技术大学,2015.
- [2] 黄筑赟,关瑜桢.中国核高等教育的建制化初探[J].高等工程教育研究,2023(5):188-194.
- [3] 郭景儒.裂变产物分析技术[M].北京:中国原子能出版社,2008.
- [4] 张生栋,郭景儒,崔安智,等.中子活化分析法测定热中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变中 $^{135}\text{Cs}$ 的产额[J].核化学与放射化学,1998,20(3):129-137.
- [5] 余润兰,李学良,崔安智,等. $^{252}\text{Cf}$ 自发裂变中 $^{114}\text{Pd}$ 累计裂变产额测定及质量分布轻峰精细结[J].核化学与放射化学,1995,17(4):210-215.
- [6] 鲍杰,刘永辉,杨毅,等.19.1 MeV 中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变质量分布研究[J].核化学与放射化学,2002,24(2):122-125.
- [7] 冯晶,刘永辉,杨毅,等.22 MeV 中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变的质量分布[J].核化学与放射化学,2002,24(2):117-121.
- [8] 任四禧,冯晶,杨毅,等.0.57 MeV、1.0 MeV 和 1.5 MeV 单能中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变的产物产额绝对测量[J].核化学与放射化学,2023,45(3):216-223.
- [9] 冯晶,杨毅,刘世龙,等.0.57、1.0 和 1.5 MeV 中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变时 $^{95}\text{Zr}$ 、 $^{140}\text{Ba}$  和 $^{147}\text{Nd}$ 产额的绝对测量[J].核化学与放射化学,2010,32(6):321-325.
- [10] 冯晶,鲍杰,杨毅,等.0.57、1.0 和 1.5 MeV 中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变的 $^{99}\text{Mo}$ 产额绝对测量[J].原子能科学技术,2013,47(9):1473-1478.
- [11] 乔春源,裴俊琛,王子澳,等.基于贝叶斯机器学习对中子诱发 $^{235}\text{U}$ 裂变的产额-能量关系的研究[J].原子能科学技术,2022,56(5):937-943.
- [12] 毛国淑,张生栋,赵雅平,等.克量级铀中微量钚的分离方法研究[C]//第九届全国核化学与放射化学学术研讨会论文摘要集.赤峰,2010:62-63.
- [13] 余振华,王秀凤,丁有钱,等.钚及其裂变产物钯、银、镉、锡、锑、锆的系统分离方法[J].核化学与放射化学,2019,41(6):537-543.
- [14] 刘世龙,杨毅,冯晶. $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ 短寿命裂变产物产额测[J].核化学与放射化学,2012,34(2):88-92.
- [15] 余功硕,李雪松,师全林,等.热中子诱发 $^{239}\text{Pu}$ 裂变的 $^{85}\text{Kr}^m$ 、 $^{87}\text{Kr}$  和 $^{88}\text{Kr}$ 产额测量研究[J].原子能科学技术,2023,57(6):1066-1075.
- [16] Qi Z, Zhang P, Wang F, et al. The chemical states of tellurium produced by spontaneous fission of  $^{252}\text{Cf}$ [J]. J Radioanal Nucl Chem, 1988, 125(2): 271-280.
- [17] 李雪松,何小兵,余功硕,等.三种铀靶中裂变气体产物氪、氙的释放[J].核化学与放射化学,2018,40(1):37-41.
- [18] 林灿生.裂变产物元素过程化学[M].北京:中国原子能出

- 版社,2012.
- [19] Jia T, Shi K, Wang Y, et al. Sequential separation of iodine species in nitric acid media for speciation analysis of  $^{129}\text{I}$  in a PUREX process of spent nuclear fuel reprocessing[J]. *Anal Chem*, 2022, 94(31): 10959-10966.
- [20] 杨辰.高温气冷堆裂变产物行为的多尺度研究[D].北京:清华大学,2015.
- [21] Li C, Li W, Sun L, et al. Chemical forms of important fission products in primary circuit of HTR-PM under conditions of normal operation and overpressure and water ingress accidents: a study with a chemical thermodynamics approach[J]. *Sci Technol Nucl Install*, 2019, 2019(1): 4251280.
- [22] 刘马林,程心雨,刘兵,等.超高温气冷堆燃料元件制备和性能评价研究[J].核动力工程,2024,45(增刊2):231-237.
- [23] 贾昀澎,王子豪,耿俊霞,等.FLiNaK熔盐中CsF的蒸发与分离[J].核技术,2016,39(2):63-68.
- [24] 程治强,赵中奇,耿俊霞,等.熔盐堆内裂变产物行为初探[C]//中国化学会第五届全国核化学与放射化学青年学术研讨论文摘要集.绵阳,2019:13.
- [25] 郭立军,陈琳,郑毅.核爆放射性核素的分凝研究[J].*核电子学与探测技术*,2012,32(7):772-777,789.
- [26] 商建波,师全林,王群书.分凝模型对近区剂量场预报结果的影响[J].*原子能科学技术*,2013,47(4):691-695.
- [27] 曾斌,党海军,张生栋,等.钚材料分散沉降颗粒物中Pu和Am在中性水中的行为初探[J].*核化学与放射化学*,2014,36(增刊):70-73.
- [28] 王玉民,沈慧炯,庄心哲,等.二氧化钚( $^{238}\text{PuO}_2$ 、 $^{239}\text{PuO}_2$ )事故性扩散及其粒度特征和吸入危害[J].*职业卫生与应急救援*,2001,19(4):171-173.
- [29] 郑毅.大气层核爆炸地面放射性沉降预测研究综述[J].*核电子学与探测技术*,2008,28(3):500-505.
- [30] 张生栋,郭景儒,崔安智,等.放化法测定 $^{126}\text{Sn}$ 的半衰期[J].*原子能科学技术*,1996,30(2):154-158.
- [31] 张生栋,刘峻岭,郭景儒,等.ICPMS法测量 $^{126}\text{Sn}$ 半衰期[J].*核化学与放射化学*,2000,22(3):129-135.
- [32] 余润兰,郭景儒,崔安智,等.放化法测量 $^{79}\text{Se}$ 的半衰期[J].*核化学与放射化学*,1995,17(1):33-37.
- [33] 蒋崧生,姜山,何明,等. $^{79}\text{Se}$ 的加速器质谱方法测定研究[J].*科学通报*,1996,41(24):2228-2230.
- [34] Jiang S S, He M, Diao L J, et al. Remeasurement of the half-life of  $^{79}\text{Se}$  with the projectile[J]. *Chin Phys Lett*, 2001, 18(6): 746.
- [35] 何明,蒋崧生,姜山,等.利用加速器质谱学中的入射离子X射线方法测定 $^{79}\text{Se}$ 的半衰期[J].核技术,2004,27(1):22-26.
- [36] Dou L, Jiang S, Wang X B, et al. Measurement of the half-life of  $^{79}\text{Se}$  with accelerator mass spectrometry[J]. *Chin Phys C*, 2014, 38(10): 106204.
- [37] Yang J, Zhang S, Ding Y, et al. A new value of  $^{93}\text{Zr}$  half-life[J]. *International Journal for Chemical Aspects of Nuclear Science & Technology*, 2010, 98(2): 59-63.
- [38] 杨磊,张生栋,孙宏清,等. $^{182}\text{Hf}$ 放化分离及半衰期测量[C]//第九届全国核化学与放射化学学术研讨会论文摘要集.赤峰,2010:59.
- [39] 石国柱,何明,王祥高,等.液闪法测定 $^{151}\text{Sm}$ 的半衰期[J].核技术,2009,32(7):537-540.
- [40] 张雄寓,丁有钱,王秀凤,等. $^{175}\text{Hf}$ 的半衰期测量[J].核化学与放射化学,2017,39(3):218-222.
- [41] 王平生,黄东辉,陈细林,等. $k_0$ -NAA相关核参数( $^{97}\text{Zr}$ 半衰期)的精确测定[J].*核技术*,2006,29(3):174-177.
- [42] 杨志红,丁有钱,张生栋,等.气体裂变产物 $^{88}\text{Kr}$ 半衰期测量[J].*原子能科学技术*,2020,54(10):1737-1744.
- [43] Mao G S, Zhang S D, Yang L, et al. Measurement of the half-life of  $^{132}\text{I}$ [J]. *Radiochim Acta*, 2006, 94(8): 403-405.
- [44] You X, Zhang S, Yang Z, et al. Preparation and measurement of the half-life of  $^{101}\text{Tc}$ [J]. *J Radioanal Nucl Chem*, 2011, 287(1): 267-272.
- [45] 郭晓清,袁大庆,徐利军,等. $^{89}\text{Rb}$ 半衰期测量[J].*原子能科学技术*,2013,47(11):1921-1924.
- [46] 岳远振,毛国淑,杨磊,等.裂变产物 $^{90}\text{Rb}$ 半衰期测量[J].*原子能科学技术*,2023,57(8):1498-1503.
- [47] 何贤文,姜山,何明,等.检测4.2 K低温金属环境下 $^{210}\text{Po}$  $\alpha$ 衰变半衰期变化的实验方法[J].核技术,2011, 34(7): 03-506.
- [48] 曾晟,Spillane T,Raiola F,等.低温金属环境中 $^{198}\text{Au}$ 半衰期的测量[J].*原子能科学技术*,2009,43(6):481-484.
- [49] 王宝祥.低温金属环境中 $^7\text{Be}$ 半衰期的研究和 $^{15}\text{O}$ 次级束的产生[D].北京:中国原子能科学研究院,2006.
- [50] 刘洪业,郭俊盛,甘再国,等.新同位素 $^{235}\text{Am}$ 的产生与鉴别[J].核物理动态,1996,13(3):1-2.
- [51] 袁双贵,丁华杰,徐岩冰,等. $^{239}\text{Pa}$ 的鉴别及其特性[J].原子能科学技术,2008,42(B09):1-3.
- [52] 杨维凡,袁双贵,徐岩冰,等.重丰子中子同位素 $^{237}\text{Th}$ 半衰期的测定[J].*同位素*,2000,13(4):199-203.
- [53] 甘再国,郭俊盛,秦芝,等.一个超锕系新核素 $^{259}\text{Db}$ 的合成与鉴别[J].*中国基础科学*,2002,4(2):28-31.
- [54] 甘再国,郭俊盛,吴晓蕾,等.新同位素 $^{265}\text{Bh}$ (Z=107)的合成证据[J].*原子核物理评论*,2005,22(1):36-38,75.
- [55] 曾奇,王猛,张玉虎,等.全剥离离子 $^{94m}\text{Ru}^{44+}$ 的衰变研究[J].*原子核物理评论*,2017,34(3):414-419.
- [56] 夏子恒,师全林,解峰,等. $^{240}\text{Am}$ 半衰期的测量[J].*原子能科学技术*,2018,52(4):577-582.
- [57] 王世联,白涛,师全林,等.裂变产物 $^{94}\text{Y}$ 和 $^{95}\text{Y}$ 半衰期的测定[J].*核技术*,2009,32(8):606-608.
- [58] 黄小龙,于伟翔,卢涵林,等. $\gamma$ 射线发射几率及其不确定

- 度[J].*高能物理与核物理*,2004,28(6):588-593.
- [59] 党云博,周冬梅,丁有钱,等.<sup>88</sup>Kr γ 射线发射几率的测量[J].*原子能科学技术*,2014,48(6):961-967.
- [60] 汪建清,姚顺和,杨丽艳,等.<sup>142</sup>La 活度及主要 γ 射线发射几率实验测量[J].*原子能科学技术*,2010,44(9):1025-1030.
- [61] 李广生,崔安智,杨毅,等.<sup>147</sup>Nd 531 keV γ 射线发射几率的精确测量[J].*原子能科学技术*,2002,36(1):36-38.
- [62] 李广生,彭朝华,李大明,等.<sup>155</sup>Eu 衰变 γ 射线发射几率的精确测量[J].*核技术*,2003,26(9):683-685.
- [63] 李广生,李大明,陈细林,等.<sup>161</sup>Tb 低能 γ 射线发射几率的精确测量[J].*核技术*,2003,26(8):585-587.
- [64] 王新霖,杨景霞.<sup>131</sup>I 和<sup>134</sup>Cs 核的衰变研究[J].*原子能科学技术*,1992,26(3):75-79.
- [65] 解峰,何小兵,张小林,等.<sup>87</sup>Kr γ 射线发射几率的重新测定[J].*原子能科学技术*,2010,44(5):517-522.
- [66] 张小林,王世联,凡金龙,等.<sup>101</sup>Mo γ 射线发射几率测定[J].*原子能科学技术*,2006,40(4):396-398.
- [67] 何小兵,解峰,师全林,等.<sup>123</sup>Xe γ 射线发射几率的实验测定[J].*核技术*,2011,34(5):362-367.
- [68] 李琦,刘杰,王莉,等.4πβ+4πγ 计数相加法测量<sup>134</sup>Cs 活度和 γ 射线发射几率[C]//第七届全国核化学与放射化学学术讨论会论文摘要集.珠海,2005:37-38.
- [69] 师全林,白涛,刘杰,等.<sup>173</sup>Lu 和<sup>174g</sup>Lu 衰变数据的测量[J].*原子核物理评论*,2016,33(4):518-523.
- [70] 常永福,黎荫铭,史桂兰,等.<sup>181</sup>Hf 活度和 γ 射线发射几率的测定[J].*核电子学与探测技术*,1994,14(1):8-15.
- [71] 叶春堂,孙汉城,刘惠长.<sup>235</sup>U 的热中子裂变截面绝对值的测量[J].*原子能科学技术*,1964(4):349-355.
- [72] 周蕙明,叶春堂,周咸建,等.<sup>233</sup>U,<sup>235</sup>U 和<sup>239</sup>Pu 在热中子能区裂变截面的测量[J].*原子能科学技术*,1977,11(2):193-196.
- [73] Zhang SD, Yang L, Guo J, et al. Measurement of thermal neutron cross sections of the reactions <sup>126</sup>Sn(n, γ)<sup>127g</sup>, <sup>127m</sup>Sn[J]. *Radiochim Acta*, 2006, 94(8): 385-390.
- [74] 钱丽娟.<sup>135</sup>Cs(n,γ)<sup>136</sup>Cs 热中子反应截面测量[D].北京:中国原子能科学研究院,2004.
- [75] 蓝小淅.AMS 测量<sup>78</sup>Se(n,γ)<sup>79</sup>Se 反应堆热中子反应截面研究[D].南宁:广西大学,2014.
- [76] 李泽,王维国,张百生,等.14.6 兆电子伏中子引起<sup>241</sup>Am 裂变截面的测量 [J].*原子能科学技术*,1980,14(1):98-101.
- [77] 倪建忠.一种测定裂变谱中子引起的<sup>241</sup>Am(n,γ)<sup>242</sup>Am<sup>g,m</sup> 反应截面的新方法[J].*原子能科学技术*,2010,44(4):391-393.
- [78] 田源,续瑞瑞,陶曦,等.神经网络方法分析 U 同位素链裂变反应截面[J].*原子能科学技术*,2023,57(4):805-811.
- [79] 杨志红,杨素亮,张生栋,等.核化学与放射化学技术研究进展[J].*原子能科学技术*,2020,54(增刊 1):151-166.
- [80] 丁有钱,崔安智,杨志红,等.HDEHP 萃取法从裂变产物中分离<sup>142</sup>La[J].*核化学与放射化学*,2003,25(4):219-222.
- [81] 丁有钱,杨志红,崔安智,等.裂变产物中<sup>138</sup>Cs 的分离[J].*核化学与放射化学*,2005,27(3):164-168.
- [82] 杨志红,丁有钱,张生栋,等.<sup>91</sup>Sr 亚快化分离方法的研究[J].*核化学与放射化学*,2007,29(1):1-7.
- [83] 白龙,丁有钱,王秀凤,等.从裂变产物中快速放化分离<sup>144</sup>La 的方法研究[J].*核化学与放射化学*,2018,40(5):285-289.
- [84] 叶宏生,夏文,徐利军,等.<sup>95</sup>Y 快速化学分离方法的研究[J].*原子能科学技术*,2012,46(12):1414-1417.
- [85] 崔春盛,丁有钱,王秀凤,等.<sup>94,95</sup>Sr 快化分离方法的研究[J].*核化学与放射化学*,2023,45(4):316-322.
- [86] 杨建勋,丁有钱,王秀凤,等.从裂变产物中快速萃取分离<sup>94</sup>Sr 的研究[J].*原子能科学技术*,2024,58(8):1697-1703.
- [87] 丁有钱,杨志红,张生栋,等.三步分离法制备高丰度的<sup>142</sup>La[J].*原子能科学技术*,2014,48(10):1739-1745.
- [88] 岳远振,毛国淑,杨磊,等.裂变产物中<sup>90</sup>Rb 的快速放化分离方法研究[J].*原子能科学技术*,2016,50(12):2118-2123.
- [89] 徐利军.SISAK 方法从裂变产物中快速分离<sup>142</sup>La[D].北京:中国原子能科学研究院,2006.
- [90] 林茂盛,雷富安,王航,等.NbBr<sub>5</sub> 及 NbOBr<sub>3</sub> 的在线气相等温色谱研究[J].*核化学与放射化学*,2011,33(2):65-70.
- [91] 王洋.超重元素 Sg 及同族元素簇基配合物气相化学性质研究[D].兰州:兰州大学,2015.
- [92] 马燮,崔保群,唐兵,等.BRISOL 铷同位素放射性核束的产生[J].*原子核物理评论*,2022,39(2):201-205.
- [93] 马燮,崔保群,唐兵,等.BRISOL 钾同位素放射性核束的产生[J].*原子能科学技术*,2022,56(10):2172-2177.
- [94] 唐兵,崔保群,马燮,等.BRISOL 钠同位素放射性核束的产生[J].*原子能科学技术*,2020,54(5):882-887.
- [95] 杨金玲,张生栋,丁有钱,等.长寿命痕量核素分离测试研究进展[J].*核化学与放射化学*,2019,41(1):1-12.
- [96] 任同祥,张生栋,郭景儒,等.从高放废液中分离<sup>79</sup>Se 的流程研究[J].*核化学与放射化学*,2005,27(4):203-209.
- [97] 吴俊德,张生栋,梁小虎,等.从高放废液中系统分离<sup>79</sup>Se、<sup>93</sup>Zr、<sup>107</sup>Pd 的方法[J].*核化学与放射化学*,2010,32(6):326-331.
- [98] 杨金玲,张生栋,丁有钱,等.高放废液中<sup>93</sup>Zr 的放化分离[J].*核化学与放射化学*,2010,32(1):17-21.
- [99] 凡金龙,张生栋,卢嘉春,等.胺类萃取剂高效分离 Hf(IV) 与 W(VI) 的方法研究[J].*核化学与放射化学*,2010,32(4):199-205.
- [100] 余振华,王秀凤,宋志君,等.岩石中痕量镉的分离和纯化[J].*湿法冶金*,2019,38(5):422-426.
- [101] 张曦,余振华,姚曜晖,等.百克量级花岗岩中痕量镎的分离纯化方法研究[J].*原子能科学技术*,2022,56(6):1013-

- 1021.
- [102] 吉艳琴.环境样品中痕量铀、钍、镎和钚的电感耦合等离子体质谱( ICP-MS) 分析方法研究[D].北京:中国原子能科学研究院,2001.
- [103] 王远大,刁立军,唐培家.HPGe 低本底反康普顿  $\gamma$  谱仪[J].核电子学与探测技术,1997,17(4):256-261.
- [104] 张继龙,任同祥,王同兴,等.MC-ICP-MS 法测定<sup>79</sup>Se[C].首届核化学与放射化学青年学术交流会,北海,2006.
- [105] Cao L, Bu W, Zheng J, et al. Plutonium determination in seawater by inductively coupled plasma mass spectrometry: a review[J]. *Talanta*, 2016, 151: 30-41.
- [106] 金玉仁,章连众,韩世钧,等.萃取色层分离同位素稀释 ICP-MS 测定空气中费克量钚[J].*化学学报*,2000,58(10): 1291-1295.
- [107] 金玉仁,李梅,李琳,等.ICP-MS 测量超痕量钚时质谱干扰的消除及水中钚的测定[J].*核化学与放射化学*, 2004,26(1):6-10.
- [108] 吉艳琴,李金英,罗上庚.放射化学分离结合 ICP-MS 法测量土壤样品中钚的研究[J].辐射防护,2008,28(2):72-78,83.
- [109] 汪伟,徐江,席瑞阳,等.电感耦合等离子体质谱法快速准确表征浓缩铀材料[J].*质谱学报*,2023,44(6):797-806.
- [110] Fifield L K, Cresswell R G, di Tada M L, et al. Accelerator mass spectrometry of plutonium isotopes[J]. *Nucl Instrum Meth Phys Res Sect B Beam Interact Mater At*, 1996, 117(3): 295-303.
- [111] 凡金龙.岩石样品中超痕量<sup>182</sup>Hf 分离及分析的方法研究[D].北京:中国原子能科学研究院,2010.
- [112] 沈小攀,李志明,王文亮,等.激光共振电离质谱法测量锡的同位素比[J].*分析化学*,2017,45(3):342-347.
- [113] 王文亮,张满超,冯磊,等.长寿命低丰度放射性核素的激光共振电离质谱分析技术研究进展[J].*分析测试学报*,2024,43(10):1536-1544.
- [114] 杨春莉,吴俊德,苏树新,等.分子镀法制备 Th-232 靶[C]//中国核科学技术进展报告:中国核学会 2009 年学术年会论文集(第一卷·第 4 册).北京,2009:590-597.
- [115] 杨春莉,苏树新,张生栋.脉冲分子镀制备铀靶方法研究[J].*核化学与放射化学*,2007,29(4):210-215.
- [116] 孙晓祎,杨金玲,丁有钱,等.有机体系中铀厚靶的制备[C]//第十三届全国核化学与放射化学学术研讨会论文摘要集.大理,2014:116.
- [117] 孙晓祎,丁有钱,党云博,等.大面积铀靶的制备[C]//中国化学会第五届全国核化学与放射化学青年学术研讨会议论文摘要集.绵阳,2019:65.
- [118] 孙晓祎,黄昆,杨磊,等.核数据测量用钚靶的制备[J].*核化学与放射化学*,2020,42(5):366-370.
- [119] 罗旭.分子电镀法制备<sup>237</sup>Np 核靶[J].*原子能科学技术*,2002,36(增刊 1):409-412.
- [120] He Y, Han L, Wang C, et al. Molecular plating of actinide compounds on wafer-scale aluminum substrate[J]. *J Alloys Compd*, 2021, 878: 160393.
- [121] 陈琪萍,钟文彬,李有根.电沉积法制备<sup>235</sup>U 靶[R].北京:中国核科技报告,2004.
- [122] 何佳恒,陈琪萍,党宇峰,等.管状电沉积铀靶的制备和检测[J].*化学研究与应用*,2010,22(2):248-252.
- [123] 何佳恒,陈琪萍,党宇峰,等.电沉积法制备<sup>238</sup>U 靶件的研究[J].*表面技术*,2010,39(6):80-83.
- [124] 秦芝,郭俊盛,甘再国.分子镀法制备厚镅(<sup>241,243</sup>Am) 靶[J].*同位素*,2000,13(4):209-214.
- [125] 白静,吴晓蕾,林茂盛,等.单次分子镀法制备部分 La 系及<sup>238</sup>U 靶的实验研究[J].*原子核物理评论*,2010,27(2): 187-191.
- [126] 魏永钦,曹德林,王秋玉.<sup>235</sup>U、<sup>238</sup>U 薄靶的制备[J].核技术,1983,6(3):56.
- [127] 杨金玲,丁有钱,孙晓祎,等.激光共振电离质谱用钚源的制备及探测效率测定[J].*原子能科学技术*,2018,52(8): 1353-1358.
- [128] 鲜晓斌,汪小琳,吕学超,等.磁控溅射沉积铀薄膜组织结构研究[J].*真空*,2000,37(3):22-24.
- [129] 鲜晓斌,吕学超,伏晓国,等.蒸发、磁控溅射沉积真空对铀薄膜组成和结构的影响[J].*材料导报*,2001,15(7):62-63,55.
- [130] 鲜晓斌,吕学超,张永彬,等.磁控溅射沉积 U 薄膜性能研究[J].*原子能科学技术*,2002,36(4):396-398.
- [131] 易泰民,邢丕峰,唐永建,等.磁控溅射制备金属铀膜[J].*原子能科学技术*,2010,44(7):869-872.
- [132] Yang H B, Gan Z G, Zhang Z Y, et al.  $\alpha$  decay of the new isotope <sup>227</sup>Pu[J]. *Phys Rev C*, 2024, 110(4): 044302.
- [133] 陈俊艺,吕银龙,王峰,等.基于 100 MeV 质子回旋加速器与固相萃取方法制备与纯化靶向放射治疗核素锕-225[J].*化学通报*,2021,84(11):1210-1218.
- [134] 陈玉清,梁积新,李光,等.阴离子交换法从辐照后的 Ni 靶中分离<sup>64</sup>Cu[J].*同位素*,2012,25(3):144-148.
- [135] 温凯,马承伟,褚浩森,等.基于 C30 加速器的<sup>103</sup>Pd 制备工艺研究[J].核化学与放射化学,2024,46(5):462-467.
- [136] 徐昆,任秀艳,毋丹,等.电磁法分离制备高丰度镎-176 同位素关键工艺参数研究[J].*原子能科学技术*,2023,57(3): 666-672.
- [137] 龙利,任秀艳,毋丹,等.电磁法分离高丰度镎-87 及其应用[J].*同位素*,2024,37(3):302-308.
- [138] 任秀艳,米亚静,曾自强,等.<sup>62</sup>Ni 同位素的分离制备[J].*原子能科学技术*,2014,48(11):2111-2115.
- [139] 李和平,王鑫,王鹏,等.原子蒸气激光同位素分离研究进展综述 (II):实验研究[J].高电压技术,2016,42(3):706-716.
- [140] 周大凡.激光原子法分离铀同位素两步光电离原理性实

- 验研究[M].吉林:中国科学院长春应用化学研究所,2005.
- [141] 潘文杰,徐品方,邱成,等.原子法激光浓缩铀宏观量收集试验[R].天津:核工业理化工程研究院,1991.
- [142] 张志忠,张立原,王小伟,等.激光铀同位素分离贫化试验[R].天津:核工业理化工程研究院,1993.
- [143] 张志忠,王立军.原子多步电离过程中激光功率配置理论研究[J].*原子与分子物理学报*,2008,25(1):69-73.
- [144] 孙桂侠,熊明,凌菲彤,等.腔外倍频可调谐连续671 nm环形激光器[J].激光与红外,2021,51(5):607-611.
- [145] 孙桂侠,凌菲彤,熊明,等.单频可调谐连续1342 nm注入锁频环形激光器[J].中国激光,2021,48(7):25-31.
- [146] 杨佳琦,刘加东,刘涛,等.激发光线宽对原子光致漂移速率的影响[J].*物理学报*,2018,67(11):73-79.
- [147] 卢肖勇,张小章,张志忠.厚原子蒸气介质中原子选择性光电离的理论研究[J].*物理学报*,2018,67(8):69-75.
- [148] 王立德,张钧尧,卢肖勇.钕-150同位素三步选择性光电离理论研究[J].*物理学报*,2025,74(11):102-120.
- [149] 齐鑫.激光光谱法分离硼同位素[J].*山东化工*,2020,49(15):108-110.
- [150] 袁洪瑞.激光冷凝抑制法分离同位素研究进展及现状[J].*同位素*,2023,36(3):358-372.
- [151] 张钧尧,熊静逸,魏少强,等.镥原子自电离态的共振电离谱[J].*物理学报*,2023,72(19):76-83.