

文章编号:0253-9950(2010)03-0149-07

同位素稀释-萃取液闪法分析 ^{241}Pu

赵雅平,张生栋,毛国淑,丁有钱,宋志君,舒复君

中国原子能科学研究院 放射化学研究所,北京 102413

摘要:建立了同位素稀释-萃取液闪法分析高放废液中 ^{241}Pu 含量的方法,该方法解决了不需要知道化学流程收率就能确定高放废液中 ^{241}Pu 含量的问题,同时萃取液闪技术的应用大大提高了低能核素 ^{241}Pu 在液闪测量中的探测效率。该方法可以用于测定高放废液中 ^{241}Pu 的含量。

关键词: ^{241}Pu ;高放废液;同位素稀释法;萃取液闪

中图分类号:O657.4 文献标志码:A

Analysis of ^{241}Pu Radioactivity by Isotope Dilution-Extraction Liquid Scintillation Spectrometer

ZHAO Ya-ping, ZHANG Sheng-dong, MAO Guo-shu, DING You-qian,
SONG Zhi-jun, SHU Fu-jun

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(126), Beijing 102413, China

Abstract: The radionuclide ^{241}Pu decays predominantly by β emission with a half-life 14.29 a. The branching ratio of its α -emission is negligibly small. However, it is difficult to measure the radioactivity of ^{241}Pu in a Pu containing complicated sample because of its low β energy. A method for determination of ^{241}Pu in high level liquid waste (HLLW) was developed. It consists of the following steps. The first step is to separate and purify plutonium from HLLW. The chemical yield of plutonium is higher than 95%. Secondly, a determination method by using modern liquid scintillation spectrometry combined with isotope dilution, solvent extraction, and ion exchange chromatography was established to analyze the ^{241}Pu content in HLLW.

Key words: ^{241}Pu ; high level liquid waste; isotope dilution; extraction-liquid scintillation

^{241}Pu 主要是 β 发射体(其 α 衰变分支比极小,仅 0.018%,可忽略),半衰期是 14.29 a^[1],最大能量只有 20.81 keV。 ^{241}Pu 是钚的重要同位素,也是放射性废物中重要的 β 发射超铀核素。以往在进行 ^{241}Pu 含量测量时,一般是用 HPGe γ 谱仪测定其子体 ^{241}Am 发射的 59.5 keV 特征 γ 射

线的强度间接确定^[2-3],或是通过其子体 ^{237}U 间接测定^[4],也可以用质谱^[5]测量得到。由于 ^{241}Pu 主要是低能 β 发射体,液闪测量是一种理想的分析技术^[6-7]。

本工作以化学成分复杂、放射性活度很高、而超铀元素的含量却很低的高放废液体系为研究对

象,设计先后用阴离子交换法和萃取法相结合从
高放废液中分离钚,借鉴同位素稀释质谱
法^[5, 8-9],建立用同位素稀释-萃取液闪法分析
²⁴¹Pu的方法,最终拟对高放废液中的²⁴¹Pu 活度进
行定量。

1 方法原理

高放废液中主要有²³⁸Pu、²³⁹Pu、²⁴⁰Pu 和²⁴¹Pu
四个钚的同位素,其中²⁴¹Pu 由于其 α 衰变可以忽
略,可以认为是 β 放射性核素,其余 3 个是 α 衰变
核素。液闪测量时不能分开 3 个 α 核素的 α 粒
子,只能得到总的 α 放射性峰,所以对于一个高放
废液样品,样品中²⁴¹Pu 的 β 放射性和其它钚同位
素的 α 放射性之比是固定的。

取一待分析的高放废液样品(不必准确取
样),样品中钚的 α 、 β 放射性活度分别为 A_α^0 、 A_β^0 ,
该样品通过钚的分离和纯化步骤可得到放化纯
的有机相钚样品,经液闪法测量后其中 β 、 α 核素
的计数率分别为 C_β 、 C_α ,它们的比值为 $R_{\beta/\alpha}^0$,如公
式(1)所示。另外,准确取一定量高放废液样
品,向其中加入定量的放射性活度为 A'_β 的²⁴¹Pu
稀释剂,两者充分混和均匀达到同位素交换平
衡后,同样将该样品通过钚的分离和纯化步骤,
用液闪法测有机相产品中钚的 β 、 α 计数率之比
为 $R_{\beta/\alpha}$,如公式(2)所示:

$$R_{\beta/\alpha}^0 = \frac{C_\beta}{C_\alpha} = \frac{A_\beta^0 y_1 \eta_{\beta 1}}{A_\alpha^0 y_1 \eta_{\alpha 1}} \quad (1)$$

$$R_{\beta/\alpha} = \frac{C_\beta + C'_\beta}{C_\alpha} = \frac{A_\beta^0 y_2 \eta_{\beta 2} + A'_\beta y_2 \eta_{\beta 2}}{A_\alpha^0 y_2 \eta_{\alpha 2}} \quad (2)$$

式中, y 为化学流程的收率, η_α 和 η_β 分别为液闪测
量 α 、 β 核素的效率, C'_β 为经液闪法测量后稀释
剂²⁴¹Pu 的计数率。其中 $\eta_{\alpha 1} \approx \eta_{\alpha 2} \approx 1$, η_β 可以通
过对仪器的效率刻度得到, $R_{\beta/\alpha}^0$ 和 $R_{\beta/\alpha}$ 可以通过测量
得到,而稀释剂²⁴¹Pu 的 A'_β 为已知量。因此可以
将式(1)和(2)合并简化为

$$A_\beta^0 = \frac{A'_\beta \eta_{\beta 2} R_{\beta/\alpha}^0}{R_{\beta/\alpha} \eta_{\beta 1} - R_{\beta/\alpha}^0 \eta_{\beta 2}} \quad (3)$$

即高放废液中²⁴¹Pu 的活度 A_β^0 可求得。

从以上过程可以看到,同位素稀释法中,不需
要知道整个化学流程的收率大小,就可以得到高
放废液中²⁴¹Pu 的含量。

1.1 钚的同位素交换

高放废液经过长期放置,存在各种价态的钚,
因此,需要研究如何实现稀释剂²⁴¹Pu 与高放废液

中钚同位素间的交换平衡问题,这是进行同位素
稀释-萃取液闪法的基础。

有科研工作者将加了钚同位素稀释剂的样品
在 7 mol/L HNO₃ 介质中放置 4~5 d 以确保钚同
位素交换完全^[10]。本实验中,将稀释剂²⁴¹Pu 加
入到高放废液中后,拟采用 2 种方法实现同位素
交换平衡。一种方法是采用文献[10]的方法;另
一方法是鉴于本化学流程的初始即对料液进行调
价,这个过程可以实现钚元素间价态的归一,使稀
释剂²⁴¹Pu 和高放废液中钚元素的化学形态完全
相同,这本身就是一个实现同位素交换平衡的过
程,因此,对于加了稀释剂的混合样,可以直接按
照化学流程操作,但钚的还原和氧化的放置时间
至少为 30 min。

1.2 稀释剂²⁴¹Pu 加入量的计算

在实际液闪测量中,公式(3)中的 R 项和 η
项是同时测得的,将这两项合并,令 $T_{\beta/\alpha}^0 = R_{\beta/\alpha}^0 / \eta_{\beta 1}$,
 $T_{\beta/\alpha} = R_{\beta/\alpha} / \eta_{\beta 2}$,则公式(3)可写为:

$$A_\beta^0 = \frac{A'_\beta T_{\beta/\alpha}^0}{T_{\beta/\alpha} - T_{\beta/\alpha}^0} \quad (4)$$

$$\text{也可以写为: } \frac{A_\beta^0}{A'_\beta} = \frac{T_{\beta/\alpha}^0}{T_{\beta/\alpha} - T_{\beta/\alpha}^0} \quad (5)$$

如果定义一个函数:

$$F_{T_{\beta/\alpha}} = \lim_{\Delta T_{\beta/\alpha} \rightarrow 0} \frac{\Delta(A_\beta^0/A'_\beta) / (A_\beta^0/A'_\beta)}{\Delta T_{\beta/\alpha} / T_{\beta/\alpha}} \quad (6)$$

$$\text{由式(5)可以求得: } F_{T_{\beta/\alpha}} = \frac{T_{\beta/\alpha}}{T_{\beta/\alpha}^0 - T_{\beta/\alpha}} \quad (7)$$

$F_{T_{\beta/\alpha}}$ 称为误差传递系数,它表示活度比 $T_{\beta/\alpha}$ 如果有一
个 $\Delta T_{\beta/\alpha} / T_{\beta/\alpha}$ 相对误差,此相对误差将以 $F_{T_{\beta/\alpha}}$ 倍
传递给 A_β^0 / A'_β ,并相应地产生一个相对误差
 $\Delta(A_\beta^0/A'_\beta) / (A_\beta^0/A'_\beta)$ 。

根据公式(7),以 $T_{\beta/\alpha} / T_{\beta/\alpha}^0$ 值为横坐标,以误
差传递系数 $F_{T_{\beta/\alpha}}$ 为纵坐标作图(图 1),当 $T_{\beta/\alpha} / T_{\beta/\alpha}^0$
小于 2 时,曲线变陡,误差传递系数变得较

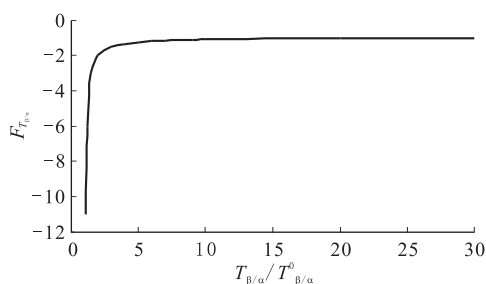


图 1 $T_{\beta/\alpha} / T_{\beta/\alpha}^0$ 和 $F_{T_{\beta/\alpha}}$ 的关系

Fig. 1 Relationship between $T_{\beta/\alpha} / T_{\beta/\alpha}^0$ and $F_{T_{\beta/\alpha}}$

大;当 $T_{\beta/\alpha}/T_{\beta/\alpha}^0$ 大于 5 时,曲线趋于一条平行于 x 轴的直线。

液闪测量中,考虑到谱仪对混合样品活度测量的精度与稀释剂²⁴¹Pu 和待测样²⁴¹Pu 都有关,即两个活度比不宜差别太大,因此,取 $T_{\beta/\alpha}/T_{\beta/\alpha}^0$ 值在 2~5 之间比较合理。

1.3 淬灭、效率校正及萃取液闪技术

液闪测量中从 β 粒子产生直到其被记录为止的全过程中,凡影响能量传递和正确计数的因素导致测量计数效率的降低都可以归为淬灭效应,所以要设法进行淬灭校正。对淬灭的修正主要是通过对系统计数效率的刻度进行的。在以往的工作中,有用标准钚溶液进行效率刻度的方法,也有用与²⁴¹Pu β 能量相近的³H($E_\beta=18.6$ keV)进行近似刻度的方法^[6],即认为²⁴¹Pu 的测量效率等于³H 的效率。本工作利用²⁴¹Pu 标准溶液得到一系列不同淬灭程度的标准样品,根据淬灭指数 tSIE 值(本工作中采用了外标准转换谱指数 tSIE 法,tSIE 值随样品淬灭程度的增加而降低)与计数效率的关系,得到一条淬灭校正曲线,用以测量未知样。

在液闪分析中需要谨慎的选择引入较小淬灭效应的样品介质。考虑到闪烁液为有机相,因此,若用有机相作为样品的最终介质,则可以实现与闪烁液的很好互溶,一定程度上减少淬灭效应,同时在化学分离步骤中通过对钚的萃取纯化步骤,不进行反萃,而直接用于液闪分析,可以简化操作步骤,这些正是本工作拟采用萃取液闪法的出发点。同时,本工作中采用的萃取剂是三辛基氧磷(TOPO),它在液闪测量中的淬灭作用很小^[11]。

2 实验部分

2.1 主要仪器与试剂

GEM70P-PLUS HPGe 多道 γ 谱仪,美国 ORTEC 公司;Tri-Carb 3170 型低本底液闪谱仪,美国 PE 公司,对³H 探测效率为 65%,本底计数 17 min^{-1} ;BP211D 型电子天平,德国 Sarorius 公司,感量为 10^{-5} g 。

HNO₃,分析纯,北京化学试剂研究所;三辛基氧磷(TOPO),美国 Alpha Aesar 公司,纯度 99%;环己烷、二甲苯,分析纯,北京化工厂;还原铁粉,分析纯,广东汕头市西陇化工厂;氨基磺酸,分析纯,国药集团化学试剂有限公司; N,N -二甲

基羟胺(DMHAN)、Pu 溶液,中国原子能科学研究院放射化学研究所提供;²⁴¹Pu 标准溶液,美国 Eckert&Ziegler 公司,其中²⁴¹Pu 活度丰度为 99.978%,4.0 mol/L HNO₃ 介质;N256 阴离子交换树脂(粒径 0.149~0.177 mm、0.074~0.105 mm),核工业北京化工冶金研究院提供。

2.2 实验方法

2.2.1 树脂柱的准备 设计加工的玻璃柱尺寸内径为 3 mm,柱长 80 mm,并在柱子底部加上玻璃烧结片。将处理好的 NO₃⁻ 型 N256 阴离子交换树脂 0.25 mL 湿法装柱,备用。

2.2.2 钚的分离和纯化 利用不同价态钚的化学性质差异很大的特点,用 Fe(NH₂SO₃)₂ 溶液将高放废液中不同价态的钚元素先还原至 Pu(III),再用过量 NaNO₂ 溶液将钚氧化至 Pu(IV),以实现钚价态的归一。在大于 7.1 mol/L HNO₃ 溶液中,Pu(IV)以 Pu(NO₃)₆²⁻ 形式存在,在阴离子交换柱中可以定量被吸附,从而实现与以阳离子形式存在的 Cs⁺、Sr⁺ 等干扰元素的分离。此外,用 0.1 mol/L TOPO-环己烷从硝酸溶液中萃取 Pu(IV),酸度为 6~7 mol/L 时分配比最大,同时对其它诸如铀等元素的去污效果更明显^[12]。据此,设计了图 2 所示的化学分离流程。

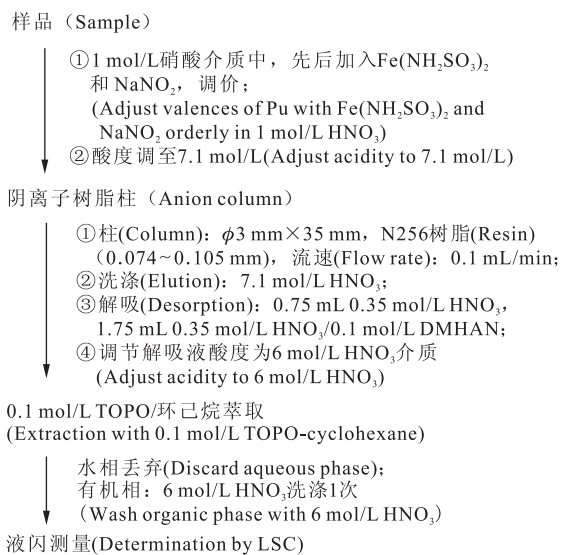


图 2 高放废液中钚的分离和纯化流程图

Fig. 2 Flow sheet of separation and purification of Pu from HLLW

2.2.3 高放废液中²⁴¹Pu 含量的测量 由式(4)推出高放废液中²⁴¹Pu 比活度的计算公式为:

$$a = A_{\beta}^0/m = \frac{C'_{\beta} \cdot T^0_{\beta/\alpha}}{T_{\beta/\alpha} - T^0_{\beta/\alpha}} \times \frac{1}{m} \times 250 \quad (8)$$

其中, a 是高放废液中 ^{241}Pu 比活度, Bq/g ; m 是每次进行全流程实验时高放废液的取样量, g ; 250 是高放废液的稀释倍数。

3 结果与讨论

3.1 化学收率及纯度验证

为了验证所建立的流程对 Pu 的回收率, 以

^{239}Pu 和 ^{241}Pu 为指示剂, 按照上述步骤, 即调价-柱分离-调酸-萃取的步骤对流程进行了验证, 结果列于表 1。由表 1 结果可以看到, 该流程对钚的回收率大于等于 95%。

称取 41.98 mg 已经被稀释了 250 倍的高放废液于 γ 测量管中, 用 HPGe γ 谱仪测量其中放射性核素的活度, 谱图示于图 3, 之后按照推荐的分离流程分离其中的钚, 所得产品用 HPGe γ 谱仪测量其中的 γ 活度, 产品谱示于图 4。

表 1 钚的回收率
Table 1 Recoveries of Pu

No.	指示剂 (Tracers)	$A_{\text{add}}(\text{Pu})/\text{min}^{-1}$	$A_{\text{mea}}(\text{Pu})/\text{min}^{-1}$	回收率 (Recovery)/%
1	^{239}Pu	4 651	4 459	96
2	^{241}Pu	3 084	2 927	95
3	^{241}Pu	8 081	8 154	101

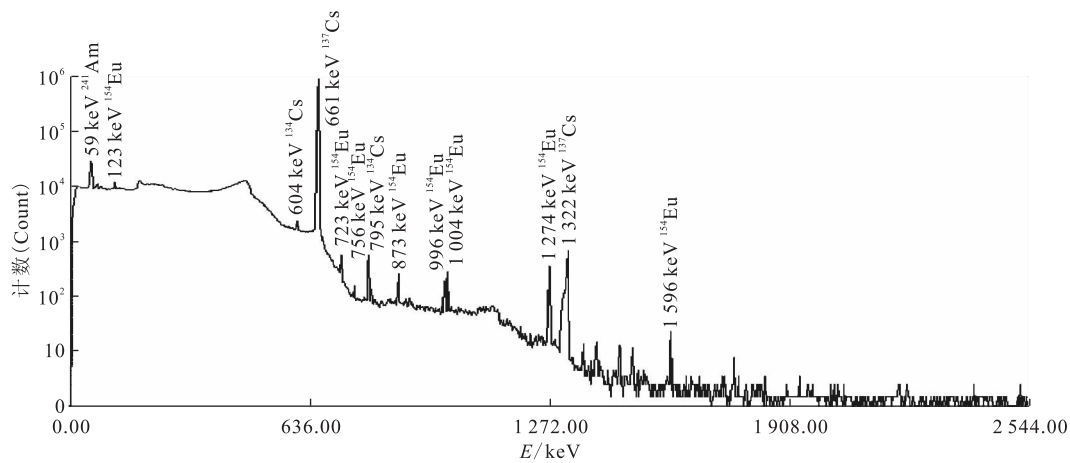


图 3 高放废液的 γ 谱图
Fig. 3 γ spectrum of HLLW

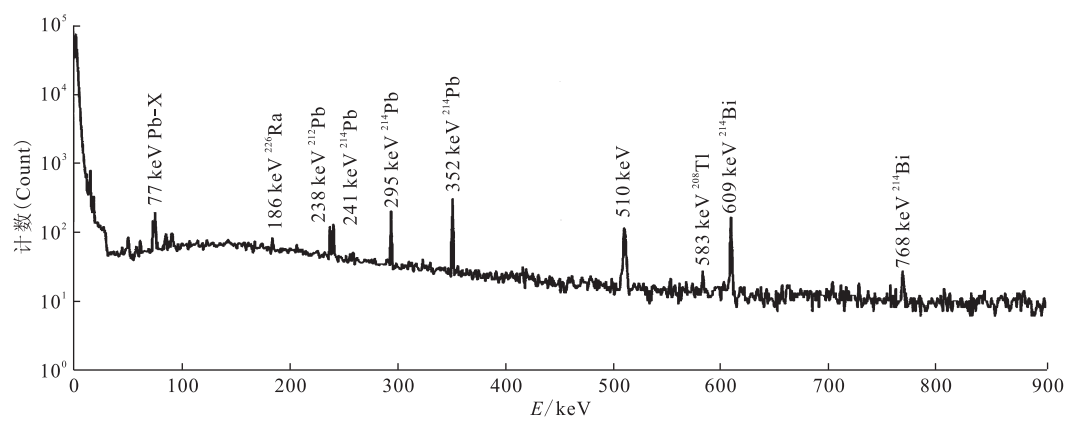


图 4 产品的 γ 谱图
Fig. 4 γ spectrum of production

图 4 中只能看到一些本底峰,这说明通过该流程后,产品中没有了¹³⁷Cs 等 γ 核素的干扰。选择分析原始溶液时¹³⁷Cs 的能谱峰宽,读出在这区间的本底计数,以三倍的总计数的平方根除以测量时间作为计数率的探测限($DL=3\sqrt{N}/t$, 其中,DL 为探测限, N 为时间 t 内的总计数),以此探测限作为分母,分离前测量的计数率为分子,得到相应的¹³⁷Cs 去污因子,则去污因子大于 9.02×10^5 。

用低本底液闪谱仪分析该产品,所得谱图示于图 5,标准²⁴¹Pu 的谱图示于图 6。由图 5、6 可以看到,2 个谱图在低能部分最大能量都在 15 keV 附近,谱形很接近,可以说得到的样品谱低能部分的核素就是²⁴¹Pu,这证明经过化学流程后得到了放化纯的钚溶液。在图 5 中,钚的 β 能峰和 α 能峰相差很远,不影响峰的分析。在液闪谱上没有叠加,可分别给出各自的放射性计数。这证明用同位素稀释法测量高放废液中²⁴¹Pu 的活度是可行的。

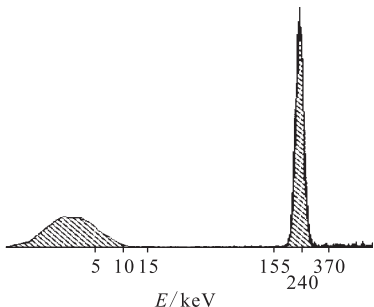


图 5 从高放废液中分出的钚样品液闪谱
Fig. 5 Liquid scintillation spectrum of production of Pu

3.2 淬灭效应对液闪谱图的影响

液闪谱上 β 能峰和 α 能峰能够很好分离,是实现放化纯钚样品中 α 和 β 核素活度比测量的前提。图 7 所示为加入不同量硝酸后、不同淬灭指数的钚样品在液闪谱仪上的能谱图。可以看到,当淬灭指数降低至 101.01 时,液闪谱仪上 α 和 β 的能谱峰依然分得很开,这证明用同位素稀释法测量高放废液中²⁴¹Pu 的活度可行;但这时, α 能峰已经前移至 35 keV 的位置,同时 β 核素计数效率降低使峰面积减少,这么严重的淬灭主要是由样品中的硝酸引起的,因此,采用有机相样品进行液闪测量能很好的规避样品中因水相酸度引起的淬灭影响,这样可以增大样品的淬灭指数,提高

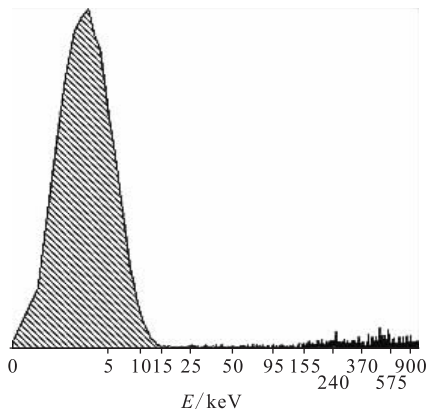


图 6 标准²⁴¹Pu 样品液闪谱
Fig. 6 Liquid scintillation spectrum of standard sample of ²⁴¹Pu

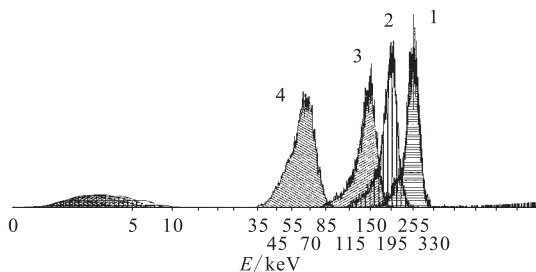


图 7 不同淬灭指数时 α 、 β 能谱图
Fig. 7 Liquid scintillation spectra with different quenching index
淬灭指数(Quenching index): 1——447.16, 2——330.80, 3——232.32, 4——101.01

α 、 β 能谱的分辨率。

3.3 探测效率

配制一系列的标准²⁴¹Pu 样品,保持与真实产品相同的制样条件,其中分别加入 0.0、1.0、2.5、3.5、4.0、4.5、5.0、6.0、7.0、8.0、9.0、10.0、11.0 mL 的 0.1 mol/L TOPO/环己烷,并用液闪液将体积全部加到 18.0 mL,用液闪谱仪测量。²⁴¹Pu 的探测效率曲线示于图 8。其中,淬灭指数最低为 244.92 时,样品中加入的 0.1 mol/L TOPO/环己烷是 11.0 mL,而样品总体积为 18.0 mL。这说明,即使该有机相体积很大,也不会引起很严重的淬灭效应,证明采用 TOPO/环己烷为体系的待分析样品,能很好的避免因为样品淬灭引起的低能 β 核素²⁴¹Pu 探测效率降低的问题。

受液闪谱仪内部结构、环境等因素的影响,同样的标准样品在不同时间测量得到的效率曲线会

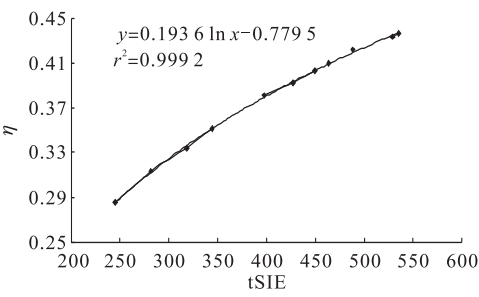


图 8 ²⁴¹Pu 的效率曲线
Fig. 8 Efficient curve of ²⁴¹Pu

稍有不同。因此,在测量真实样品时,标准样品也同时测量,以保证效率曲线的真实有效性。

3.4 高放废液中²⁴¹Pu 含量的测量

实际工作中,分别进行了多次高放废液样品和混合了²⁴¹Pu 稀释剂的高放废液样品的全流程实验。

3.4.1 高放废液中 $T_{\beta/\alpha}^0$ 值的获得 6 次高放废液全流程实验的结果列于表 2。由表 2 可知,高放废液中钚的 β 、 α 核素的活度比值 $T_{\beta/\alpha}^0$ 为 $1.624 \pm 0.006 (n=6)$, 相对标准偏差为 0.38%。

表 2 高放废液中 $T_{\beta/\alpha}^0$ 值的实验结果

Table 2 Experimental results of $T_{\beta/\alpha}^0$

No.	高放废液的质量 (Mass of HLLW)/g	$A_{\alpha}(\text{Pu})/\text{min}^{-1}$	$A_{\beta}(^{241}\text{Pu})/\text{min}^{-1}$	$T_{\beta/\alpha}^0$
1	0.055 76	1 042. 24	1 686. 95	1. 619
2	0.051 94	965. 56	1 569. 09	1. 625
3	0.054 17	720. 18	1 163. 59	1. 616
4	0.049 76	931. 62	1 516. 53	1. 628
5	0.066 85	1 116. 75	1 812. 78	1. 623
6	0.050 39	924. 39	1 509. 62	1. 633
				(1. 624±0. 006)

注(Note): 括号中为平均值(The datum in parenthesis is the average)

3.4.2 高放废液中²⁴¹Pu 的含量 7 次包含了高放废液样品和稀释剂²⁴¹Pu 混合样的实验结果列于表 3。从表 3 结果可以看到,2 种同位素交换方式下,得到高放废液中²⁴¹Pu 的活度值比较一致,

说明这两种方法都实现了稀释剂²⁴¹Pu 和高放废液中钚同位素间的交换平衡。稀释剂加入量少时,误差传递系数 $F_{T_{\beta/\alpha}}$ 值大,因此,在结果中引入的不确定度要高于稀释剂加入量多时的情况。由

表 3 高放废液实验结果
Table 3 Experimental results of HLLW

No.	同位素交换方式 (Isotopic exchange method)	样品组成(Sample composing)		实验结果(Experimental results)
		高放废液质量 (Mass of HLLW)/g	稀释剂活度 (Activity thinner)/Bq	高放废液中 ²⁴¹ Pu 比活度 (Specific activity of ²⁴¹ Pu in HLLW)/(Bq · g ⁻¹)
1	高酸中放置三个月以上	0.041 98	6. 01	(1. 746±0. 072)×10 ⁵
2	(Placed more than 3	0.037 12	6. 56	(1. 720±0. 072)×10 ⁵
3	months in 7 mol/L HNO ₃)	0.037 76	13. 02	(1. 755±0. 069)×10 ⁵
4	低酸时进行氧化还原	0.053 63	72. 46	(1. 716±0. 066)×10 ⁵
5	(Adjust valance in 1 mol/L	0.037 66	54. 00	(1. 743±0. 068)×10 ⁵
6	HNO ₃)	0.040 24	134. 69	(1. 755±0. 068)×10 ⁵
7		0.034 97	111. 70	(1. 751±0. 068)×10 ⁵
				((1. 741±0. 072)×10 ⁵)

注(Note): 括号中为平均值(The datum in parenthesis is the average)

以上实验得到高放废液中 ^{241}Pu 的比活度为 $(1.741 \pm 0.072) \times 10^5 \text{ Bq/g}$,平均值的不确定度按照单次实验的最大不确定度给出,结果的相对标准偏差为4.1%。不确定度的贡献主要来自稀释剂 C'_β ,因为实验中用到稀释剂(由证书给出)的不确定度为3.7%。

4 结 论

(1) 本工作建立了以阴离子交换和萃取法相结合从高放废液中分离和纯化钚的流程。高放废液样品经过该流程分离后得到放化纯的钚样品,钚的回收率大于等于95%,整个流程的操作时间为3 h。

(2) 运用在高酸中长期放置 ^{241}Pu 稀释剂和高放废液混合样后采用价态归一的方法和在低酸中对二者混合样直接进行价态归一的办法,都可以解决稀释剂 ^{241}Pu 和高放废液中钚同位素的交换平衡问题。

(3) 建立了同位素稀释-萃取液闪法测定低能 ^{241}Pu 核素含量的方法。该方法可以用于测定高放废液中 α 、 β 核素活度之比和 ^{241}Pu 的含量。

参考文献:

- [1] 卢玉楷. 简明放射性同位素手册[M]. 上海: 上海科学普及出版社, 2004: 445.
- [2] 唐培家, 刘大鸣, 魏启慧. 秦山核电站考验元件中 ^{239}Pu 和 ^{241}Pu 的测定[J]. 原子能科学技术, 1995, 29(5): 434-440.
- [3] 乔盛忠, 刘亨军. 辐照元件中钚及钚同位素含量的核物理测定方法[J]. 原子能科学技术, 1985, 47(1): 47-52.

- [4] 朱荣保, 杨留成, 王时举, 等. 用HPGe和Ge(Li)探测器测定 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu 丰度和 ^{241}Am 含量[J]. 原子能科学技术, 1983, 6: 673-678.
- [5] 张海路, 肖吉群, 袁 莉. 质谱同位素稀释法在钚量分析中的应用研究[J]. 原子能科学技术, 2003, 37(增刊): 166-168.
- [6] Gascon J L, Acena M L, Suarez J A, et al. Radiochemical Methods for the Determination of Plutonium, Americium and Curium in Typical Waste Streams[J]. J Alloys Compd, 1994, 213/214: 557-559.
- [7] Paatero J, Jaakkola T. Determination of the ^{241}Pu Deposition in Finland After the Chernobyl Accident [J]. Radiochimica Acta, 1994, 64: 139-144.
- [8] Aggarwal S K, Duggal R K, Radhika R. Comparative Study of Plutonium-239, Plutonium-240 and Plutonium-242 Spike for Determining Plutonium Concentration by Isotope Dilution-Thermal Ionization Mass Spectrometry[J]. Int J Mass Spectrom Ion Process, 1986, 71: 221-231.
- [9] Aggarwal S K, Chourasiya G, Duggal R K, et al. Experimental Evaluation of Plutonium-239 Spike for Determining Plutonium Concentration by Isotope Dilution-Thermal Ionization Mass Spectrometry[J]. Int J Mass Spectrom Ion Process, 1986, 69: 137-152.
- [10] The Radiochemistry of Pu[M]. US: Atomic Energy Commission, 1965: 122.
- [11] 杨大助. 萃取-液闪法测定镅、钚、镎的研究及其在高放废液分析中的应用[D]. 北京: 清华大学, 1990.
- [12] 罗文宗. 钚的分析化学[M]. 北京: 原子能出版社, 1991: 57.