

催化氧化-液闪法测量氢气中低水平氚浓度

武超, 张宾永, 任英, 刘艳, 李乐斌

中国原子能科学研究院, 北京 102413

摘要: **目的** 建立低于气体同位素质谱仪检测限的氢气中低水平氚浓度的测量方法。**方法** 通过自研的催化氧化装置利用铂疏水催化剂将氢气合成为水, 并考察不同实验条件对氢气转化率的影响; 然后用液闪分析方法对合成水中的氚浓度进行分析; 最后根据合成水的测量结果推算出氢气中的氚浓度。**结果** 固定氢气流量, 氢气转化率随反应温度的升高而升高、随氧气流量的增大先升高后减小, 经条件优化, 氢气可完全转化。在反应温度 110 °C、氧氢流量 100 mL/min 条件下, 将 HT 体积分数在($1 \times 10^{-7} \sim 2 \times 10^{-14}$)范围内的氢气合成为水并用液闪测量, 测量精度优于 2%。**结论** 该方法可以用于 HT 含量低于同位素质谱仪检测限的氢气中氚浓度的测量, 为低温精馏工艺分离能力的计算提供数据支撑。

关键词: 氢气; 催化氧化; 氚浓度; 液闪

中图分类号: R144 文献标识码: A 文章编号: 1004-714X(2024)03-0267-06

Quantitative detection of tiny amounts of tritium in hydrogen using the catalytic oxidation-liquid scintillation counting method

WU Chao, ZHANG Binyong, REN Ying, LIU Yan, LI Lebin

China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413 China

Abstract: **Objective** To establish a method for quantitative analysis of tiny amounts of tritium in hydrogen below the detection limit of isotope ratio mass spectrometer. **Methods** Hydrogen was oxidized to produce water in a self-developed catalytic oxidation device filled with platinum hydrophobic catalyst. The effects of different experimental conditions on hydrogen conversion rate were investigated. The tritium concentration in the synthetic water was measured using a liquid scintillation counter. The tritium concentration in hydrogen was calculated according to the measurement of the synthetic water. **Results** When the flow rate of hydrogen was fixed, the conversion rate of hydrogen increased with the increase of the reaction temperature but increased and then decreased with the increase of the flow rate of oxygen. Hydrogen could be completely converted under optimal experimental conditions. The hydrogen samples with volumetric tritium concentrations in the range of 1×10^{-7} to 2×10^{-14} were converted to water at the reaction temperature of 110 °C and hydrogen/oxygen flow rate of 100 mL/min. The resulting water was measured using a liquid scintillation counter. The measurement accuracy was better than 2%. **Conclusion** This method can be used to measure hydrogen samples with tiny amounts of tritium below the detection limit of isotope ratio mass spectrometer. Our results provide data support for the calculation of the separation capacity of cryogenic distillation process.

Keywords: Hydrogen; Catalytic oxidation; Tritium concentration; Liquid scintillation counter

核燃料在反应堆中通过核裂变和某些中子的反应产生氚^[1]。裂变产生的氚一部分渗透过燃料元件包壳进入冷却剂中, 一部分留在燃料元件和包壳中, 并随乏燃料进入后处理厂, 但现有乏燃料后处理工艺无法净化水中氚^[2-3]。联合电解液相催化交换技术^[4-5](combined electrolysis and catalytic exchange, CECE)和低温精馏技术^[6](cryogenic distillation, CD)是目前解决后处理厂含氚废水处理处置难题的有效技术手段^[7]。在该技术路线中, CECE 催化交换塔贫化段和 CD 精馏塔塔顶净化后的贫氚氢气直接向大气高空排放。建立贫氚氢气中氚浓度准确测量方法, 既可以保证排放气体达到排放标准, 又可以评估含氚废水处理工艺的净化性能。

在乏燃料后处理领域以外, 低含量氚浓度的测量方法在含氚核设施退役^[8]及其它涉氚领域同样有很重要的应用^[9]。目前, 低含量氚浓度的测量方法主要

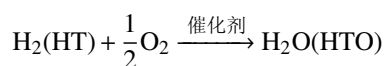
有电离室法、正比计数法和液闪计数法等^[10-13], 电离室法和正比计数法能够实现氚的在线测量, 但量程较窄, 对氚浓度变化大的应用场景需配置多台不同量程的设备实现氚的测量, 并且测量结果受记忆效应影响大, 可用于监测排放气体是否达标, 但用于评估工艺净化性能则会带来较大误差; 液闪法灵敏度高, 检测下限低, 没有记忆效应, 但不能直接用于气体样品测量。本文通过催化氧化将贫氚氢气转化为液态水, 然后用液体闪烁分析仪测量水中氚浓度的方式建立了氢气中低水平氚浓度的测量方法, 该方法灵敏度高、测量范围宽, 既可以直接测量极低浓度氚, 又可以通过稀释的方式测量较高浓度氚。

1 材料与方法

1.1 主要试剂、仪器与材料 低本底液体闪烁分析仪 (Tri-Carb 3110, 本底计数 < 15 cpm, 美国 Perkin-Elmer 公司); 氢气转化装置 (自研); 分析天平 (XPE205, 重复性 0.01 mg, 美国 METTLER TOLEDO 公司); 氚监测仪 (HY-OPTIMA™ 500, 量程 0.001 5%~100%, 美国 H2SCAN 公司); 移液器 (10 uL、100 uL、1000 uL, 德国 BRAND 公司)。

氚标准溶液 (1.59×10^6 Bq/L, 不确定度 $\pm 3.2\%$, $k=2$, 国防科技工业电离辐射一级计量站); 闪烁液 (ULTIMA GOLD™ LLT, 美国 PerkinElmer 公司); 四氯化碳 CCl_4 (分析纯, 国药化学试剂有限公司); 无氚水 (深井水); 高纯氧气、氦气、氢气 (纯度 > 99.999%, 北京氢普北分气体公司); 计数瓶 (20 mL, 美国 PerkinElmer 公司)。

1.2 氢气催化氧化方法 在催化剂的作用下, 氢气催化氧化的方程式为:



采用图 1 所示的氢气催化氧化装置在催化剂的作用下将贫氚氢气转化为液态水。具体转化方法是: 通过流量计控制进料比例, 分别通入样品氢气和过量氧气, 氧气过量一是确保氢气完全反应, 二是过量氧气可将合成水带出; 通过压力计记录管道压力, 如果转化过程中有压力骤降的现象, 需通入一定比例的惰性气体降低反应速率, 保障催化氧化反应温和进行; 装置合成室中填装自研氢氧复合铂疏水催化剂, 合成室外部包裹自动控温装置, 以保证反应温度恒定; 合成室下端接冷凝管, 将合成的水蒸气冷凝为液态水, 流入下方取样瓶中, 取样瓶浸泡于冰浴中, 进一步将

水蒸气冷凝, 同时取样瓶上端接一尾气管道, 将过量的氧气和惰性气体排出, 尾气管道后端接氚监测仪 (检测限 0.001 5%), 以验证氢气是否反应完全, 若氢气未完全反应, 由于合成过程存在氢同位素分馏, 合成水中的氚丰度与贫氚氢气中的氚丰度会有一定差异, 带来测量误差, 因此需调节氢气氧气进料流量或合成室反应温度, 确保氢气反应完全。在贫氚氢气完全反应的情况下, 取样瓶中无需取出所有的合成水, 合成水量满足液体闪烁分析仪的测量需求即可。取样完成后, 样品气切换为钢瓶氢气, 通过钢瓶氢气合成水清洗合成室, 清洗完成后关闭氢气阀门继续在高温下通入氧气吹干合成室备用, 应定期测量钢瓶氢气合成水中的氚浓度, 如果记忆效应已经影响到样品的分析, 则应更换合成室。合成室见图 2。

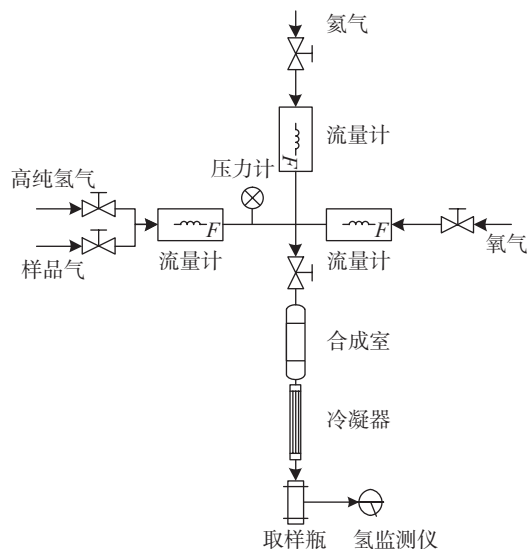


图 1 氢气催化氧化装置示意图

Figure 1 Schematic diagram of hydrogen catalytic oxidation unit



图 2 合成室

Figure 2 The synthesis chamber

1.3 样品液闪测量方法

1.3.1 样品制备方法 取 1 mL 无氚本底水, 加入到 20 mL 计数瓶中, 再加入 10 mL 闪烁液, 制备出本底样品; 取 1 mL 氚标准溶液, 加入到 20 mL 计数瓶中, 再加入 10 mL 闪烁液, 制备出氚标准样品; 取 1 mL 合成水样, 加入到 20 mL 计数瓶中, 再加入 10 mL 闪烁液, 制备出合成水待测样品; 样品摇晃混合均匀后密封避光保存备用。

1.3.2 样品测量方法 将配制好的无氚水本底样品、合成水待测样品放入液闪分析仪内, 避光 24 h, 每个样品测 2 个循环, 每个循环测 60 min, 记录测量数据。当样品计数率超出设备量程时, 将样品稀释相应倍数后再次测量。

1.3.3 液闪探测效率刻度方法 由于闪烁液及样品中的成分中存在某些杂质或干扰, 阻止光子发射, 从而降低液闪的技术效率, 导致其计数率低于活度值, 这种现象称为淬灭。为得到准确活度值, 应使用淬灭系列标准源建立淬灭指数与样品探测效率的关系曲线, 在 Tri-Carb 3 110 液闪分析仪中, 以外标转换谱指数 tSIE (transformed special index of external standard) 表征淬灭指数。

按 1.3.1 方法制备出 10 个相同的标准样品和 10 个相同本底样品, 本底样品与标准样品一一对应。在每个标准样品和本底样品中依次加入 10 uL、20 uL、30 uL……100 uL 递增数量的 CCl_4 , 得到 10 个淬灭校正系列标准源和 10 个淬灭校正系列本底。用 1.3.2 所述方法测量上述 20 个样品, 记录每个淬灭校正系列标准源的 tSIE 值, 以公式(1)计算液闪分析仪对 10 个淬灭校正系列标准源的探测效率。

$$E = \frac{N_s - N_b}{0.06 \times C_s \times V_s} \quad (1)$$

式中: E 为仪器探测效率; N_s 为标准样品计数率, min^{-1} ; N_b 为本底水样计数率, min^{-1} ; C_s 为氚标准溶液活度浓度(根据标定值与衰变公式计算得到实验当天活度浓度), Bq/L ; V_s 为氚标准溶液体积, mL 。

1.4 结果计算方法 合成水中氚的活度浓度计算公式为:

$$C_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{N_c - N_b}{0.06 \times E \times V_{\text{H}_2\text{O}}} \quad (2)$$

式中: $C_{\text{H}_2\text{O}}$ 为合成水中氚的活度浓度, Bq/L ; N_c 为合成水样品计数率, min^{-1} ; N_b 为本底样品计数率, min^{-1} ; E 为仪器探测效率; $V_{\text{H}_2\text{O}}$ 为被测样品量, mL 。

液闪测量结果是氢气合成水中的活度浓度, 需根

据氢气与合成水的体积比求得贫氚氢气中氚的活度浓度, 计算公式为:

$$C_{\text{H}_2} = \frac{M_{\text{H}_2\text{O}} \times P}{10^6 \times R \times T} \times C_{\text{H}_2\text{O}} = 8.03 \times 10^{-4} \times C_{\text{H}_2\text{O}} \quad (3)$$

式中: C_{H_2} 为氢气中氚的活度浓度, Bq/L ; $M_{\text{H}_2\text{O}}$ 为合成水的摩尔质量, 18.015 g/mol ; P 为标准大气压, 101325 Pa ; R 为摩尔气体常数, $8.314 \text{ J/(mol} \cdot \text{K)}$; T 为标准状况温度, 273.15 K 。

贫氚氢气中氚主要以 HT 的形式存在, 在评估精馏塔分离能力时, 为与塔底氚质谱测量结果相对比, 一般需要将氚的活度浓度转化为 HT 的体积百分比浓度, HT 的体积百分比浓度计算公式为:

$$A_{\text{HT}} = \frac{R \times T \times 10^3}{\lambda \times N_A \times P} \times C_{\text{H}_2} = 2.09 \times 10^{-14} \times C_{\text{H}_2} \quad (4)$$

式中: A_{HT} 为 HT 组分的体积百分比浓度, L/L ; λ 为氚的衰变常数, $1.782 \times 10^{-9} \text{ s}^{-1}$; N_A 为阿伏伽德罗常数, 6.02×10^{23} ; P 为标准大气压, 101325 Pa ; R 为摩尔气体常数, $8.314 \text{ J/(mol} \cdot \text{K)}$; T 为标准状况温度, 273.15 K ; C_{H_2} 为氢气中氚的活度浓度, Bq/L 。

2 结果

2.1 反应温度对氢气转化率的影响 固定氢气流量 100 mL/min , 氧气流量 100 mL/min 中的进料量, 分别在 40 、 60 、 80 、 100 、 $120 \text{ }^\circ\text{C}$ 合成室温度下通入高纯氢气, 以尾气中氢气含量表征氢气转化率, 结果见表 1。

结果表明, 氢气转化率随反应温度的升高而升高, 当反应温度高于 $80 \text{ }^\circ\text{C}$ 时, 尾气中氢气含量低于 0.0015% 。

2.2 进料流量对氢气转化率的影响 固定氢气流量 100 mL/min , 合成室温度 110°C , 分别在氧气流量 55 、 80 、 100 、 200 、 300 mL/min 条件下通入高纯氧气, 以尾气中氢气含量表征氢气转化率, 结果见表 2。

结果表明, 固定氢气进料流量和反应温度, 氢气转化率随氧气流量的增大先升高后降低。

2.3 液闪探测效率拟合 液闪对氚的探测效率与淬灭指数的关系见图 3 所示。拟合曲线 $E = 6.66 \times 10^{-8} x^3 - 1.83 \times 10^{-4} x^2 + 0.19x - 7.63$, $R^2 = 0.9999$ 。式中, E 为仪器探测效率(%), x 为淬灭指数 tSIE 值, 根据实际样品测量时的 tSIE 值即可得到对应的氚探测效率。

2.4 贫氚氢气中氚浓度测量结果 在氢气流量 100 mL/min , 氧气流量 100 mL/min , 催化反应温度 $110 \text{ }^\circ\text{C}$ 条件下, 将贫氚氢气合成为液态水, 用液闪分析仪分

表 1 反应温度对氢气转化率的影响

Table 1 Effect of reaction temperature on hydrogen conversion rate

反应温度/℃	40	60	80	100	120
尾气中氢气含量(%)	1.75	0.26	< 0.0015	< 0.0015	< 0.0015

表 2 进料比例对氢气转化率的影响

Table 2 Effect of feed ratio on hydrogen conversion rate

氧气流量/(mL/min)	55	80	100	200	300
尾气中氢气含量(%)	1.25	0.06	< 0.0015	0.0065	0.11

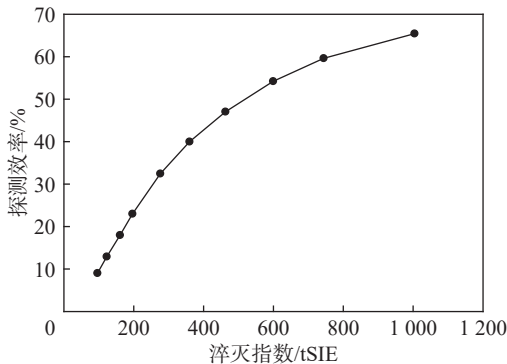


图 3 探测效率淬灭曲线

Figure 3 Quench curve for count efficiency

析合成水中氚浓度，测量及计算结果见表 3(样品 3 液闪测量结果为合成水稀释 10⁴ 倍的数值，氢气中氚浓度及 HT 的体积浓度为校正后的样品 3 原始数值)。

表 3 贫氚氢气中氚浓度测量结果

Table 3 Measurement of tritium concentration in tritium-poor hydrogen

测量次数	合成水液闪测量结果/(Bq/L)		
	样品1	样品2	样品3(稀释10 ⁴ 倍)
1	975	10 782	1395 780
2	1001	10 711	1396 341
3	1002	10 818	1396 282
4	999	10 815	1396 164
5	998	10 894	1395 248
6	974	10 594	1394 717
平均值	991	10 769	1395 756
相对标准偏差(%)	1.35	0.97	0.04
氢气氚浓度/(Bq/L)	0.80	8.64	1.12 × 10 ⁷
氢气中HT体积浓度/(L/L)	1.66 × 10 ⁻¹⁴	1.81 × 10 ⁻¹³	2.34 × 10 ⁻⁷

3 讨 论

分析工艺中氢同位素气体组分含量时，气体同位

素质谱仪应用最为广泛，但当组分体积浓度低于 1 × 10⁻⁶ 时，质谱仪无法测量^[14-15]。本文建立了贫氚氢气合成水液闪定值方法用于测量低于质谱仪检测限的样品。在将氢气合成水的方法中，直接燃烧法反应剧烈不易控制，加热还原法反应缓慢需要高温，而本文选择的催化氧化方法在催化剂作用下，降低了氢、氧反应的活化能，改变了氢氧复合的反应速度，既可以保证氢气完全反应，又不至于反应过于剧烈。

氢气转化率随反应温度升高而升高，这是因为温度升高会增强催化剂活性提高反应速度，进而提高转化率，但与此同时氢氧复合是强放热反应^[16]，反应速度过快有可能造成温度失控，进而烧毁催化剂甚至引起爆炸，因此反应温度不宜过高。在氧氢进料比例 1:1 的条件下，反应温度高于 80 ℃ 时，氢气完全反应，同时考虑到合成水蒸气相比于液态水更容易导出，反应温度稍高于 100 ℃ 为宜。

固定氢气流量和反应温度，氢气转化率随氧气流量的增大先升高后降低。这是因为开始阶段随氧气流量的增大，氧气过量程度升高，氢气反应更充分，转化率也就越高，但随氧气流量继续增大，气体在合成室中的反应时间缩短，导致部分氢气未反应便随尾气排出，降低了氢气转化率，同时过量氧气载带着合成水进入冷凝器的滞留时间相应缩短，也增大了冷凝器的冷凝压力，因此对于该催化氧化装置，综合考虑氢气转化率和合成水冷凝效果，在反应温度 110 ℃、氢气流量 100 mL/min 条件下，氧气流量设置为 100 mL/min 左右为宜。

为降低氢气合成装置记忆效应，保证测量准确度，应注意(1)氢气合成装置整体布局应按气体流向从上向下布置，利于合成水排出，避免合成水在装置中残留；(2)合成室在保证氢气完全反应的前提下，应尽量小型化，减小死体积和记忆效应；(3)贫氚氢气合成后，应用天然氢气合成水清洗合成室和冷凝器，并

在高温下用氧气吹干备用,并定期测量天然氢气合成水中的氚浓度,其结果影响样品分析时应及时更换合成室。同时为延长合成室使用寿命,应以管道压力是否骤降作为判断标准,控制反应条件使氢氧不发生爆炸反应,氢氧爆炸反应会使催化剂活性点局部温度过高,造成催化剂失活,影响后续氢气转化率。

经过条件优化,在氢气流量 100 mL/min,氧气流量 100 mL/min,催化反应温度 110 ℃ 条件下,将质谱仪无法定值的贫氚氢气样品合成水液闪测量。测量结果表明,对于 HT 体积浓度在($1 \times 10^{-7} \sim 2 \times 10^{-14}$)范围内贫氚氢气,该方法可以实现 HT 含量的准确定值,液闪测量精度优于 2%,为低温精馏工艺分离效果的计算提供了数据支撑。

利益冲突 本研究由署名作者按以下贡献声明独立开展,排名无争议。文章不涉及任何利益冲突

作者贡献声明 武超负责研究思路、系统设计、数据分析和论文撰写;张宾永、刘艳负责样品测量和数据处理;任英负责论文审阅;李乐斌负责控制系统设计与实现

参考文献

- [1] 高飞,杨林君,潘跃龙.压水堆核电站含氚废水产生与排放[J].核化学与放射化学,2016,38(1):52-56. DOI: 10.7538/hhx.2016.38.01.0052.
- [2] 刘红坤,唐辉,丘锦萌,等.内陆三代压水堆氚排放方式及处理技术探讨[J].给水排水,2022,48(S1):829-833. DOI: 10.13789/j.cnki.wwe1964.2022.04.01.0003.
- [3] 李金英,石磊,胡彦涛.我国乏燃料后处理大厂建设的几点思考[J].核化学与放射化学,2011,33(4):204-210.
- [4] 阮皓,胡石林,张丽,等.水-氢同位素液相催化交换工艺研究[J].原子能科学技术,2005,39(4):318-321. DOI: 10.3969/j.issn.1000-6931.2005.04.007.
- [5] 李俊华.氢-水液相催化交换法脱氚[J].原子能科学技术,2001,35(1):91-96. DOI: 10.3969/j.issn.1000-6931.2001.01.017.
- [6] 夏修龙,熊亮萍,任兴碧,等.低温精馏氢同位素分离技术及其应用[J].核技术,2010,33(3):201-206.
- [7] 刘江海,贾惠敏,于焱焱,等.后处理厂含氚废水处理技术[J].广东化工,2023,50(11):168-170. DOI: 10.3969/j.issn.1007-1865.2023.11.054.
- [8] 文炜,孙宇,邱永梅,等.退役核设施不锈钢中氚的分析[J].同位素,2012,25(2):78-81. DOI: 10.7538/tws.2012.25.02.0078.
- [9] 杨怀元,刘卫,温雪莲.反应堆退役废物中氚含量的测定方法研究[J].辐射防护,1996,16(3):203-208,240.
- [10] 彭述明,周晓松,陈志林.氚化学与氚分析进展与展望[J].核化学与放射化学,2020,42(6):498-512. DOI: 10.7538/hhx.2020.YX.2020075.
- [11] 高品,杨宝路,周强,等.氚内照射剂量估算方法的讨论[J].中国辐射卫生,2022,31(5):548-552,563. DOI: 10.13491/j.issn.1004-714X.2022.05.004.
- [12] 刘佳煜,郭涛,朱惠臣,等.气载氚监测仪校准用氚化甲烷体积活度测量方法及其不确定度分析[J].计量学报,2022,43(1):114-119. DOI: 10.3969/j.issn.1000-1158.2022.01.18.
- [13] 董传江,苟家元,蒲显恩,等.空气中氚的液体闪烁法测量条件优化[J].原子能科学技术,2023,57(8):1658-1664. DOI: 10.7538/yzk.2022.youxian.0689.
- [14] Li JH. Detritiation from heavy water by H₂-H₂O liquid phase catalytic exchange[J]. Atomic Energy Sci Technol, 2001, 35(1): 91-96. DOI: 10.3969/j.issn.1000-6931.2001.01.017.
- [15] Xia XL, Xiong LP, Ren XB, et al. Separation technology and application of cryogenic distillation hydrogen isotopes[J]. Nucl Techn, 2010, 33(3): 201-206.
- [16] 刘江海,贾惠敏,于焱焱,等.后处理厂含氚废水处理技术[J].广东化工,2023,50(11):168-170. DOI: 10.3969/j.issn.1007-1865.2023.11.054.
- [17] Liu JH, Jia HM, Yu TT, et al. Treatment of tritiated wastewater in reprocessing plant[J]. Guangdong Chem Ind, 2023, 50(11): 168-170. DOI: 10.3969/j.issn.1007-1865.2023.11.054.
- [18] 文炜,孙宇,邱永梅,等.退役核设施不锈钢中氚的分析[J].同位素,2012,25(2):78-81. DOI: 10.7538/tws.2012.25.02.0078.
- [19] Wen W, Sun Y, Qiu YM, et al. Analysis of tritium in stainless steel of decommissioned nuclear facilities[J]. J Isot, 2012, 25(2): 78-81. DOI: 10.7538/tws.2012.25.02.0078.
- [20] 杨怀元,刘卫,温雪莲.反应堆退役废物中氚含量的测定方法研究[J].辐射防护,1996,16(3):203-208,240.
- [21] Yang HY, Liu W, Wen XL. Determination of tritium content in reactor decommissioning waste[J]. Radiat Prot, 1996, 16(3): 203-208,240.
- [22] 彭述明,周晓松,陈志林.氚化学与氚分析进展与展望[J].核化学与放射化学,2020,42(6):498-512. DOI: 10.7538/hhx.2020.YX.2020075.
- [23] Peng SM, Zhou XS, Chen ZL. Progress of tritium chemistry and tritium analysis[J]. J Nucl Radiochem, 2020, 42(6): 498-512. DOI: 10.7538/hhx.2020.YX.2020075.
- [24] 高品,杨宝路,周强,等.氚内照射剂量估算方法的讨论[J].中国辐射卫生,2022,31(5):548-552,563. DOI: 10.13491/j.issn.1004-714X.2022.05.004.
- [25] Gao P, Yang BL, Zhou Q, et al. Discussion on dose estimation methods for internal exposure to tritium[J]. Chin J Radiol Health, 2022, 31(5): 548-552,563. DOI: 10.13491/j.issn.1004-714X.2022.05.004.
- [26] 刘佳煜,郭涛,朱惠臣,等.气载氚监测仪校准用氚化甲烷体积活度测量方法及其不确定度分析[J].计量学报,2022,43(1):114-119. DOI: 10.3969/j.issn.1000-1158.2022.01.18.
- [27] Liu JY, Guo T, Zhu HC, et al. Measurement method of volume radioactivity of tritiated methane for airborne tritium monitors calibration and its uncertainty analysis[J]. Acta Metrol Sin, 2022, 43(1): 114-119. DOI: 10.3969/j.issn.1000-1158.2022.01.18.
- [28] 董传江,苟家元,蒲显恩,等.空气中氚的液体闪烁法测量条件优化[J].原子能科学技术,2023,57(8):1658-1664. DOI: 10.7538/yzk.2022.youxian.0689.
- [29] Dong CJ, Gou JY, Pu XE, et al. Optimization of measurement condition for determination of tritium in air by liquid scintillation

- counting[J]. *Atomic Energy Sci Technol*, 2023, 57(8): 1658-1664. DOI: [10.7538/yzk.2022.youxian.0689](https://doi.org/10.7538/yzk.2022.youxian.0689).
- [14] Skrzypek G, Dunn PJH. Absolute isotope ratios defining isotope scales used in isotope ratio mass spectrometers and optical isotope instruments[J]. *Rapid Commun Mass Spectrom*, 2020, 34(20): e8890. DOI: [10.1002/rcm.8890](https://doi.org/10.1002/rcm.8890).
- [15] Lässer R, Caldwell-Nichols C, Dörr L, et al. Analytic of tritium-containing gaseous species at the Tritium Laboratory Karlsruhe[J]. *Fusion Eng Des*, 2001, 58-59: 411-415. DOI: [10.1016/S0920-3796\(01\)00473-2](https://doi.org/10.1016/S0920-3796(01)00473-2).
- [16] 邵明昶, 胡石林, 吴全锋. 常温催化氢氧化合过程研究[J]. *核化学与放射化学*, 2002, 24(3): 129-133, 178. DOI: [10.3969/j.issn.0253-9950.2002.03.001](https://doi.org/10.3969/j.issn.0253-9950.2002.03.001).
- Shao MC, Hu SL, Wu QF. Study of the recombination of H₂ and O₂ at ambient temperature[J]. *J Nucl Radiochem*, 2002, 24(3): 129-133, 178. DOI: [10.3969/j.issn.0253-9950.2002.03.001](https://doi.org/10.3969/j.issn.0253-9950.2002.03.001).
- (收稿日期: 2024-01-05)
-
- (上接第 253 页)
- [10] 李海亮, 梁红日, 朱建国, 等. 有用线束朝向迷路内墙的加速器机房辐射屏蔽计算[J]. *中华放射医学与防护杂志*, 2013, 33(4): 427-430. DOI: [10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2013.04.027](https://doi.org/10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2013.04.027).
- Li HL, Liang HR, Zhu JG, et al. Radiation shielding for medical linear accelerator room with useful beam towards its maze[J]. *Chin J Radiol Med Prot*, 2013, 33(4): 427-430. DOI: [10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2013.04.027](https://doi.org/10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2013.04.027).
- [11] 焦玲, 曹磊, 张文艺, 等. 医用加速器机房迷路辐射水平的测量与分析[J]. *中华放射医学与防护杂志*, 2008, 28(2): 172-174. DOI: [10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2008.02.024](https://doi.org/10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2008.02.024).
- Jiao L, Cao L, Zhang WY, et al. Measurement and analysis of radiation levels in mazes of medical accelerator rooms[J]. *Chin J Radiol Med Prot*, 2008, 28(2): 172-174. DOI: [10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2008.02.024](https://doi.org/10.3760/cma.j.issn.0254-5098.2008.02.024).
- [12] 张德钦, 潘翊, 杜晓宏, 等. 自屏蔽加速器屏蔽防护优化探讨[J]. *中国辐射卫生*, 2022, 31(4): 401-405, 412. DOI: [10.13491/j.issn.1004-714X.2022.04.003](https://doi.org/10.13491/j.issn.1004-714X.2022.04.003).
- Zhang DQ, Pan Y, Du XH, et al. An exploration of shielding optimization for self-shielded accelerators[J]. *Chin J Radiol Health*, 2022, 31(4): 401-405, 412. DOI: [10.13491/j.issn.1004-714X.2022.04.003](https://doi.org/10.13491/j.issn.1004-714X.2022.04.003).
- [13] Alpsten M. Radiological safety aspects of the operation of electron linear accelerators: IAEA, 1979; Technical Reports Series No. 188, 327 p. US \$36.00. [J]. *Nucl Instrum Methods*, 1979, 166(3): 591. DOI: [10.1016/0029-554X\(79\)90557-3](https://doi.org/10.1016/0029-554X(79)90557-3).
- [14] 冯泽臣, 翟自坡, 徐小三, 等. 《放射治疗机房的辐射屏蔽规范 第 2 部分: 电子直线加速器放射治疗机房》(GBZ/T 201.2-2011) 标准评估结果分析—医疗机构相关人员[J]. *中国辐射卫生*, 2023, 32(5): 484-488. DOI: [10.13491/j.issn.1004-714X.2023.05.002](https://doi.org/10.13491/j.issn.1004-714X.2023.05.002).
- Feng ZC, Zhai ZP, Xu XS, et al. Assessment of radiation shielding requirements for radiotherapy room—Part 2: Radiotherapy room of electron linear accelerators (GBZ/T 201.2-2011): A survey of relevant personnel in medical institutions[J]. *Chin J Radiol Health*, 2023, 32(5): 484-488. DOI: [10.13491/j.issn.1004-714X.2023.05.002](https://doi.org/10.13491/j.issn.1004-714X.2023.05.002).
- [15] 徐承, 李陈玮, 吉红波. 医用电子直线加速器机房施工综合技术[J]. 中文科技期刊数据库 (全文版) 工程技术, 2021(8): 246-249.
- Xu C, Li CW, Ji HB. The comprehensive construction technology for a medical electron linear accelerator room[J]. *Chinese Science and Technology Journal Database (full text version) Engineering Technology*, 2021(8): 246-249.
- (收稿日期: 2023-12-08)