



中国原子能科学研究院科学技术丛书

裂变产物分析技术

郭景儒 主编

 原子能出版社

中国原子能科学研究院科学技术丛书

裂变产物分析技术

郭景儒 主编

原子能出版社

图书在版编目(CIP)数据

裂变产物分析技术/郭景儒主编. —北京:原子能出版社,2008.12

(中国原子能科学研究院科学技术丛书)

ISBN 978-7-5022-4274-9

I. 裂… II. 郭… III. 裂变产物-分析 IV. TL277

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2008)第 181536 号

内 容 简 介

本书共分 22 章,主要内容可分为两个部分。第一部分 6 章,叙述有关裂变反应的基本知识以及裂变产物分析技术的方法学问题,包括放射化学分析法,核物理仪器测量法及电感耦合等离子体质谱法的原理和应用。第二部分 16 章,对重要的裂变产物元素逐个叙述它们的化学性质,分离及分析方法,并给出了推荐的分析程序。

本书可供核工业领域中从事裂变产物分析的科研和生产人员参考,也可供从事核事业的管理人员和高等院校有关专业师生参考。

裂变产物分析技术

出版发行 原子能出版社(北京市海淀区阜成路 43 号 100048)

责任编辑 谭 俊

责任校对 冯莲凤

责任印制 丁怀兰

印 刷 保定市中华美凯印刷有限公司

经 销 全国新华书店

开 本 787 mm×1092 mm 1/16

印 张 27.625

字 数 521 千字

版 次 2008 年 12 月第 1 版 2008 年 12 月第 1 次印刷

书 号 ISBN 978-7-5022-4274-9

印 数 1—2500 定 价 88.00 元

版权所有 侵权必究

网址:<http://www.aep.com.cn>

《中国原子能科学研究院科学技术丛书》

出版委员会

主 任 赵志祥

副主任 张昌明 柳卫平

委 员 (按姓氏笔画为序)

万 钢	王 楠	王阿凤	王国保	尹忠红	石永康
叶宏生	叶国安	刘森林	许谨诚	李林虎	李和香
李树源	杨丙凡	张东辉	张生栋	张立红	张和平
张锦荣	张静波	陈 凌	陈建欣	邵焕会	罗志福
岳维宏	赵崇德	柯国土	姜兴东	夏海鸿	强家华
樊 胜					

编审委员会

顾 问 (按姓氏笔画为序)

王乃彦	王方定	方守贤	阮可强	张焕乔	周永茂
钱绍钧	黄胜年	樊明武			

主 任 赵志祥

副主任 柳卫平 许谨诚

委 员 (按姓氏笔画为序)

勾 成	卢玉楷	叶国安	吕忠诚	朱升云	刘一兵
关遐令	汤秀章	杨红义	杨启法	肖雪夫	张万昌
张天爵	张先业	张伟国	张应超	陈玉宙	陈永寿
陈钟麟	范显华	林灿生	罗上庚	罗志福	竺礼华
金小海	金华晋	周祖英	姜 山	赵守智	贺佑丰
袁履正	顾忠茂	党淑琴	徐 铎	浦胜娣	容超凡
谢建伦	裴鹿成				

办公室

主 任 尹忠红

副主任 李来霞

成 员 (按姓氏笔画为序)

马英霞	王丽英	王宝金	伍险峰	张小庆	骆淑莉
韩翠娥					

《中国原子能科学研究院科学技术丛书》

编辑工作委员会

主 任 侯惠群

副主任 杨树录

委 员 (按姓氏笔画为序)

丁怀兰 王艳丽 刘 朔 李 宁 杨树录 张关铭

张铄清 赵志军 侯惠群 谭 俊

编辑工作小组

组 长 杨树录

副组长 丁怀兰 赵志军

成 员 (按姓氏笔画为序)

丁怀兰 王艳丽 刘 朔 李 宁 杨树录 张关铭

张铄清 赵志军 谭 俊

总 序

中国原子能科学研究院创建于1950年,是我国核科学技术的发祥地和先导性、基础性、前瞻性的综合性核科学技术研究基地。

在党中央和上级部门的关怀和指导下,中国原子能科学研究院为我国的国防建设、国民经济建设和核科学技术的发展做出了重要贡献,造就了7位“两弹一星”功勋科学家和60多位两院院士,培养了大批科技人才,在核物理、核化学与放射化学、反应堆工程技术、加速器工程技术、同位素技术、核电子学与核探测技术、辐射防护、放射性计量等学科形成了自己的特色和优势,并拥有核科学与技术和物理学两个一级学科硕士、博士学位授予权。

为了系统地总结原子能院在核科学技术相关优势学科积累的知识和经验,吸收和借鉴国内外核科学技术最新成果,促进我国核科技事业的发展,我院决定组织出版《中国原子能科学研究院科学技术丛书》,并选定王淦昌、肖伦、丁大钊、王乃彦、阮可强等院士编著的《惯性约束核聚变》、《放射性同位素技术》、《中子物理学——原理、方法与应用》、《新兴的强激光》、《核临界安全》5本专著首批出版,今后还将组织撰写更多的学术专著纳入本丛书系列。

谨以此套丛书献给为我国核科技事业献身的人们!

《中国原子能科学研究院科学技术丛书》出版委员会

2005年9月1日

前 言

核科学和技术领域经常遇到裂变产物分析方面的问题,一本阐述裂变产物分析技术的专著是这个领域的科研和生产人员所需要的。我和黄浩新同志曾在1985年主编出版过《裂变产物分析》一书,受到读者的欢迎。该书出版至今已有20余年,在这期间,核科学与技术有了巨大进步,在裂变产物分析领域也有许多新的分析方法出现。该书的内容已远不能反映这个领域的现状,因此有必要对原书进行修订补充。由于黄浩新同志已调往外地,则修订补充的工作由我一人承担。

修改补充后的内容与原书相比有较大变动。为了突显这种变化,将书名更改为《裂变产物分析技术》。除了对涉及的核数据进行更新外,原书中有五章因内容陈旧过时而删去。本书的前面几章阐述分析中涉及的方法学,在这方面新增加一章叙述ICP-MS方法,因为近年来这种方法发展十分迅速,在裂变产物的分析中起到越来越大的作用,甚至达到了例行分析的程度。本书的另一部分内容是按元素叙述的分析问题。原书中主要叙述在核燃料后处理、裂变产额和燃耗测量中遇到的裂变元素。近年来,随着核电站的发展,环境问题以及核废物处理处置问题日益引起人们的关注,与之相关的裂变产物分析也得到了快速发展,突出表现在长期被忽视的长寿命核素(如 ^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs , ^{107}Pd , ^{79}Se , ^{126}Sn)逐渐受到人们的关注。因此在本书中新增加了叙述钼、硒、锡分析的三章。在保留的那些章节中也补充了新的资料,其中,碘、铯、钨三章因需要补充的新内容太多,原来的章节结构已不适应,只能重新撰写。

全书中由本人撰写的共有七章,其余的十五章由长期从事裂变产物分析工作的其他专业人士撰写。他们具有扎实的理论知识及丰富的实践经验,这就使得本书的质量得到了保证。这些作者是:严叔衡(第一、

二章)、唐培家(第三章)、李金英、姚继军、刘峻岭(第四章)、苏树新、陈庆江、杨景霞(第五章)、赵敏、李瑞香(第六章)、张小枝(第八章)、贺先运(第十、十一章)、崔安智(第十二、二十二章)、魏启慧(第十四章)、黄浩新(第十七章)、张先梓(第十八章)、刘玉英(第二十一章)。

本书在撰写与出版过程中,得到了中国原子能科学研究院科技信息部主任尹忠红同志、放射化学研究所所长张生栋同志、核化学研究室主任丁有钱同志以及我的老同学金立云同志的关心和支持。罗文宗、李学良同志对书稿进行了认真的审阅。在书稿的打印、校对工作中得到了核化学研究室众多年轻同仁的帮助,他们是刘素环、杨春莉、舒复君、梁小虎、杨金玲、游新峰、宋志君、杨磊、杨志红、毛国淑、王秀凤、孙宏清、赵雅平、胡延涛、吴俊德、马鹏。作者对他们的支持、关心和帮助表示衷心的感谢。另外,对于书中可能出现的错误和不当之处,欢迎读者批评指正。

郭景儒

2007年12月

于中国原子能科学研究院

目 录

第 1 章 裂变反应和裂变产物	(1)
1.1 裂变反应	(1)
1.1.1 自发裂变	(1)
1.1.2 诱发裂变	(1)
1.1.3 诱发裂变的阈能	(1)
1.1.4 裂变能	(2)
1.1.5 瞬发中子	(2)
1.1.6 缓发中子	(2)
1.1.7 三分裂变	(2)
1.2 裂变产物	(3)
1.2.1 裂变产物衰变链	(3)
1.2.2 屏蔽核与准屏蔽核	(3)
1.2.3 缓发中子发射体	(4)
1.2.4 裂变产额	(4)
1.2.5 质量-产额曲线	(6)
1.2.6 裂变产物混合物的组成	(6)
第 2 章 裂变产物的放化分析	(8)
2.1 基本概念	(8)
2.2 载体	(9)
2.3 反载体	(10)
2.4 清除剂	(11)
2.5 载体与放射性核素的同位素交换	(11)
2.6 去污因子和去污实验	(13)
2.7 化学回收率的测定	(14)
2.8 测量源的制备	(15)
2.9 放射性纯度的鉴定	(15)
2.10 放射性测量	(16)
2.11 时间因素的考虑	(17)
2.12 放化分析的不确定度	(18)

第 3 章 裂变产物的放射性测量	(20)
3.1 引言	(20)
3.2 射线强度的相对测量	(20)
3.2.1 衰变类型及射线种类	(20)
3.2.2 用于 β 射线强度相对测量的仪器	(22)
3.2.3 用于 γ 射线强度相对测量的仪器	(23)
3.2.4 射线强度相对测量仪器的探测效率刻度	(23)
3.3 活度的绝对测量	(24)
3.3.1 固体样品- $4\pi\beta$ 流气式正比计数器测量	(24)
3.3.2 气体样品和液体样品的绝对测量	(26)
3.4 γ 能谱分析	(26)
3.4.1 放射性核素的特征 γ 射线	(26)
3.4.2 γ 射线强度与放射性核素活度的关系	(27)
3.4.3 特征 γ 射线能谱的测量	(28)
3.4.4 γ 能谱分析软件	(30)
3.5 液体闪烁测量	(38)
3.5.1 液体闪烁测量的主要对象	(38)
3.5.2 闪烁液的组成	(38)
3.5.3 液闪测量管	(39)
3.5.4 能量转换过程	(39)
3.5.5 淬灭及其校正	(39)
3.5.6 现代液闪谱仪的特点	(44)
3.5.7 液闪切伦科夫计数	(46)
3.6 短寿命裂变产物放射性样品的测量	(47)
3.6.1 核素半衰期的测量	(47)
3.6.2 短寿命裂变产物放射性测量	(48)
第 4 章 裂变产物的 ICP-MS 分析	(50)
4.1 ICP-MS 的工作原理及其性能	(50)
4.1.1 ICP-MS 的基本结构和原理	(50)
4.1.2 ICP-MS 的类型	(52)
4.1.3 ICP-MS 的可选件	(55)
4.1.4 ICP-MS 与其他元素分析方法的比较	(56)
4.2 ICP-MS 分析裂变产物的特殊考虑	(56)
4.2.1 保健物理和环境监测用 ICP-MS 实验室的设计	(56)

4.2.2	高放样品分析用 ICP-MS 的实验室设计	(57)
4.3	干扰	(58)
4.3.1	谱线干扰	(58)
4.3.2	补偿谱线干扰的方法	(59)
4.3.3	基体干扰	(61)
4.4	质量控制	(61)
4.4.1	ICP-MS 测量结果与放射性仪器测量结果的单位换算	(61)
4.4.2	ICP-MS 的校准	(62)
4.4.3	标准物质与标准方法	(65)
4.4.4	不确定度	(66)
4.5	ICP-MS 分析裂变产物在核工业中的应用	(66)
4.5.1	核燃料燃耗测定	(66)
4.5.2	高放废物的分析	(70)
4.5.3	核素半衰期的测定	(72)
4.5.4	环境和生物样品的分析	(72)
4.5.5	裂变产物元素分析各论	(72)
第 5 章	放射性测量样品的制备	(78)
5.1	绝对测量样品的制备	(78)
5.1.1	衬托膜的制备	(79)
5.1.2	定量取样和放射性溶液的贮存	(80)
5.1.3	源的制备方法	(83)
5.2	相对测量样品的制备	(88)
5.2.1	液体制源	(89)
5.2.2	直接蒸发制源	(90)
5.2.3	利用难溶化合物制源	(90)
5.2.4	电沉积制源	(93)
第 6 章	低水平放射性裂变产物的放化分析	(101)
6.1	低水平的放化分析的特点	(101)
6.1.1	样品放射性活度	(101)
6.1.2	样品成分	(101)
6.1.3	样品量	(102)
6.1.4	样品的吸附作用	(102)
6.1.5	样品空白值的测定	(102)
6.1.6	载体和示踪剂的加入	(104)

6.2	样品的预处理	(105)
6.2.1	固体样品的预处理	(105)
6.2.2	液体样品的预处理	(109)
6.3	低水平放射性裂变产物的物理测量	(112)
6.3.1	评选测量装置和方法的指标	(112)
6.3.2	降低最小探测极限的方法	(115)
6.3.3	低本底 β 射线测量装置	(117)
6.3.4	低本底 γ 射线测量装置	(119)
第7章	硒的分析	(124)
7.1	硒的同位素	(124)
7.2	硒的化学性质	(125)
7.2.1	元素硒	(125)
7.2.2	硒的化合物	(125)
7.3	硒的化学分离方法	(127)
7.3.1	沉淀法	(127)
7.3.2	蒸馏法	(127)
7.3.3	萃取法	(128)
7.3.4	离子交换法	(128)
7.4	^{79}Se 的分析方法	(129)
7.4.1	放化分析法	(129)
7.4.2	ICP-MS 法	(130)
7.5	推荐的分析程序	(131)
7.5.1	放化测定裂变产物中的放射性硒	(131)
7.5.2	放化分析高放废液中的 ^{79}Se	(132)
7.5.3	放化分析裂变产物中的 ^{79}Se	(133)
第8章	氪和氙的分析	(135)
8.1	氪和氙的同位素	(135)
8.2	氪和氙的性质	(138)
8.2.1	氪和氙的物理性质	(138)
8.2.2	氪和氙的化学反应	(139)
8.3	氪和氙分析的基本技术	(141)
8.3.1	样品采集和载体应用	(142)
8.3.2	Kr 和 Xe 分离纯化	(142)
8.3.3	Kr 和 Xe 测量技术	(144)

8.4	氮和氩的推荐分析程序	(148)
8.4.1	氮和氩的放化分析程序	(148)
8.4.2	氮和氩的质谱分析程序	(153)
8.4.3	氮和氩的色谱分析	(156)
第9章	锶的分析	(159)
9.1	锶的同位素	(159)
9.2	锶的化学性质	(160)
9.2.1	金属锶	(160)
9.2.2	锶的化合物	(161)
9.3	锶的化学分离方法	(161)
9.3.1	沉淀法	(161)
9.3.2	离子交换法	(162)
9.3.3	溶剂萃取法	(163)
9.3.4	萃取色层法	(164)
9.3.5	固相萃取片分离法	(166)
9.4	锶的放化分析	(166)
9.4.1	载体溶液的制备和标定	(167)
9.4.2	锶样品的放射性测量	(167)
9.4.3	典型的放化分析方法	(167)
9.5	^{90}Sr 的 ICP-MS 分析	(169)
9.6	^{90}Sr 的非破坏分析	(171)
9.6.1	切伦科夫计数法	(171)
9.6.2	韧致辐射测量法	(172)
9.7	^{90}Sr 的就地分析	(174)
9.7.1	^{90}Sr - ^{90}Y 测井技术	(175)
9.7.2	层式磷光闪烁探测器	(176)
第10章	锆的分析	(179)
10.1	锆的同位素	(179)
10.2	锆的化学性质	(180)
10.2.1	金属锆	(180)
10.2.2	锆的化合物	(180)
10.2.3	锆的水溶液化学	(182)
10.3	锆的分离方法	(183)
10.3.1	沉淀法	(183)

10.3.2	萃取法	(183)
10.3.3	离子交换法	(187)
10.3.4	萃取色层法	(188)
10.3.5	硅胶吸附法	(188)
10.4	锆的分析方法	(189)
10.4.1	放化分析法	(189)
10.4.2	电感耦合等离子体质谱法	(191)
10.5	推荐的分析程序	(192)
10.5.1	氟锆酸钡沉淀法放化测定 ⁹⁵ Zr 和 ⁹⁷ Zr	(192)
10.5.2	TTA 萃取法放化分析 ⁹⁵ Zr	(193)
10.5.3	杏仁酸沉淀法放化测定 ⁹⁵ Zr	(194)
10.5.4	PMBP 萃取法放化测定 ⁹⁵ Zr	(195)
10.5.5	TTA 萃取法放化分析 ⁹³ Zr	(196)
第 11 章	铌的放化分析	(199)
11.1	铌的同位素	(199)
11.2	铌的化学性质	(200)
11.2.1	金属铌	(200)
11.2.2	铌的化合物	(200)
11.2.3	示踪量铌的行为	(201)
11.2.4	络合作用	(202)
11.3	分离方法	(202)
11.3.1	沉淀法	(203)
11.3.2	萃取法	(203)
11.3.3	离子交换法	(205)
11.4	分析方法	(207)
11.5	推荐的分离程序	(208)
11.5.1	水解-8-羟基喹啉沉淀法	(208)
11.5.2	铜铁试剂铌萃取法	(209)
11.5.3	水解-BPHA 沉淀法	(211)
11.5.4	BPHA 萃取法	(212)
第 12 章	钼的放化分析	(216)
12.1	钼的同位素	(216)
12.2	钼的化学性质	(217)
12.3	钼的分离方法	(219)

12.3.1	沉淀法	(219)
12.3.2	萃取法	(220)
12.3.3	离子交换法	(225)
12.3.4	吸附法	(227)
12.4	载体溶液的配制和标定	(227)
12.4.1	载体溶液的配制	(227)
12.4.2	载体溶液的标定	(227)
12.5	推荐的分析程序	(228)
12.5.1	α -安息香肟萃取-钼酸铅沉淀法	(228)
12.5.2	α -安息香肟钼沉淀法	(229)
12.5.3	阴离子交换法	(230)
12.5.4	阴离子交换无载体测定法	(231)
12.5.5	乙酰丙酮萃取法	(231)
12.5.6	铜铁灵盐-氯仿萃取及离子交换法	(232)
第 13 章	铈的分析	(235)
13.1	铈的同位素	(235)
13.2	铈的化学性质	(235)
13.2.1	氧化态	(237)
13.2.2	金属铈	(237)
13.2.3	铈的化合物	(237)
13.3	铈的化学分离方法	(238)
13.3.1	蒸馏法	(238)
13.3.2	沉淀法	(238)
13.3.3	萃取法	(239)
13.3.4	离子交换法	(240)
13.3.5	固相萃取片法	(241)
13.4	铈的分析方法	(241)
13.4.1	重量法	(241)
13.4.2	分光光度法	(241)
13.4.3	放射化学分析法	(242)
13.4.4	中子活化分析法	(243)
13.4.5	电感耦合等离子体质谱法	(244)
13.4.6	放射化学传感器测量法	(245)
13.5	推荐的分析程序	(246)

13.5.1	放化法测定裂变产物中的锝	(246)
13.5.2	比色法测定高放废液中的锝	(247)
13.5.3	固相萃取片法测定地下水中的 ⁹⁹ Tc	(248)
13.5.4	中子活化分析法测定环境样品中的 ⁹⁹ Tc	(248)
13.5.5	ICP-MS法测定环境水样中的 ⁹⁹ Tc	(250)
第14章	钌的放化分析	(253)
14.1	钌的同位素	(253)
14.2	钌的化学性质	(254)
14.3	裂变产物钌在溶液中的状态和行为	(255)
14.3.1	亚硝酸钌的络合物	(255)
14.3.2	四氧化钌的挥发	(256)
14.4	钌的分离分析方法	(257)
14.4.1	载体溶液的配制与标定	(257)
14.4.2	蒸馏法	(258)
14.4.3	萃取法	(261)
14.4.4	沉淀法	(264)
14.4.5	离子交换法与柱色层法	(265)
14.5	推荐的分析程序	(267)
14.5.1	H ₂ SO ₄ -NaBiO ₃ 蒸馏法	(267)
14.5.2	H ₂ SO ₄ -H ₃ PO ₄ -NaBiO ₃ 蒸馏法	(268)
14.5.3	CCl ₄ 萃取法	(269)
14.5.4	吡啶衍生物萃取法	(270)
14.5.5	硫化钴共沉淀法	(271)
第15章	钨的分析	(275)
15.1	钨的同位素	(275)
15.2	钨的化学性质	(276)
15.2.1	金属钨	(276)
15.2.2	钨的化合物	(277)
15.3	钨的分离方法	(278)
15.3.1	沉淀法	(278)
15.3.2	溶剂萃取法	(279)
15.3.3	离子交换法	(281)
15.3.4	萃取色层法	(282)
15.4	钨的分析方法	(283)

15.4.1	放化分析法	(283)
15.4.2	电感耦合等离子体质谱法	(285)
15.5	推荐的分析程序	(285)
15.5.1	放化法测定裂变产物中的钷	(285)
15.5.2	快速放化分析 ²⁵² Cf 自发裂变产物中的 ¹¹⁴ Pd	(286)
第 16 章	锡的分析	(291)
16.1	锡的同位素	(291)
16.2	锡的化学性质	(293)
16.2.1	锡的氧化态	(293)
16.2.2	锡的化合物	(294)
16.3	锡的化学分离方法	(296)
16.3.1	蒸馏法	(296)
16.3.2	沉淀法	(296)
16.3.3	萃取法	(297)
16.3.4	离子交换法	(299)
16.4	锡的分析	(300)
16.4.1	放化分析法	(300)
16.4.2	ICP-MS 法	(301)
16.5	推荐的放化分析程序	(301)
16.5.1	放化分析裂变产物中的 ¹²¹ Sn 和 ¹²⁵ Sn	(301)
16.5.2	放化分析高放废液中的 ¹²⁶ Sn	(303)
第 17 章	铈的放化分析	(306)
17.1	铈的同位素	(306)
17.2	铈的化学性质	(307)
17.2.1	氧化态	(307)
17.2.2	金属铈	(307)
17.2.3	氢化物	(308)
17.2.4	氧化物	(308)
17.2.5	硫化物	(308)
17.2.6	卤化物	(308)
17.3	铈的分离分析方法	(309)
17.3.1	沉淀法	(309)
17.3.2	溶剂萃取法	(309)
17.3.3	蒸馏法	(311)