

# 三种分离富集气态<sup>14</sup>C流出物方法的效果初步探讨

张彦彪, 汪传高, 郭庐阵, 郭蒙蒙, 庞洪超, 骆志平, 陈凌

中国原子能科学研究院, 北京 102413

**摘要:** **目的** 考察膜分离、吸附分离和低温分离3种物理分离气态<sup>14</sup>C方法的分离效果, 筛选出最佳分离方法, 为<sup>14</sup>C在线监测中<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>的分离富集提供参考。**方法** 设计实验方案, 分别搭建3种分离实验装置进行分离纯化实验, 对3种方法分离CO<sub>2</sub>的纯度、回收率及分离时间进行分析。**结果** 3种分离方法对CO<sub>2</sub>均有一定分离效果, 在一定条件下获得20 mL样品气体, 膜分离法需用时0.5 h获得样品纯度为0.0486%~0.0488%VOL的CO<sub>2</sub>的气体, 回收率仅为2.5%~12.7%; MOF材料吸附分离法需消耗24~30 h, 获得样品纯度为20.2%~47.5%VOL的CO<sub>2</sub>的气体, 回收率为57.3%~63.2%; 低温分离法则要消耗3 h, 可获得样品纯度为96.0%~99.8%VOL的CO<sub>2</sub>的气体, 回收率为81.5%~92.5%。**结论** 低温分离法分离得到CO<sub>2</sub>纯度和回收率要比膜分离法和MOF材料吸附分离法高, 分离时间适中, 可为实现气态<sup>14</sup>C流出物快速测量中<sup>14</sup>C的富集技术提供参考。

**关键词:** 分离; 气态<sup>14</sup>C; 纯度; 回收率; 时间; 在线监测

中图分类号: TL75 文献标识码: A 文章编号: 1004-714X(2024)04-0364-06

## Preliminary study on the effectiveness of three separation and enrichment methods for gaseous <sup>14</sup>C effluent

ZHANG Yanbiao, WANG Chuangao, GUO Luzhen, WU Mengmeng, PANG Hongchao, LUO Zhiping, CHEN Ling  
*China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413 China*

**Abstract: Objective** To investigate the separation efficiency of three physical separation methods for gaseous <sup>14</sup>C, namely membrane separation, adsorption separation, and low-temperature separation, to screen for the optimal separation method, and to provide a reference for the separation and enrichment of <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> in online monitoring of <sup>14</sup>C. **Methods** The experimental plan was designed, and three devices were constructed for separation and purification experiments. The purity, recovery rate, and separation time of CO<sub>2</sub> separated by the three methods were analyzed. **Results** All the three methods achieved the separation of CO<sub>2</sub>. Under certain conditions, 20 mL of sample gas was obtained. The separation time of membrane separation method was 0.5 hour, CO<sub>2</sub> gas with a sample purity of 0.0486%-0.0488%VOL was obtained, and the recovery rate was only 2.5%-12.7%. The separation time of MOF material adsorption separation method was 24-30 hours, CO<sub>2</sub> gas with a sample purity of 20.2%-47.5%VOL was obtained, and the recovery rate was 57.3%-63.2%. The separation time of low-temperature separation method was 3 hours, CO<sub>2</sub> gas with a sample purity of 96.0%-99.8%VOL was obtained, and the recovery rate was 81.5%-92.5%. **Conclusion** The purity and recovery rate of CO<sub>2</sub> with low-temperature separation method were higher compared to membrane separation method and MOF material adsorption separation method. The separation time of low-temperature separation method was moderate. The low-temperature separation method can provide a reference for the enrichment technology of <sup>14</sup>C in the rapid measurement of gaseous <sup>14</sup>C effluent.

**Keywords:** Separation; Gaseous <sup>14</sup>C; Purity; Recovery rate; Time; Online monitoring

核电站和核燃料厂释放环境中的<sup>14</sup>C主要是以气态形式<sup>[1]</sup>, <sup>14</sup>C活度浓度可达200~400 Bq/m<sup>3</sup><sup>[2-3]</sup>。<sup>14</sup>C具有相当长的半衰期、环境中高居留时间、高同位素交换率, 容易同化为生物物质并通过食物链向人类富集, 形成内照射剂量<sup>[4-6]</sup>。联合国原子辐射影响科学委

员会(UNSCEAR) 2016报告指出<sup>14</sup>C是核燃料后处理排放的全球扩散长寿命放射性核素集体剂量的最大贡献者, 也是核反应堆运行产生的集体剂量的重要贡献者<sup>[7]</sup>。<sup>14</sup>C作为环境影响评价中重要核素<sup>[8]</sup>, 越来越引起核安全主管部门和公众的重视。针对核设施气

态流出物 $^{14}\text{C}$ 的测量现在常用灵敏度较高的液闪谱仪进行实验室测量,该技术采用无机碱液吸收,对气态流出物中的 $\text{CO}_2$ 或经催化氧化后的总碳气体进行连续取样,然后将吸收剂与闪烁液直接均匀混合测量,或者进一步将吸附剂和吸收剂经化学或物理方法将碳浓集净化,转化为不溶性碳酸盐粉末、苯等形式,与闪烁液混合后进行测量<sup>[9-11]</sup>。该类方法对 $^{14}\text{C}$ 探测下限较低,能满足较低水平的 $^{14}\text{C}$ 监测需要,但最大的问题是采样和测量周期长、样品分析处理流程复杂、自动化程度低,且伴有放射性废物产生<sup>[2,12]</sup>,无法满足核设施烟囱气体 $^{14}\text{C}$ 在线监测需要。

由于流出物中气态 $^{14}\text{C}$ 浓度通常十分低, $^{14}\text{C}$ 平均 $\beta$ 衰变能量仅为 $49.5\text{ keV}$ <sup>[13]</sup>,需先对气体进行分离纯化(除杂、催化氧化、富集),以便实现 $^{14}\text{C}$ 的在线测量。通过气溶胶过滤器、干燥器等可除去其它干扰放射性核素,通过催化氧化装置可将不同形式( $^{14}\text{CO}$ 、 $^{14}\text{CH}_4$ 等)转化为总碳 $^{14}\text{CO}_2$ 形式,以便进行 $^{14}\text{CO}_2$ 富集。本文研究3种较常见 $\text{CO}_2$ 富集方法(膜分离法、吸附分离法和低温分离法)的分离富集效果,旨在优选气态流出中 $^{14}\text{C}$ 富集方法,以便实现核设施气态 $^{14}\text{C}$ 流出物的快速测量,有助于核设施监管部门、运行单位和公众及时了解运行情况,为核事件/事故的有效预警提供技术支持。

## 1 材料与方法

### 1.1 试剂和仪器 (1)膜分离:BAE-GY300ES 静音

无油空压机,上海格素实业有限公司;中空纤维膜MNO-2022A 氮氧分离膜,青岛金源祥机械科技有限公司。(2)吸附分离:球形MOF材料(NbOFFIVE-1-Ni),粒径为 $0.81\sim 0.93\text{ mm}$ ,比表面积为 $280\text{ m}^2/\text{g}$ ,北京化工大学。(3)低温分离: $\text{CO}_2$ 低温分离系统,实验室研制;KDE210SA 型制冷机,中船重工鹏力(南京)超低温技术有限公司;KDC6000V 氮压缩机,中船重工鹏力(南京)超低温技术有限公司。

GC7860 气相色谱仪,上海宜友电子科技有限公司;样品加热解吸系统,实验室自制;标准气体:50 ppm 二氧化碳标准气体,大连大特气体有限公司;APES- $\text{CO}_2(100)\text{B}$  单一泵吸式二氧化碳气体检测仪,深圳市安帕尔科技有限公司。

1.2 实验方法 由于流出物中气态 $^{14}\text{C}$ 活度浓度较低( $200\sim 400\text{ Bq}/\text{m}^3$ ),通常以 $^{14}\text{CO}_2$ 、 $^{14}\text{CO}$ 、 $^{14}\text{CH}_4$ 等含碳化合物的形式存在,不便于探测器直接进行 $^{14}\text{C}$ 的测量,常需要将样品气体先进行净化除杂,再通过Pd催化剂将不同形式的 $^{14}\text{C}$ 转化为 $^{14}\text{CO}_2$ 形式,便于进行 $^{14}\text{C}$ 分离富集,以实现低活度浓度 $^{14}\text{C}$ 的在线测量。常用于 $^{14}\text{C}$ 分离富集方法有膜分离法、吸附分离法和低温分离法,富集分离得到的 $^{14}\text{CO}_2$ 纯度可由气相色谱测量其含量确定,基本路线如下图1。

为了实现 $^{14}\text{C}$ 的在线测量,需从膜分离法、吸附分离法和低温分离法选择出富集 $^{14}\text{CO}_2$ 效果较好的分离方法。

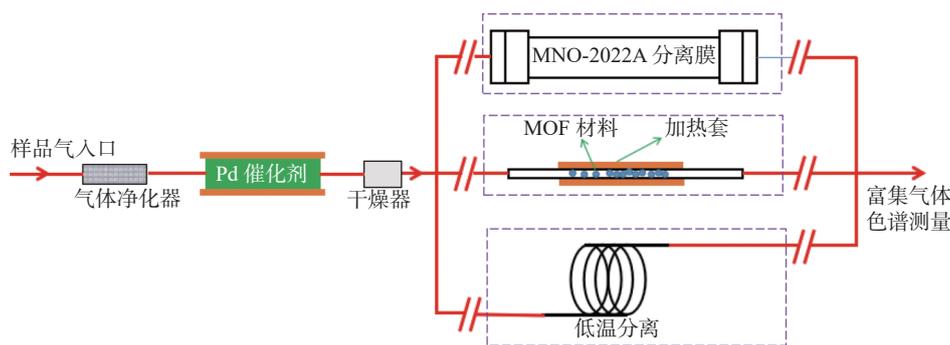


图1 气态流出物 $^{14}\text{C}$ 分离取样装置示意图

Figure 1 Schematic diagram of  $^{14}\text{C}$  separation and sampling device for gaseous effluent

1.2.1 膜分离法 膜分离法是利用不同气体通过某一特定膜的透过速率不同而实现混合气体分离,即渗透速率差来对压缩空气进行分离<sup>[14]</sup>,其传质推动力为膜两侧的分压差。本实验选用MNO-2022A 氮氧分离膜测试分离空气中 $\text{CO}_2$ 的分离效果,搭建了膜分离装置如图2,由于 $\text{CO}_2$ 分子直径和 $\text{O}_2$ 接近,快气出口中 $\text{CO}_2$ 浓度即为膜分离富集的 $\text{CO}_2$ ,由色谱仪测分

离膜快气出口的 $\text{CO}_2$ 浓度。

1.2.2 吸附分离法 固体吸附法分离 $\text{CO}_2$ 操作简单,运行成本较低,可获得较高纯度的 $\text{CO}_2$ 气体,需要选择适用于分离低浓度 $\text{CO}_2$ 的固体吸附材料。本文设计了 $\text{CO}_2$ 动态吸附装置,示意图如图3。

金属-有机骨架(MOF)材料是由金属节点和有机配体通过自组装形成的具有确定组成与结构的晶体

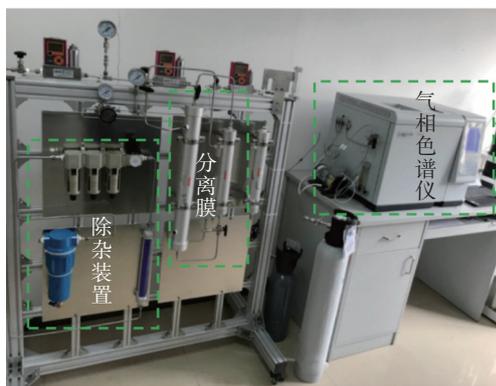


图2 CO<sub>2</sub>膜分离测试装置

Figure 2 CO<sub>2</sub> membrane separation device

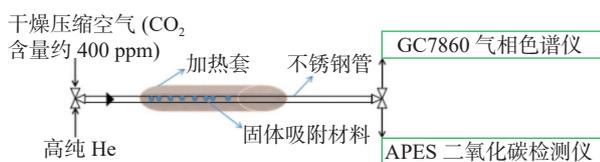


图3 CO<sub>2</sub>动态吸附解吸装置示意图

Figure 3 Schematic diagram of CO<sub>2</sub> dynamic adsorption/desorption device

多孔材料,可以有效解决传统多孔材料(活性炭、分子筛等)吸附动力学缓慢和吸附量低的问题<sup>[15]</sup>。目前可用于捕集 CO<sub>2</sub> 的固体吸附材料种类繁多,能用于空气中低浓度 CO<sub>2</sub>(约 400 ppm)吸附的固体材料较少,其中,对 CO<sub>2</sub> 吸附和选择性较好的主要有 NbOF-FIVE-1-Ni<sup>[16-17]</sup>,参照图3二氧化碳动态吸附解吸装置示意图搭建如图4的MOF材料动态吸附装置,按照此装置对 CO<sub>2</sub> 吸附 NbOFFIVE-1-Ni 材料进行吸附效果测试。



图4 MOF材料动态吸附装置

Figure 4 MOF material dynamic adsorption device

1.2.3 低温分离法 低温分离法是利用 CO<sub>2</sub> 相对于其他气体组分的冷凝点不同,使 CO<sub>2</sub> 产生相变实现分离。低温分离法没有化学吸收剂的参与,不会腐蚀管道,低温分离法得到的产品气体纯度高。但是,分离过程中气体中的水分易堵塞管道,分离前要先采取干燥措施,同时在操作过程中要严格控制冷凝水的量。

为实现 CO<sub>2</sub> 的低温高效分离,本文设计了 CO<sub>2</sub> 气体分离预处理装置,示意图如图5,利用液氮制冷机在无液氮耗材下,只使用电能将空气中的 CO<sub>2</sub> 储存在-150℃ 二级低温冷阱中,然后再通过加热系统即可将二氧化碳导出。

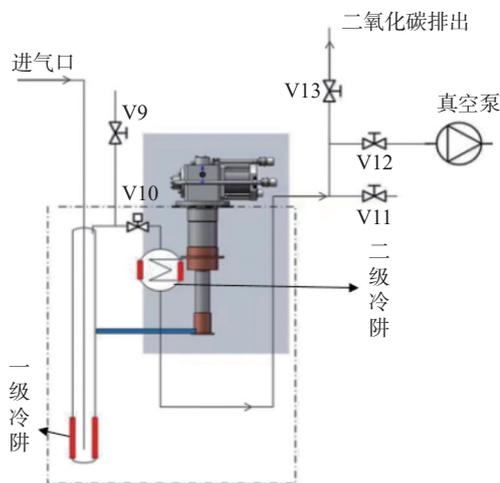


图5 低温分离装置示意图

Figure 5 Schematic diagram of low-temperature separation device

CO<sub>2</sub> 低温分离纯化装置实物如图6,装置启动后空气从空气除尘器以及滤水器进入2个低温冷阱后从机械真空泵出气口排出,空气中的水分90%通过滤水器过滤掉,剩余少量水分储存在一级冷阱中,二氧化碳以固体形式被冷冻在-150℃ 二级冷阱中,收集完成后,通过加热系统升温即可将二氧化碳导出,获得高纯二氧化碳。



图6 CO<sub>2</sub>低温分离纯化装置

Figure 6 CO<sub>2</sub> low-temperature separation and purification device

## 2 结果

2.1 膜分离效果 测试前先用 GC7860 色谱仪测压缩空气 CO<sub>2</sub> 浓度 400 ppm,在进膜压力 0.5 MPa,测试不同浓集倍数条件下分离效果见表1。

表1 不同浓集倍数条件下分离膜对CO<sub>2</sub>的分离效果(P=0.5 MPa)Table 1 Efficiency of CO<sub>2</sub> separation by membrane under different concentration factors at 0.5 MPa

序号	进膜流量/(L/min)	快气出口流量/(L/min)	快气浓集倍数	快气出口CO <sub>2</sub> 浓度/ppm		
				1#	2#	3#
1	11.2	0.7	15	475	471	470
2	24.7	0.82	30	465	468	459
3	32	0.8	40	456	456	457
4	9.8	0.98	10	456	457	457
5	5.1	1.65	3	488	486	488

由表1可知,不同快气浓集倍数条件下,快气出口中CO<sub>2</sub>浓度最大为488 ppm,不及进气口CO<sub>2</sub>浓度的两倍,膜分离得到的CO<sub>2</sub>纯度较低。

**2.2 吸附分离效果** 在室温(25℃)条件下,称取5 g NbOFFIVE-1-N球状颗粒,在100 SCCM的高纯He保护条件下,加热至130℃活化3 h,然后关闭加热,继续在100 SCCM的高纯He保护条件下吹冷降至室温,将高纯He进气阀切换至150 SCCM的干燥压缩空气(CO<sub>2</sub>含量约400 ppm)进气阀,由GC7860气相色谱仪分析出口CO<sub>2</sub>浓度,出气口从开始进样至吸附材料击穿前一直未测到CO<sub>2</sub>,NbOFFIVE-1-N材料吸附捕集CO<sub>2</sub>效率接近100%,达到临界吸附量(吸附材料从吸附至开始击穿的吸附量)进行吸附材料解吸,解吸完后进行活化再生。在同样条件下进行第二次吸附、解吸,连续5次测得NbOFFIVE-1-N对CO<sub>2</sub>的临界吸附量见表2,NbOFFIVE-1-N对CO<sub>2</sub>的最大吸附容量可达0.68 mmol/g。

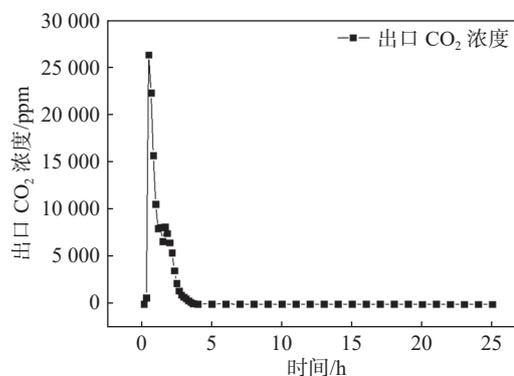
表2 5g NbOFFIVE-1-N材料对CO<sub>2</sub>的临界吸附量Table 2 Critical CO<sub>2</sub> adsorption capacity of 5 g NbOFFIVE-1-N material

序号	吸附CO <sub>2</sub> 体积/mL	吸附量/(mmol/g)
1	78.76	0.68
2	73.12	0.63
3	76.03	0.66
4	68.44	0.59
5	69.52	0.60

在室温(25℃)条件下,将击穿的NbOFFIVE-1-N吸附材料在100 SCCM的高纯He保护条件下加热至130℃进行解吸,通过GC7860气相色谱仪和APES手持CO<sub>2</sub>检测仪测其出口的CO<sub>2</sub>浓度(解吸状态),出口CO<sub>2</sub>浓度变化趋势见图7。

由图7可知,NbOFFIVE-1-Ni材料解吸25 h接

近解吸完全,出口CO<sub>2</sub>浓度仍有约2.1 ppm,若要完全解吸,需要更长时间。APES二氧化碳检测仪可测得其解吸出的最大CO<sub>2</sub>浓度可达47.5%VOL。

图7 出口CO<sub>2</sub>浓度变化趋势Figure 7 Time course of CO<sub>2</sub> concentration at the outlet

**2.3 低温分离效果** 不同温度条件下CO<sub>2</sub>低温分离纯化装置测试结果见图8。在25.0℃环境下,做冷冻CO<sub>2</sub>装置的条件实验,在-120℃和-130℃条件下做不同流量条件下的冷冻实验,几乎收集不到冷冻气体。继续降低温度,在-140℃、流量为18.0 SLPM冷冻条件下可以收集少量CO<sub>2</sub>气体。保持进气流量18.0 SLPM和总空气进气量1 m<sup>3</sup>不变,随着温度的逐渐降低(-145.0~-170.0℃),收集CO<sub>2</sub>量随着温度降低收集量逐渐增加,CO<sub>2</sub>浓度均在94.1%VOL以上。在-153.0℃时,CO<sub>2</sub>收集效率为81.3%、CO<sub>2</sub>收集浓度为96.0%VOL,耗时较少。随着温度进一步降低,能耗逐渐增加,CO<sub>2</sub>收集效率增加不明显,在-170.0℃收集浓度反而降低,可能是其他杂质气体冻下来随CO<sub>2</sub>一起被导出,因此,选择-153.0℃为最佳冷冻温度。

经过测试,进气1 m<sup>3</sup>空气(CO<sub>2</sub>浓度约400 ppm)可收集到约368 mL的CO<sub>2</sub>,CO<sub>2</sub>收集效率为92%,用APES CO<sub>2</sub>检测仪(检出限0.1%VOL)连续3次测量制冷收集到的CO<sub>2</sub>浓度,测得出口CO<sub>2</sub>浓度分别为99.8%VOL、99.5%VOL和99.6%VOL,CO<sub>2</sub>低温分离纯化装置分离纯化二氧化碳效果良好。

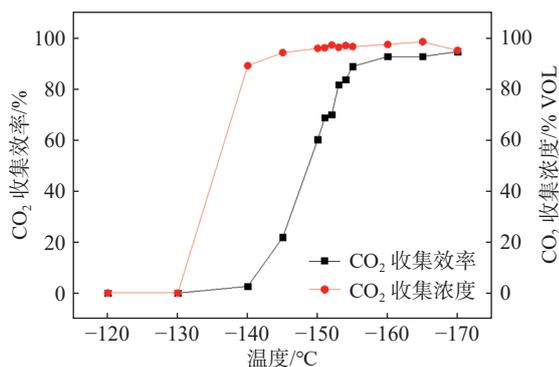


图 8 不同温度条件下 CO<sub>2</sub> 低温分离纯化装置测试结果

Figure 8 Test of CO<sub>2</sub> low-temperature separation and purification device under different temperature conditions

表 3 25℃ 环境下, 3 种分离方法富集 20 mL 样品的分离效果比较

Table 3 Comparison of separation efficiency of three separation methods for enriching 20 mL sample at 25 °C

分离方法	进样流量	平均分离时间/h	样品纯度(%)	回收率(%)
膜分离法	18.0 SLPM	0.5	0.0486~0.0488VOL	2.5~12.7
吸附分离法	18.0 SLPM	24~30	20.2~47.5VOL	57.3~63.2
低温分离法	18.0 SLPM	3	96.0~99.8VOL	81.5~92.5

注:平均分离时间为样品分离前准备、进行分离和分离后富集一个样品的时间。

### 3 讨论

本文通过对气态流出物中<sup>14</sup>C 的物理分离富集方法进行研究,分别搭建膜分离法、MOF 材料吸附分离法和低温分离法的分离富集实验装置,实验测试了 3 种方法在分离富集气态流出物中<sup>14</sup>C 的效果,经测试,制备相同体积的样品气体,低温分离法在较短的时间内可以获得较高纯度和回收率的样品气体。

基于低温分离技术研制的气态流出物中<sup>14</sup>C 分离纯化装置可以实现气态流出物中<sup>14</sup>C 的高效、快速分离,较现行规范<sup>[10]</sup> 建议的累积采样 7~15 d, 并需进行制样的方法,缩短了取样时间、简化了样品处理流程,实现了 3 h 内制备纯度不低于 96.0%VOL 的 CO<sub>2</sub> 的气体,有助于后端选择合适的探测器对样品气直接快速测量,对实现核设施气态流出物中<sup>14</sup>C 的在线测量具有重要借鉴意义。目前,低温分离装置样机中<sup>14</sup>CO<sub>2</sub> 发生相变的冷阱固有体积(170 mL)偏大,导致冷阱降温时间和进样分离时间均增加,使得分离时间(3 h)仍然较长,后续可以进行冷阱体积和装置内部布局优化,以达到缩短分离时间和实现分离装置小型化的目的。

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

2.4 3 种分离方法分离效果比较 在 25℃ 环境下,保持进样流量不变,综合比较 3 种方法制备 20 mL 样品气体的效果见表 3,膜分离法需用时 0.5 h 获得样品纯度为 0.0486%~0.0488%VOL 的 CO<sub>2</sub> 的气体,回收率仅为 2.5%~12.7%; MOF 材料吸附分离法需消耗 24~30 h,获得样品纯度为 20.2%~47.5%VOL 的 CO<sub>2</sub> 的气体,回收率为 57.3%~63.2%;低温分离法则要消耗 3 h,可获得样品纯度为 96.0%~99.8%VOL 的 CO<sub>2</sub> 的气体,回收率为 81.5%~92.5%。综合比较 3 种分离方法,低温分离法获得的样品纯度和回收率较高,平均分离时间适中。

作者贡献声明 张彦彪负责研究、构思设计、论文撰写;汪传高、郭庐阵负责参与修订论文;鄂蒙蒙负责参与实验;庞洪超、骆志平负责参与研究思路、修订论文;陈凌负责论文的审核

### 参考文献

- [1] United States Nuclear Regulatory Commission. Radioactive effluents from nuclear power plants[R]. Washington: U. S. Nuclear Regulatory Commission, 2021.
- [2] Genoud G, Lehmuskoski J, Bell S, et al. Laser spectroscopy for monitoring of radiocarbon in atmospheric samples[J]. *Analyt Chem*, 2019, 91(19): 12315-12320. DOI: 10.1021/acs.analchem.9b02496.
- [3] Genoud G, Vainio M, Phillips H, et al. Radiocarbon dioxide detection based on cavity ring-down spectroscopy and a quantum cascade laser[J]. *Opt Lett*, 2015, 40(7): 1342-1345. DOI: 10.1364/OL.40.001342.
- [4] IAEA. Management of waste containing tritium and carbon-14[R]. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2004.
- [5] Isogai K, Cook GT, Anderson R. Reconstructing the history of <sup>14</sup>C discharges from Sellafield: Part 1-atmospheric discharges[J]. *J Environ Radioact*, 2002, 59(2): 207-222. DOI: 10.1016/S0265-931X(01)00076-5.
- [6] Gulliver P, Cook GT, MacKenzie AB, et al. Transport of sellafield-derived <sup>14</sup>C from the Irish sea through the north channel[J]. *Radiocarbon*, 2001, 43(2B): 869-877. DOI: 10.1017/S0033822200041539.
- [7] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic

- Radiation. Sources, effects and risk of ionizing radiation UNSCEAR 2016 Report[R]. New York: UNSCEAR, 2017.
- [8] 上官志洪, 黄彦君, 蒋婧, 等. 压水堆核电厂流出物中<sup>14</sup>C的排放限值探讨[J]. 辐射防护, 2021, 41(6): 488-495.  
Shangguan ZH, Huang YJ, Jiang J, et al. Discussion on the release limits of <sup>14</sup>C in effluent from pressurized water reactor NPP[J]. Radiat Prot, 2021, 41(6): 488-495. (in Chinese)
- [9] 国家能源局. NB/T 20374—2016 核电厂烟囱的气载放射性物质取样[S]. 北京: 新华出版社, 2016.  
National Energy Administration. NB/T 20374—2016 Sampling airborne radioactive materials from the stacks of nuclear power plant[S]. Beijing: Xinhua Publishing House, 2016. (in Chinese)
- [10] 北京市辐射安全研究会. T/BSRS 007—2019 核电厂气态流出物中<sup>14</sup>C分析技术规范[S]. 2019.  
Beijing Radiation Safety Research Association. T/BSRS 007—2019 Technical specification for <sup>14</sup>C analysis of gaseous effluents for nuclear power plants[S]. 2019. (in Chinese)
- [11] 刘文娜, 丁洪深, 赵新景. 生物样品中碳-14分析测量方法探讨[J]. 中国辐射卫生, 2022, 31(4): 433-436. DOI: 10.13491/j.issn.1004-714X.2022.04.009.  
Liu WN, Ding HS, Zhao XJ. Analysis and measurement method for carbon-14 in biological samples[J]. Chin J Radiol Health, 2022, 31(4): 433-436. DOI: 10.13491/j.issn.1004-714X.2022.04.009. (in Chinese)
- [12] Lehmuskoski J, Vasama H, Hämäläinen J, et al. On-line monitoring of radiocarbon emissions in a nuclear facility with cavity ring-down spectroscopy[J]. *Analyt Chem*, 2021, 93(48): 16096-16104. DOI: 10.1021/acs.analchem.1c03814.
- [13] L'Annunziata MF. Handbook of radioactivity analysis: volume 2: radioanalytical applications[M]. San Diego: Academic Press, 2020. DOI: 10.1016/C2017-0-01513-6.
- [14] 郭庐阵, 庞洪超, 汪传高, 等. 核设施气态放射性氙在线监测系统研制[J]. 中国辐射卫生, 2024, 33(1): 56-60. DOI: 10.13491/j.issn.1004-714X.2024.01.010.  
Guo LZ, Pang HC, Wang CG, et al. Development of an online radioactive xenon gas monitoring system for nuclear facilities[J]. Chin J Radiol Health, 2024, 33(1): 56-60. DOI: 10.13491/j.issn.1004-714X.2024.01.010. (in Chinese)
- [15] Lai JY, Ngu LH, Hashim SS. A review of CO<sub>2</sub> adsorbents performance for different carbon capture technology processes conditions[J]. *Greenhouse Gas Sci Technol*, 2021, 11(5): 1076-1117. DOI: 10.1002/ghg.2112.
- [16] Zhang ZQ, Ding Q, Cui JY, et al. High and selective capture of low-concentration CO<sub>2</sub> with an anion-functionalized ultramicroporous metal-organic framework[J]. *Sci China Mater*, 2021, 64(3): 691-697. DOI: 10.1007/s40843-020-1471-0.
- [17] Bhatt PM, Belmabkhout Y, Cadiau A, et al. A fine-tuned fluorinated MOF addresses the needs for trace CO<sub>2</sub> removal and air capture using physisorption[J]. *J Am Chem Soc*, 2016, 138(29): 9301-9307. DOI: 10.1021/jacs.6b05345.

(收稿日期: 2024-02-01)

## (上接第363页)

- [12] 许丰, 於国兵, 徐平, 等.  $\gamma$ 能谱分析中马林杯体源几何修正[J]. 核电子学与探测技术, 2021, 41(6): 1074-1079. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2021.06.024.  
Xu F, Yu GB, Xu P, et al. Geometric correction of marinelli BeakerSource in gamma spectrometry[J]. *Nucl Electron Detect Technol*, 2021, 41(6): 1074-1079. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0934.2021.06.024. (in Chinese)
- [13] 王硕, 杨宝路, 周强, 等. 无源效率刻度在马林杯状气体源活度测量中的应用[J]. 中国辐射卫生, 2022, 31(1): 6-12. DOI: 10.13491/j.issn.1004-714X.2022.01.002.  
Wang S, Yang BL, Zhou Q, et al. Application of sourceless efficiency calibration in activity measurement of gas source in Marinelli beaker[J]. *Chin J Radiol Health*, 2022, 31(1): 6-12. DOI: 10.13491/j.issn.1004-714X.2022.01.002. (in Chinese)
- [14] 拓飞, 张京, 李文红, 等. 食品放射性测量中马林杯干样与圆柱盒灰样探测限比较研究[J]. 中国医学装备, 2014, 11(11): 1-4. DOI: 10.3969/J.ISSN.1672-8270.2014.11.001.  
Tuo F, Zhang J, Li WH, et al. Comparison of minimum detectable concentration achieved by method of Marinelli backer filled with powder samples to that of cylindrical backer filled with ash samples during radioactivity measurement of food[J]. *China Med Equipment*, 2014, 11(11): 1-4. DOI: 10.3969/J.ISSN.1672-8270.2014.11.001. (in Chinese)
- [15] 姚帅墨, 张庆, 周强, 等. 食品和饮用水放射性监测时测量时间与探测限关系初步研究[J]. 中国辐射卫生, 2016, 25(2): 150-153. DOI: 10.13491/j.cnki.issn.1004-714X.2016.02.007.  
Yao SM, Zhang Q, Zhou Q, et al. A preliminary study on the relationship between measured time and the minimum detectable concentration (MDC) of samples during radioactivity measurement of food and drinking-water[J]. *Chin J Radiol Health*, 2016, 25(2): 150-153. DOI: 10.13491/j.cnki.issn.1004-714X.2016.02.007. (in Chinese)
- [16] 于安雁, 赵永生, 丁泮. 降低HPGe谱仪探测限的方法的探讨[J]. 中国新技术新产品, 2016(11): 20-21. DOI: 10.3969/j.issn.1673-9957.2016.11.014.  
Yu AY, Zhao YS, Ding P. Exploration of methods to reduce the detection limit of HPGe gamma spectrometers[J]. *New Technol New Prod China*, 2016(11): 20-21. DOI: 10.3969/j.issn.1673-9957.2016.11.014. (in Chinese)
- [17] 王茜, 李雪泓, 李春阳, 等. 低本底实验室 $\gamma$ 谱仪探测限研究[J]. 四川环境, 2018, 37(6): 118-123. DOI: 10.14034/j.cnki.schj.2018.06.019.  
Wang Q, Li XH, Li CY, et al. Study on minimum detectable concentration of the  $\gamma$  spectrometer in low-background laboratory[J]. *Sichuan Environ*, 2018, 37(6): 118-123. DOI: 10.14034/j.cnki.schj.2018.06.019. (in Chinese)

(收稿日期: 2024-01-10)