

基于固体聚合物膜电解槽的新型水中氚电 解浓集仪研制

陈文涛 周睿东 林 清 王家玥 邓 飞 李巧勤

(广东省环境辐射监测中心 广州 510300)

摘要 目前环境中大部分水体氚(^3H)活度浓度水平已低于常用的液体闪烁测量方法的探测限,为准确测量氚的活度浓度,需要对样品中的氚进行浓集。广东省环境辐射监测中心通过分析氚在电解浓集过程中的影响因素,在关键部件的设计与研究基础上,研制出一款基于固体聚合物膜(Solid Polymer Electrolyte, SPE)电解槽的新型水中氚电解浓集仪,并对其综合性能进行了一系列测试实验,700 mL的水样经过浓集后测量,氚的探测限可降至 $0.09 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$,比浓集前降低了10倍以上,提高了低水平氚的测量能力。该浓集仪可用于环保、地质水文、海洋、卫生、核电等领域。

关键词 氚, 电解浓集, 研制, 固体聚合物膜

中图分类号 TL812.2

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2019.hjs.42.020403

Development of a new SPE electrolytic enrichment instrument for tritium in water samples

CHEN Wentao ZHOU Ruidong LIN Qing WANG Jiayue DENG Fei LI Qiaoqin

(Guangdong Environmental Radiation Monitoring Center, Guangzhou 510300, China)

Abstract [Background] The ^3H activity concentration of most water samples in environment is lower than the detection limit of commonly used liquid scintillation measurement method. In order to measure the ^3H activity concentration accurately, we need to enrich tritium from water sample. [Purpose] This study aims to develop an electrolytic enrichment instrument to meet the needs of daily environmental tritium analysis work. [Methods] First of all, influence factors of tritium in electrolytic concentration process were analyzed, then a new solid polymer electrolyte (SPE) electrolytic enrichment instrument was developed on the basis of the research and design of key components at Guangdong environmental radiation monitoring center (GERC). Finally, a series of experiments have been carried out on its comprehensive performance and the patent of the instrument has been obtained by GERC. [Results] After electrolytic enrichment, the detection limit of tritium in 700 mL water sample can be reduced to $0.09 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$, more than 10 times lower than that before enrichment, hence greatly improves the tritium detection capability. [Conclusion] This instrument has features of stable performance, long life, good safety, high electrolytic efficiency, high enrichment multiple, accurate control and good experience, it can be used in environmental protection, geology, hydrology, ocean, health, nuclear power and other fields.

第一作者: 陈文涛, 男, 1985年出生, 2010年毕业于华南理工大学, 工程师, 研究领域为辐射环境监测技术与评价

通信作者: 周睿东, E-mail: 417371437@qq.com

收稿日期: 2018-06-28, 修回日期: 2018-12-29

First author: CHEN Wentao, male, born in 1985, graduated from South China University of Technology in 2010, engineer, focusing on monitoring technology and evaluation of radiation environmental

Corresponding author: ZHOU Ruidong, E-mail: 417371437@qq.com

Received date: 2018-06-28, revised date: 2018-12-29

Key words Tritium, Electrolytic enrichment, Develop, Solid polymer electrolyte

氚(^3H , $T_{1/2}=12.28\text{ a}$)是核动力厂的重要排放核素,目前还不能通过常规三废设施对其进行减容、浓缩等处理,无论是压水堆还是重水堆, ^3H 均为液态和气态流出物中主要排放核素^[1]。排放至环境中的 ^3H 主要以氚化水(HTO)和有机结合氚(OBT)形式存在,参与自然界水循环,是集体剂量贡献的重要核素。环境中氚活度浓度水平在20世纪50~60年代密集的大气层核试验期间显著升高,后来随着国际上全面禁止核试验条约的签署,氚的活度浓度水平逐步回落至接近天然本底水平^[2-4]。当前我国环境中大部分水体的氚活度浓度水平(直接测量)已低于常用的液体闪烁测量方法的探测限^[5-7](探测限约为 $1.0\text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$),为准确测量环境水体氚活度浓度,则需要对样品中的氚进行浓集。

目前国内市场上有多种水中氚电解浓集设备,基本可满足工作需要,但其安全性、操作性和稳定性有待提高。广东省环境辐射监测中心(Guangdong Environmental Radiation Monitoring Center, GERC)根据监测任务需要以及低水平氚测量在众多领域的应用前景,研制出一款基于固体聚合物膜(Solid Polymer Electrolyte, SPE)电解槽的新型水中氚电解浓集仪,并对其综合性能进行了一系列的测试实验。本文就研制和测试过程的结果作了阐述。

1 研制方法

1.1 方法的选择

利用氚化水(HTO)较 H_2O 难电解的原理,通过电解可以使水样中氚被浓集。《水中氚的分析方法》(GB 12375-90)推荐使用碱式电解浓集法,作为传统水中氚浓集方法,需要的设备结构简单、组装方便、价格便宜,但存在着电解液腐蚀电极、电流密度小、耗时长、性能不稳定、操作繁琐、浓缩率受限等问题,最重要是电解产生的氢气与氧气不能完全隔离,易产生爆鸣气体,安全性受影响。

SPE电解槽技术自20世纪60年代出现以来,已在众多领域得到研究应用,如重水中氚的分离^[8]、燃料电池研制、潜艇中制氧,在水中氚浓集分析方面也有应用报道^[9-10],但对整体的浓集装置而言,其性能还有很大提升空间,如性能长期稳定性、安全性。SPE电解方法是用固体聚合物膜作为电解质,一般指质子交换膜,如Nafion、Fumapem类的固体聚合物膜,SPE膜的两面为阴阳催化电极,工作时,水在阳极生成 O_2 和 H_3O^+ , H_3O^+ 通过SPE膜到达阴极,生成

H_2 ,SPE膜既为质子传输提供通道,同时也隔绝了 O_2 和 H_2 的渗透及混合,不会产生爆鸣气体。与碱式电解浓集法相比,SPE电解浓集法具有安全性高、电流密度大、结构紧凑、维护简便等优点。以SPE膜为代表的水中氚电解浓集方式,是氚浓集的主要发展方向。

1.2 设计方案的确

SPE水中氚电解浓集仪的研制关键是最终所浓集样品的氚测量结果可量值溯源。在设计时综合分析电解过程中氚的影响因素,需要控制好剩余体积、氚回收率、电解浓集倍数、最终样品性状、电解时长等参数。同一台套电解浓集仪在经过整机刻度后,上述参数应当确定,并且具备长期稳定性,才可满足量值溯源的要求。

为缩短浓集时间,提高电解效率,在不损坏电解槽前提下,需尽可能地提高电解电压,所以选择在放热反应区进行电解浓缩。电解过程不断放热,样品温度随之升高,HTO蒸发损失增加,氢与氚的交换反应平衡常数减小^[11],不利于氚的浓集,电解效率与氚回收率是相互制约的关系。为得到合理高且稳定的氚回收率,设计了性能可靠的冷却系统,并兼顾安全性。冷却系统采用双重冷却设计,一是采用水冷及风冷方式对电解槽以及逸出气体进行循环冷却,二是将整个发热部件置于低温环境中工作。

最终电解剩余体积的精准控制关系到整个浓集仪研制成败,利用光在不同透明介质有不同折射角度的原理与激光定向特性,GERC研发出一种新型非接触式液面控制系统,做到了液面的精确控制,是SPE水中氚电解浓集仪的核心装置。

电解过程中随着样品被浓集,以及电解管路中微量杂质的溶入,样品电导率随之上升,电导率过高一方面会降低SPE电解槽寿命,另一方面会影响样品性状,最终影响氚的测量。GERC研制了一种简单高效的电解槽寿命维持装置,能够保证电解槽较长使用寿命及最终样品性状稳定,可有效提高浓集倍数;同时该装置与液面控制系统配合使用,起到液面稳定作用,进一步提升液面控制精度。

除上述几个关键部件的设计、研制,安全与自动控制也是设计原则之一。浓集仪已实现全自动控制,只需定期查看仪器状态,相比传统碱式电解,极大地提高了工作效率;同时实现对浓集仪整体监控,当关键安全参数超过设定临界值时,可自动停止整个设备工作,既保护仪器,也可避免实验事故的发生。

生。所研制的SPE水中氚电解浓集仪已取得发明专利(专利号:ZL2011102477420)^[12],结构示意图见图1。

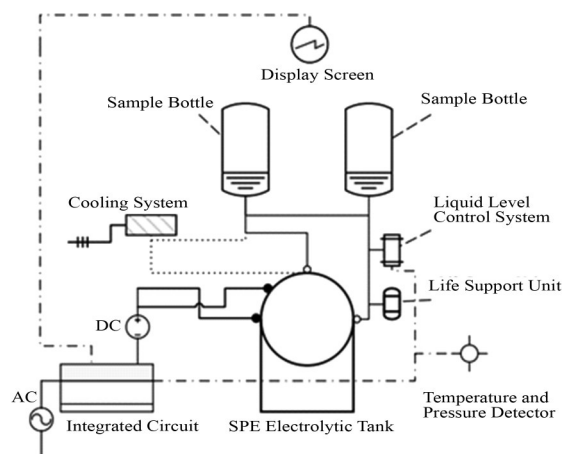


图1 新型SPE电解浓集仪结构示意图
Fig.1 Structural diagram of new SPE electrolytic enrichment instrument

2 性能实验

2.1 实验器材

6台原型SPE电解浓集仪;蒸馏装置,自制;1220 Quantulus 低本底液体闪烁谱仪,Ultima Gold LLT 闪烁液,20 mL 聚乙烯样品瓶,均为PerkinElmer公司生产;³H标准溶液,中国计量科学研究院提供,证书编号H3091005;无氚水,³H活度浓度低于0.1 Bq·L⁻¹;高锰酸钾,分析纯,广州化学试剂有限公司提供。

2.2 实验过程及结果计算

为测试新型SPE水中氚电解浓集仪的各项性能及仪器的稳定性,GERC从2011~2014年,对6台原型电解浓集仪进行了三年测试实验,测试参数包括电解时长、剩余体积、电解浓集倍数、氚回收率以及上述参数的稳定性,同一台和不同台浓集仪的测量结果重复性,直接测量与电解测量的比较等。

本文中如果没有特别说明,实验初始样品电解体积均为700 mL。样品中加入高锰酸钾经过蒸馏除杂,如果电导率大于5 μs·cm⁻¹,则蒸馏液需过阴阳离子交换树脂再次去除阴阳离子;除杂后的样品加入SPE水中氚电解浓集仪中,设定好电解参数后开始电解,电解至自动停止;取电解后的浓缩液8.00 mL置于20 mL样品瓶中,加入12.0 mL闪烁液,混匀,置于低本底液体闪烁谱仪内暗适应12 h后测量,每次测量500 min,循环两次,液体闪烁谱仪对³H的探测效率为28%。

为保护浓集仪,浓缩液被放出后,依然有部分样品留在电解槽内,该部分样品被称为死体积,电解完毕(或刻度)时,用无氚水将其洗出,最后保证电解槽为无氚水储存。刻度时洗涤液的获取方法:取500 mL无氚水,分三次加入浓集仪,每次电解5 min洗涤后放出收集。洗涤液的测量与普通样品一致。

水中氚活度浓度 C 按式(1)计算,电解浓集倍数 K 按式(2)计算,氚回收率 R_f 按式(3)计算,两个结果间的 $|En|$ 值按式(4)计算, $|En|$ 为归一化偏差。

$$C = \frac{N_c - N_b}{6 \times 10^{-2} \cdot E \cdot M \cdot K} \quad (1)$$

式中: N_c 为样品计数率,cpm; N_b 为本底计数率,cpm; 6×10^{-2} 为单位换算系数; E 为液闪谱仪对氚的计数效率,%; M 为测量用水量,mL; K 为电解浓集倍数,无量纲。

$$K = (N_f - N_b) / (N_i - N_b) \quad (2)$$

式中: N_f 为电解后标准氚水总计数率,s⁻¹; N_i 为电解前标准氚水总计数率,s⁻¹。

$$R_f = \frac{N_2 V_2 + N_3 V_3}{N_1 V_1} \times 100\% \quad (3)$$

式中: N_1 为电解前样品净计数率,s⁻¹; V_1 为电解前样品体积,mL; N_2 为电解后样品净计数率,s⁻¹; V_2 为电解后样品体积(不含死体积),mL; N_3 为洗涤液样品净计数率,s⁻¹; V_3 为洗涤液体积,mL。

$$|En| = \left| \frac{\text{测量结果A} - \text{测量结果B}}{\sqrt{U_A^2 + U_B^2}} \right| \quad (4)$$

式中: U_A 、 U_B 分别为测量结果A和测量结果B的扩展不确定度;当测量结果与参考值比较时,其中一个测量结果与不确定度分别为参考值与该参考值的扩展不确定度。

2.3 实验结果

2.3.1 电解浓集仪的稳定性

每一台SPE水中氚电解浓集仪的电解时长、剩余体积、电解浓集倍数以及氚回收率是不相同的,需要经过刻度确定,并应具备长期稳定性。

使用同一台浓集仪进行实验,测试了4个关键参数及其稳定性,其中电解浓集倍数和氚回收率在2012年1月、2012年11月以及2014年1月分别进行了8次和7次实验;电解时长表示电解700 mL样品至20 mL(不含死体积)左右所需时间。结果见表1,电解时长均值为51.9 h,电解速率为7.6 h / 100 mL;剩余体积均值为20.8 mL(不含死体积),与设计相符;电解浓集倍数均值为11.4;氚回收率均值为68.2%。所有结果相对标准偏差均小于2.2%。

使用同一台浓集仪进行实验,测试三种不同初始电解体积(500 mL、600 mL、700 mL)下电解浓集倍数,结果分别为8.05、9.61、11.22,三种体积下的单位浓集倍数均在1.60倍/100 mL左右。表2给出了

不同氚活度浓度下、不同浓集仪的电解浓集倍数实验结果,结果的最大相对标准偏差为3.1%,说明对于不同活度浓度样品,电解浓集倍数稳定性良好。

表1 新型SPE电解浓集仪关键参数的稳定性实验结果
Table 1 Stability experimental results of key parameters of new SPE electrolytic enrichment instrument

实验对象 Items	实验次数 Number	范围值 Range value	平均值 Average value	相对标准偏差 Relative standard deviation / %	备注 Remarks
电解时长 Electrolytic time / h	10	51.0~53.1	51.9	1.2	将700 mL样品浓缩至20 mL 700 mL sample is enriched to 20 mL
剩余体积 Remaining volume / mL	34	20.4~21.2	20.8	1.2	
电解浓集倍数 Enrichment multiple	8	11.2~11.7	11.4	2.2	2012年1月至2014年1月 From Jan. 2012 to Jan. 2014
氚回收率 Recovery rate of tritium / %	7	66.8~69.6	68.2	2.0	

表2 不同SPE电解浓集仪对不同活度浓度样品的电解浓集倍数
Table 2 Enrichment multiple at different activity concentrations for several SPE electrolytic enrichment instruments

仪器编号 Instrument ID	样品计数率 Sample count rate / s ⁻¹			平均值 Average value	相对标准偏差 Relative standard deviation / %
	3.70	5.05	25.01		
	电解浓集倍数 Enrichment multiple				
A	12.1	12.0	12.3	12.1	1.3
B	12.7	12.4	12.3	12.5	1.7
E	11.6	11.1	11.8	11.5	3.1
F	12.2	12.0	12.1	12.1	0.8

综合以上实验结果,所研制的新型SPE水中氚电解浓集仪整体稳定性较好。

2.3.2 电解浓集仪的重复性

使用同一台浓集仪以及相同的测量过程分别对同一个样品进行两次浓集分析,共进行了19组独立实验,结果见图2(a),测量结果的相对偏差范围值为0%~10%,|En|值为0~0.57,均小于1,说明同一台浓

集仪对样品的浓集重复性良好。

使用不同SPE电解浓集仪,相同的测量过程,对同一个样品进行两次浓集分析,共进行了29组独立实验,结果见图2(b),两次测量结果的相对偏差范围值为0%~9.7%,|En|值为0~0.79,均小于1。实验结果表明,不同电解浓集仪间对样品的浓集重复性良好。

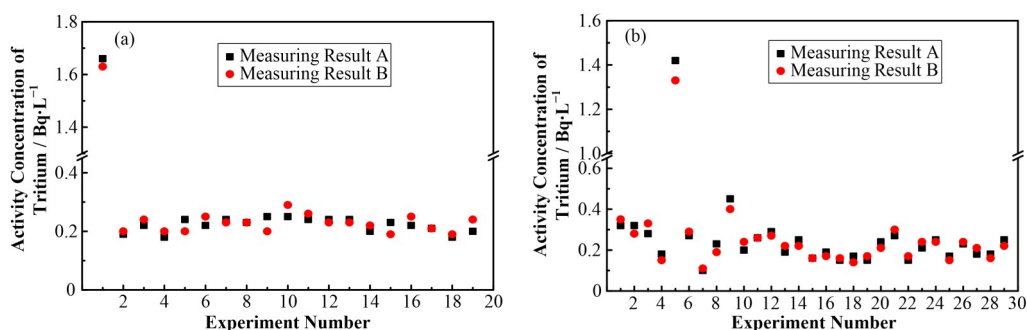


图2 相同SPE(a)和不同SPE(b)电解浓集仪对同一样品两次浓集分析测量结果
Fig.2 Analysis results of the electrolytic enrichment of same sample by same instrument (a) and different instruments (b)

2.3.3 直接测量与电解浓集后测量的比较

为测试样品经过浓集仪电解后是否对样品测量

产生影响,对同一个样品进行了直接测量与电解浓集后测量比较,结果见表3。除样品8外,其他样品

的结果相对偏差均小于 10%,所有结果的 $|En|$ 范围值为 0.05~0.74,均小于 1,说明样品经过 GERC 研制的浓集仪浓缩处理后,对样品测量的影响可以忽略。

表3 直接测量和电解测量结果比较
Table 3 Results of compared direct measurement with electrolytic enrichment measurement

样品编号 Sample ID	直接测量 Direct measurement / Bq·L ⁻¹	电解测量 Electrolytic enrichment measurement / Bq·L ⁻¹	相对偏差 Relative deviation / %
1	1.31±0.60	1.34±0.07	-1.1
2	2.49±0.68	2.27±0.08	4.6
3	4.22±0.66	4.08±0.10	1.7
4	1.58±0.57	1.66±0.09	-2.5
5	1.20±0.56	1.15±0.07	2.1
6	3.58±0.61	3.12±0.10	6.9
7	1.41±0.56	1.36±0.09	1.8
8	1.17±0.56	1.53±0.06	-13.3
9	1.34±0.56	1.39±0.08	-1.8

2.3.4 与其他实验室的比对

GERC 与核工业北京地质研究院分析测试研究中心(The China National Nuclear Corporation – Analytical Laboratory Beijing Research Institute of Uranium Geology, CNNC-ALBRIUG, 简称研究院)组织了水中氚分析测量比对。GERC 采用所研制的 SPE 电解浓集仪对水中氚进行浓集,而研究院采用

的是传统碱式电解浓集法,结果见表 4。无论是用那种浓集方法,两家实验室的测量结果与参考值的相对偏差在 6.3% 以内, $|En|$ 值均小于 1,说明两家实验室的测量结果对于参考值都是可接受的;两家实验室的测量结果相对偏差在 2.2% 以内, $|En|$ 值均小于 1,说明 SPE 电解浓集法与传统碱式电解法一致性较好。

表4 GERC 与研究院水中氚测量比对结果
Table 4 Comparison results of tritium in water samples for GERC and CNNC-ALBRIUG

样品编号 Sample ID	参考值 Reference value / Bq·L ⁻¹	GERC 测量值 GERC measured value / Bq·L ⁻¹	与参考值相对偏差 Relative deviation from reference value / %	研究院测量值 CNNC-ALBRIUG measured value / Bq·L ⁻¹	与参考值相对偏差 Relative deviation from reference value / %	两家实验室的相对偏差 Relative deviation / %
1#	1.26±0.06	1.34±0.07	6.3	1.36±0.12	7.9	0.7
2#	2.24±0.08	2.27±0.08	1.3	2.37±0.14	5.8	2.2
3#	4.20±0.14	4.08±0.10	-2.9	4.18±0.18	-0.5	1.2

3 SPE 水中氚电解浓集仪的典型性能指标

典型性能指标如下:电解电压为 5 V,电解电流为 40 A,工作温度 5~10 ℃,电解时长为 52 h(对 700 mL 样品),电解浓集倍数约为 11.5 倍(对 700 mL 样品),电解剩余体积约为 20 mL(不含死体积),氚回收率约为 68%,电解槽使用寿命大于 6 000 h,氚探测限为 0.09 Bq·L⁻¹(对 700 mL 样品)。

4 应用

GERC 于 2015 年 2 月将新型 SPE 水中氚电解浓集仪的生产与销售许可授予一家公司,2016 年 1 月

实现该浓集仪的批量商品化生产,已有十多家单位在使用。GERC 使用该 SPE 水中氚电解浓集仪完成了国内首个以省级行政区为对象的全面环境水中氚调查,共采集 405 个样品(包括地表水、水蒸气、雨水、地下水),通过本次调查,摸清了广东省不同环境水中氚的浓度水平及其随经纬度、季节的变化规律^[7];同时,在大亚湾核电基地周围开展全面水中氚调查,得出了大亚湾核电站周围环境水中氚的分布、变化规律,以及大亚湾核电基地对环境水中氚的影响程度^[13]。

5 结语

通过分析 SPE 电解过程中氚的影响因素确定设

计方案,特别是关键部件的设计与研制,最终研制出新型SPE水中氚电解浓集仪,已获得发明专利授权。通过大量实验对所研制浓集仪的性能进行测试,数据表明,该浓集仪各项性能出色,与传统碱式电解法相比,具有性能稳定、寿命长、安全性好、电解效率高、浓集倍数高、控制精确、电解速率快、操作维护简便、使用体验良好等特点。此外,所研制浓集仪在冷却系统和仪器体积等方面有进一步优化空间。

考虑到氚的特性及其使用领域,所研制的新型SPE水中氚电解浓集仪在环保、地质水文、海洋、卫生、核电等领域具有广泛的应用前景。

参考文献

- 陈晓秋, 杨端节, 焦志娟. 中国大陆核电厂放射性流出物释放所致的公众剂量[J]. 辐射防护通讯, 2010, **31**(2): 1-6. DOI: 10.3969/j.issn.1004-6356.2011.03.001.
CHEN Xiaoqiu, YANG Duanjie, JIAO Zhijuan. Doses to the public from radioactive effluents released from nuclear power plants on China mainland[J]. Radiation Protection Bulletin, 2010, **31**(2): 1-6. DOI: 10.3969/j.issn.1004-6356.2011.03.001.
- Harms P A, Visser A, Moran J E, *et al.* Distribution of tritium in precipitation and surface water in California[J]. Journal of Hydrology, 2016, **534**: 63-72. DOI: 10.1292/journal.elementa.000051.s007.
- Tadros C V, Hughes C E, Crawford J, *et al.* Tritium in Australian precipitation: a 50 year record[J]. Journal of Hydrology, 2014, **513**: 262 - 273. DOI: 10.1016/j.jhydrol.2014.03.031.
- 张琳, 王莹, 刘福亮. 近二十年我国大气降水氚浓度及其变化[J]. 南水北调与水利科技, 2008, **6**(6): 94-96. DOI: 10.13476/j.cnki.nsbdkq.2008.06.016.
ZHANG Lin, WANG Ying, LIU Fuliang. Changes of tritium concentration in precipitation of China in two decades[J]. South-to-North Water Transfers and Water Science & Technology, 2008, **6**(6): 94 - 96. DOI: 10.13476/j.cnki.nsbdkq.2008.06.016.
- 许家昂, 陈卫宁, 李全太, 等. 海阳核电厂周边海水中氚放射性水平[J]. 中国辐射卫生, 2013, **22**(6): 732-734. DOI: 10.13491/j.cnki.issn.1004-714x.2013.06.039.
XU Jiaang, CHEN Weining, LI Quantai, *et al.* Tritium level in sea water around HAIYANG Nuclear Plant[J]. China Journal Radiol Health, 2013, **22**(6): 732-734. DOI: 10.13491/j.cnki.issn.1004-714x.2013.06.039.
- 梁梅燕, 马永福, 倪士英, 等. 秦山核电基地外围环境氚水平分析[J]. 辐射防护, 2009, **29**(4): 255-260.
LIANG Meiyang, MA Yongfu, NI Shiyang, *et al.* Analysis of tritium level around Qinshan NPP Base[J]. Radiation Protection, 2009, **29**(4): 255-260.
- 王家玥, 林清, 周睿东, 等. 广东省环境水体中的氚活度浓度水平[J]. 辐射防护, 2017, **37**(4): 265-273.
WANG Jiayue, LIN Qing, ZHOU Ruidong, *et al.* Tritium activity concentration levels in environmental water in Guangdong province[J]. Radiation Protection, 2017, **37**(4): 265-273.
- Ogata Y, Sakuma Y, Ohtani N, *et al.* Tritium separation from heavy water by electrolysis with solid polymer electrolyte[J]. Journal of Radioanalytical & Nuclear Chemistry, 2003, **255**(3): 539-541. DOI: 10.13182/fst05-a897.
- Saito M. Enrichment reliability of solid polymer electrolysis for tritium water analysis[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2008, **275**(2): 407-410. DOI: 10.1007/s10967-007-6894-8.
- 王华, 殷建军, 杨会, 等. 聚合膜电解浓集法测量低水平氚环境水样的氚比活度[J]. 岩矿测试, 2011, **30**(6): 745-750. DOI: 10.15898/j.cnki.11-2131/td.2011.06.016.
WANG Hua, YIN Jianjun, YANG Hui, *et al.* Application of the solid polymer electrolysis enrichment method for low level tritium in environmental water and the calculation of tritium specific activity[J]. Rock and Mineral Analysis, 2011, **30**(6): 745-750. DOI: 10.15898/j.cnki.11-2131/td.2011.06.016.
- 谢波, 胡睿, 刘云怒. 固体聚合物电解池分离氚的理论分析[J]. 科技通报, 2009, **25**(5): 542-545. DOI: 10.13774/j.cnki.kjtb.2009.05.016.
XIE Bo, HU Rui, LIU Yunnu. Theoretical analysis of tritium separation by solid polymer electrolyte[J]. Bulletin of Science and Technology, 2009, **25**(5): 542-545. DOI: 10.13774/j.cnki.kjtb.2009.05.016.
- 周睿东, 杨旭富, 林清, 等. 水中氚电解浓集装置[P]. 中国专利: 2011102477420, 2012.
ZHOU Ruidong, YANG Xufu, LIN Qing, *et al.* Electrolytic enrichment instrument for tritium in water samples[P]. China: 2011102477420, 2012.
- 邓飞, 林清, 王家玥, 等. 大亚湾核电基地氚的排放及其环境影响[J]. 环境化学, 2016, **35**(5): 956-963. DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2016.05.2015112406.
DENG Fei, LIN Qing, WANG Jiayue, *et al.* Tritium discharged by Daya Bay nuclear power plant and its environmental impact[J]. Environmental Chemistry, 2016, **35**(5): 956-963. DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2016.05.2015112406.