2021 年 第 21 卷 第 31 期
2021, 21(31): 13361-05

科 学 技 术 与 工 程
Science Technology and Engineering

ISSN 1671—1815
CN 11—4688/T

引用格式:陈海英, 郭瑞萍, 王韶伟, 等. 严重事故安全壳废液中核素活度计算[J]. 科学技术与工程, 2021, 21(31): 13361-13365.
Chen Haiying, Guo Ruiping, Wang Shaowei, et al. Calculation on nuclide radioactivity of liquid waste in containment under severe accident [J]. Science Technology and Engineering, 2021, 21(31): 13361-13365.

原子能技术

严重事故安全壳废液中核素活度计算

陈海英[1,2], 郭瑞萍[1], 王韶伟[1*], 潘 楠[3], 田欣鹭[1,2], 张春明[1]
(1. 生态环境部核与辐射安全中心, 北京 102401; 2. 国家环境保护核与辐射安全审评模拟分析与验证重点实验室, 北京 102488;
3. 上海核工程研究设计院有限公司, 上海 200233)

摘 要 福岛事故后,放射性废液的处理受到了高度关注。严重事故后安全壳废液中的核素活度分析是废液处理的前提。根据严重事故后安全壳废液中放射性核素的来源及消减机理,建立了 AP1000 严重事故安全壳废液中核素活度计算模型,研究安全壳废液中放射性核素活度的变化。结果表明:在堆芯核素向安全壳释放阶段,废液中各组核素活度逐渐增大,随后除镧组核素外,其他各组核素活度随时间逐渐减小,碘总活度降低最快,铯组总活度降低最慢;在事故初期,碘是废液中的主要核素,其次是铯;铯组核素占总活度的份额先减小后增大,而其他组核素占总活度的份额先增大后减小。^{134}Cs、^{137}Cs、^{89}Sr、^{90}Sr、^{127}Te^{m}、^{103}Ru、^{106}Ru、^{144}Ce、^{241}Pu、^{90}Y、^{91}Y、^{95}Nb、^{95}Zr 衰减很慢,是放射性废液的重要组成成分。

关键词 严重事故; 安全壳; 废液; 核素; 放射性活度
中图法分类号 TL732; **文献标志码** A

Calculation on Nuclide Radioactivity of Liquid Waste in Containment under Severe Accident

CHEN Hai-ying[1,2], GUO Rui-ping[1], WANG Shao-wei[1*], PAN Nan[3], TIAN Xin-lu[1,2], ZHANG Chun-ming[1]
(1. Nuclear and Radiation Safety Center, Ministry of Ecology and Environment, Beijing 102401, China;
2. State Environmental Protection Key Laboratory of Nuclear and Radiation Safety Regulatory Simulation and Validation, Beijing 102488, China;
3. Shanghai Nuclear Engineering Research & Design Institute Co., Ltd., Shanghai 200233, China)

[**Abstract**] After Fukushima accident, the treatment of radioactive liquid waste has been highly concerned. The analysis of nuclide activity in containment liquid waste after severe accident is the premise of the liquid waste treatment. The source and reduction mechanism of nuclides in containment liquid waste after severe accident were analyzed. The calculation model for the nuclide radioactivity was established. The parameters of AP1000 were used for calculation on the radioactivity in containment liquid waste, and the radioactivity change of main nuclides in the containment liquid waste was studied. The results show that during the release of nuclides from core into containment, the radioactivity of each group nuclides in the containment liquid waste gradually increase, and then with the exception of the lanthanum group nuclides, the radioactivity of other group nuclides gradually decrease with time. The total iodine radioactivity decreases the fastest, and the total cesium radioactivity decreases the slowest. In the early stage of the severe accident, iodine is the main nuclide in the liquid waste, followed by the cesium group nuclides. The proportion of cesium activity in the total activity decreases first and then increases, while that of other groups increase first and then decrease. It is concluded that ^{134}Cs, ^{137}Cs, ^{89}Sr, ^{90}Sr, ^{127}Te^{m}, ^{103}Ru, ^{106}Ru, ^{144}Ce, ^{241}Pu, ^{90}Y, ^{91}Y, ^{95}Nb and ^{95}Zr decay very slowly, which are the important components of the radioactive liquid waste.

[**Keywords**] severe accident; containment; liquid waste; nuclide; radioactivity

2011 年 3 月 11 日日本发生里氏 9.0 级地震并引发海啸,导致福岛第一核电站发生堆芯熔毁以及大量放射性物质释放的核事故。日本原子能安全保安院根据国际核事件分级表将福岛核事故定为最高级 7 级。在福岛事故中,堆芯熔毁,大量裂变产物释放出来,进入冷却水中,产生了大量的放射性废水,该废水具有废水量大、放射性活度浓度高、放射性废水成分复杂等特点,且由于放射性废水量不断累积,超出存储限制和已有的放射性废水处理能力,导致最终直接向海水排放[1]。福岛核事故直接

收稿日期: 2020-11-12; **修订日期**: 2021-08-11
基金项目: 国家科技重大专项(2019ZX06005001)
第一作者: 陈海英(1984—),女,汉族,山东潍坊人,硕士,高级工程师。研究方向:核电厂辐射防护。E-mail:chy1025@126.com。
* **通信作者**: 王韶伟(1983—),男,汉族,河南三门峡人,博士,正高级工程师。研究方向:核与辐射安全。E-mail:wangshaowei@chinansc.cn。

向海洋排放的放射性^{131}I 和^{137}Cs 分别约为 1.0×10^{17} Bq 和 1.2×10^{15} Bq[2]。日本福岛核事故后,核设施的安全管理及核废物的处理处置提出了更高的要求,应研究核电厂严重事故工况下液态流出物排放管理要求相关的政策法规[3-6]。

在严重事故工况下,放射性废液来源于安全壳厂房内的废水和事故缓解过程中产生的废水[7-8]。安全壳作为反应堆厂房的外层结构,在严重事故情况下是放射性废液的最佳包容场所,因此安全壳内的高放射性废液成为严重事故后主要的处理对象。对于核电厂堆芯损伤所产生的高放射性事故废液,其最主要的放射性来源为裂变产物,尤其是 Cs。事故后高放废液中短寿命核素随时间推移而不断衰减,而长寿命核素由于衰减慢,是放射性废液中的重点关注核素。

严重事故后安全壳废液中的核素活度分析是放射性废液处理的前提。以 AP1000 为例,根据严重事故后安全壳废液中核素的产生和消减机理,建立废液中核素活度计算模型,开展严重事故下安全壳废液中典型核素活度的计算分析,为严重事故废液的滞留和包容能力评估以及事故后废液处理技术研究提供基础源项数据。

1 计算方法和模型

1.2 计算假设

严重事故工况下安全壳废液中核素活度计算的主要假设如下[2,9]。

(1)严重事故后全堆芯熔化,反应堆压力容器和安全壳保持完整性,并将废液滞留在安全壳内。

(2)根据事故分析结果,考虑堆芯间隙释放和早期压力容器内释放,保守假设堆芯释放到安全壳内的核素除惰性气体外全部沉降在安全壳内,且约 10% 的份额溶解于水中,放射性核素在水中均匀分布。

(3)考虑衰变链中母核衰变对子核的产生量。

1.2 计算模型

事故后堆芯核素向安全壳释放期间,安全壳中母核计算模型为

$$\frac{\mathrm{d}A_i}{\mathrm{d}t} = R_{i,n} - \lambda_i A_i \tag{1}$$

$$R_{i,n} = \frac{A_{i0}\mathrm{e}^{-\lambda_i t}F_{i,n}}{\Delta t} \tag{2}$$

子核计算模型为

$$\frac{\mathrm{d}A_j}{\mathrm{d}t} = R_{j,n} + \lambda_j\sum_{i=1}^{j-1}\varepsilon_{ij}A_i - \lambda_j A_j \tag{3}$$

$$R_{j,n} = \frac{A_{j0}\mathrm{e}^{-\lambda_j t}F_{j,n}}{\Delta t} \tag{4}$$

式中:A_i、A_j为核素 i、j 在安全壳内的活度,Bq;$R_{i,n}$、$R_{j,n}$为核素 i、j 在 n 时间段内从堆芯向安全壳的释放率,Bq/h;λ_i、λ_j为核素 i、j 的衰变常数,h^{-1};ε_{ij}为核素 i 衰变为核素 j 的分支比;A_{i0}、A_{j0}为核素 i、j 的初始放射性活度,Bq;$F_{i,n}$、$F_{j,n}$为核素 i、j 在 n 时间段内从堆芯向安全壳的释放份额;Δt 为 n 时间段的持续时间,h。

在不同的释放阶段,核素的活度和释放份额不同,因此各个释放阶段分别计算释放率。根据核素溶解份额得到废液中的核素活度,在堆芯核素停止向安全壳释放后,安全壳废液中放射性核素的产生项仅为衰变链中母核衰变,消减项为核素自身衰变。

2 计算参数

通过燃耗程序计算得到反应堆平衡循环寿期末堆芯内放射性核素的活度,并考虑了功率变化、燃料管理方案等的不确定性因子,作为安全壳废液源项计算中核素的初始放射性活度。放射性核素衰变常数如表 1 所示[10]。根据核素物理化学特性,将严重事故中进入到废液的放射性核素分成 7 组,严重事故后堆芯内各组核素向安全壳的释放份额及释放时间参考 NUREG-1465[11]。

表 1 放射性核素活度和衰变常数[10]

Table 1 The activity and decay constant of the radioactive nuclide[10]

核素	活度/Bq	衰变常数/h^{-1}	核素	活度/Bq	衰变常数/h^{-1}
^{130}I	6.92×10^{16}	5.61×10^{-2}	^{93}Y	5.25×10^{18}	6.86×10^{-2}
^{131}I	3.51×10^{18}	3.59×10^{-3}	^{95}Nb	6.10×10^{18}	8.22×10^{-4}
^{132}I	5.11×10^{18}	3.01×10^{-1}	^{95}Zr	6.03×10^{18}	4.51×10^{-4}
^{133}I	7.21×10^{18}	3.33×10^{-2}	^{97}Zr	5.99×10^{18}	4.10×10^{-2}
^{134}I	8.10×10^{18}	7.91×10^{-1}	^{140}La	6.55×10^{18}	1.72×10^{-2}
^{135}I	6.84×10^{18}	1.05×10^{-1}	^{142}La	5.62×10^{18}	4.50×10^{-1}
^{134}Cs	6.10×10^{17}	3.84×10^{-5}	^{143}Pr	5.33×10^{18}	2.13×10^{-3}
^{136}Cs	1.43×10^{17}	2.20×10^{-3}	^{147}Nd	2.26×10^{18}	2.63×10^{-3}
^{137}Cs	4.03×10^{17}	2.64×10^{-6}	^{241}Am	3.85×10^{14}	1.83×10^{-7}
^{138}Cs	6.73×10^{18}	1.29	^{242}Cm	1.04×10^{17}	1.77×10^{-4}
^{86}Rb	6.66×10^{15}	1.55×10^{-3}	^{244}Cm	8.95×10^{15}	4.37×10^{-6}
^{127}Te^{m}	5.07×10^{16}	2.65×10^{-4}	^{89}Sr	3.51×10^{18}	5.72×10^{-4}
^{129}Te^{m}	1.75×10^{17}	8.60×10^{-4}	^{90}Sr	3.09×10^{17}	2.72×10^{-6}
^{131}Te^{m}	6.95×10^{17}	2.31×10^{-2}	^{91}Sr	4.33×10^{18}	7.30×10^{-2}
^{132}Te	4.99×10^{18}	8.86×10^{-3}	^{92}Sr	4.62×10^{18}	2.56×10^{-1}
^{127}Sb	3.22×10^{17}	7.50×10^{-3}	^{139}Ba	6.39×10^{18}	5.00×10^{-1}
^{129}Sb	9.88×10^{17}	1.58×10^{-1}	^{140}Ba	6.22×10^{18}	2.27×10^{-3}
^{103}Ru	5.33×10^{18}	7.35×10^{-4}	^{141}Ce	5.88×10^{18}	8.89×10^{-4}
^{105}Ru	3.67×10^{18}	1.56×10^{-1}	^{143}Ce	5.48×10^{18}	2.10×10^{-2}
^{106}Ru	1.68×10^{18}	7.84×10^{-5}	^{144}Ce	4.51×10^{18}	1.02×10^{-4}
^{105}Rh	3.41×10^{18}	1.96×10^{-2}	^{238}Pu	8.21×10^{15}	9.02×10^{-7}
^{99}Mo	6.55×10^{18}	1.05×10^{-2}	^{239}Pu	9.31×10^{14}	3.29×10^{-9}
^{99}Tc^{m}	5.77×10^{18}	1.15×10^{-1}	^{240}Pu	1.47×10^{15}	1.21×10^{-8}
^{90}Y	3.23×10^{17}	1.08×10^{-2}	^{241}Pu	3.74×10^{17}	5.50×10^{-6}
^{91}Y	4.55×10^{18}	4.94×10^{-4}	^{239}Np	7.36×10^{19}	1.23×10^{-2}
^{92}Y	4.66×10^{18}	1.96×10^{-1}			

3　计算结果分析

3.1　各组核素总活度分析

安全壳废液中各组放射性核素的物理化学性质不同,以及堆芯积存量的差别,导致事故后各组核素的释放率和释放量不同。图 1 所示为事故后不同时间废液中各组核素的活度变化。事故发生后,堆芯内的核素先后经历了包壳释放阶段和压力容器内早期释放阶段,随着核素进入安全壳后不断的沉降及溶于水中,废液中核素的活度逐渐增大,压力容器内早期释放结束时,安全壳废液中核素活度碘 > 铯组 > 钡和锶组 > 碲组 > 铷组 > 铈组 > 镧组。随后堆芯内的核素停止向安全壳释放,废液中除镧组外的其他组核素总活度开始降低,各组核素活度降低速率有所不同,碘、碲组核素活度降低较快,尤其是碘,受堆芯积存量影响,碘的初始活度最大,但整体上因半衰期较短,活度降低最快。事故一年后废液中各组核素活度铯组 > 钡和锶组 > 镧组 > 铷组 > 铈组 > 碲组 > 碘。铯组核素活度降低缓慢,事故一年后铯组核素总活度仍保持在 10^{16} Bq 的水平。受母核衰变对其子核源项的贡献和自身衰减速率的影响,镧组核素与其他组核素随时间的变化趋势不同,在堆芯停止向安全壳释放后,核素总活度继续增大后再减小。

图 2 所示为事故后不同时间废液中各组核素活度占总活度的份额。在事故初期,碘是废液中的主要核素,占总活度的 80% 以上,其次是铯组核素,铯组核素占总活度的份额先减小后增大,事故后一年铯组核素活度份额高达 93.91%,钡和锶组、镧组核素份额分别为 2.45%、2.31%。

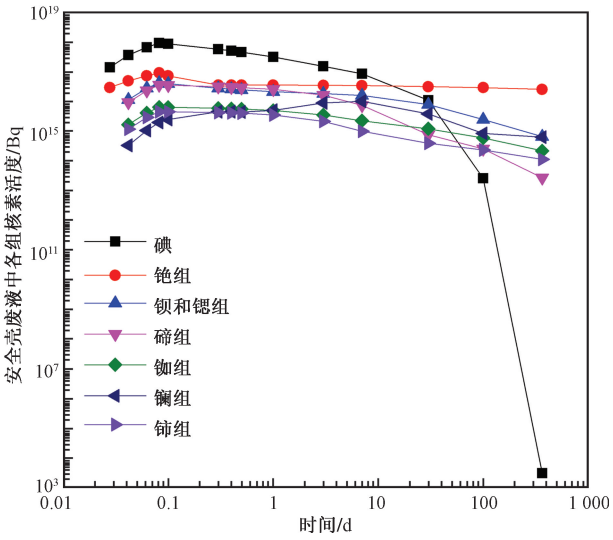

图 1　安全壳废液中各组放射性活度的变化

Fig. 1　The radioactivity change of each group in containment liquid waste

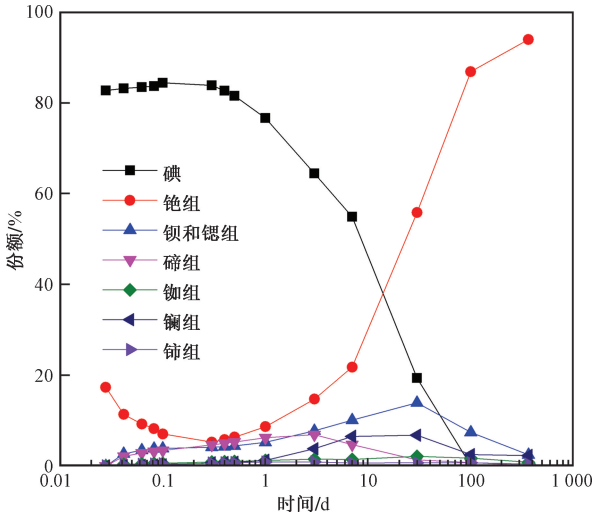

图 2　废液中各组核素活度占总活度的份额

Fig. 2　The percentage of each group activity in liquid waste

3.2　典型核素活度随时间的变化

图 3 所示为严重事故后安全壳废液中各核素放射性活度的变化情况。图 3(a)中,碘等卤素堆芯初始放射性活度高,释放量大,挥发性强,形态复杂。废液中核素碘的衰减速度大致为 $^{134}I > ^{135}I > ^{130}I > ^{133}I > ^{132}I > ^{131}I$,这是衰变常数和衰变链共同导致的,例如,$^{132}I$ 虽半衰期短,衰变快,但母核 ^{132}Te 衰变产生了一部分 ^{132}I,减缓了其活度降低的速度。事故 100 d后,^{131}I 活度仍保持在 10^{13} Bq 水平,事故一年后,^{131}I 活度降低到 3.1×10^{3} Bq,其余碘核素衰减殆尽。因此,对于卤素,^{131}I 是放射性废液中重点关注的核素。

对于碱金属,如图 3(b)所示,^{138}Cs 初始活度最高,然而其半衰期很短($T_{1/2}$ = 32.2 min),事故后 3 d 废液中的 ^{138}Cs 就衰减消失。^{134}Cs 和 ^{137}Cs 半衰期长,分别为 2.062 年和 30.17 年,在安全壳内衰减很慢,事故一年后废液中 ^{134}Cs、^{137}Cs 的放射性活度为 1.31×10^{16} Bq、1.18×10^{16} Bq,分别占碱金属核素的 52.5%、47.5%。^{136}Cs、^{86}Rb 衰减一年后在碱金属中所占份额微乎其微。因此,碱金属核素中 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs是放射性废液的重点处理核素。

图 3(c)中,钡和锶组核素从压力容器早期释放开始进入安全壳,释放份额较小。压力容器早期释放结束时,核素活度达到最高值,之后随时间不断减小。事故 7 d 后,安全壳废液中的 ^{139}Ba、^{92}Sr 基本衰减消失,事故一个月后 ^{91}Sr 衰减消失。相比之下,^{89}Sr、^{90}Sr、^{140}Ba 衰减很慢,尤其是 ^{90}Sr,半衰期为 28.6 年,从压力容器早期释放结束至事故一年后,其活度从 6.18×10^{14} Bq 降低至 6.03×10^{14} Bq,只减小了 2.4%,事故一年后 ^{89}Sr 活度降低至 4.68×10^{13} Bq。对于废液处理来讲,仅靠核素自身的衰减

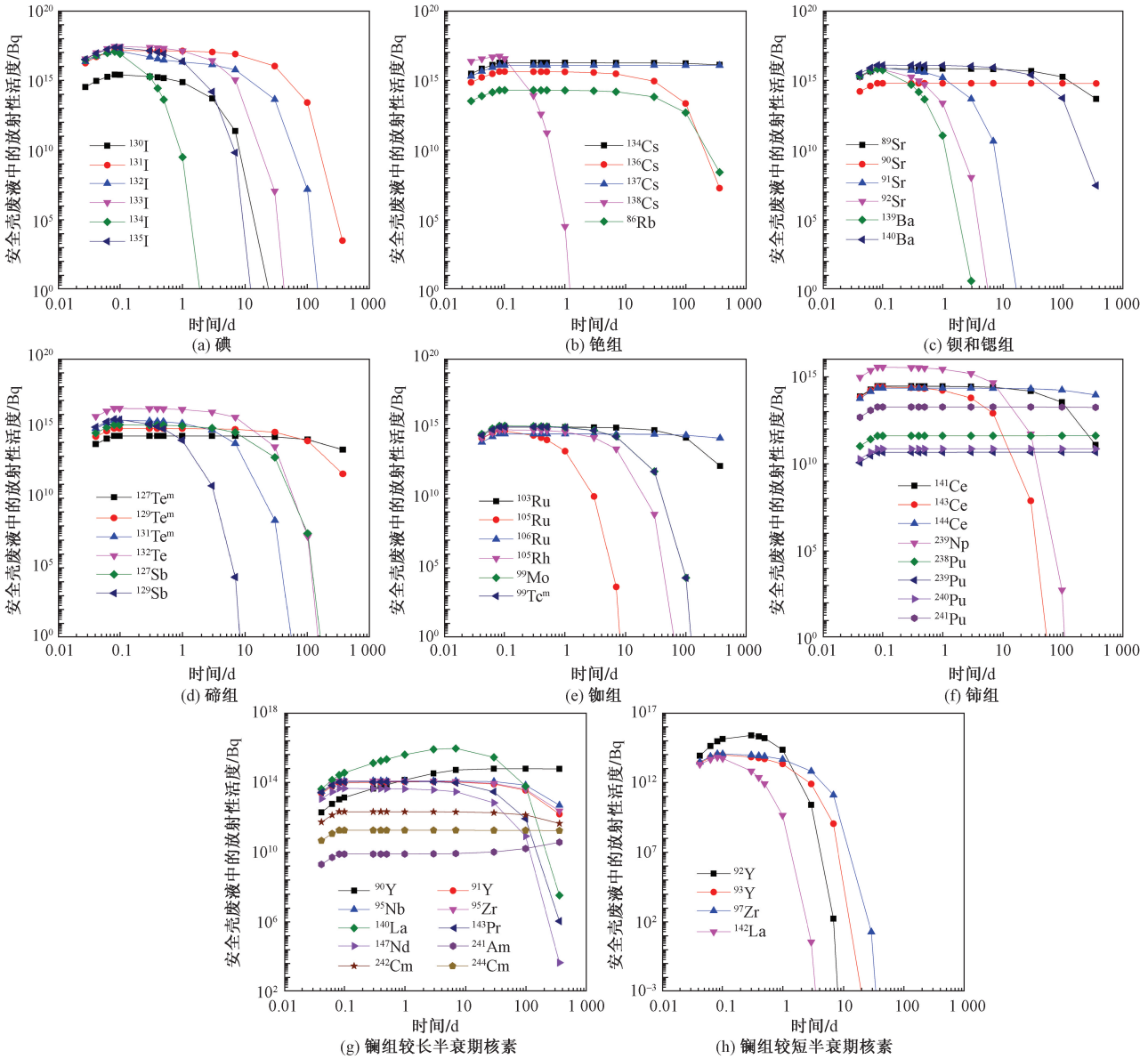

图 3 安全壳废液中核素放射性活度随时间的变化

Fig. 3 The radioactivity change of nuclide in containment liquid waste

是无法去除^{89}Sr、^{90}Sr 的。因此,^{89}Sr 和^{90}Sr 是放射性废液的重要组成成分。

碲组核素挥发性很强,然而在压水堆中它们易与锆包壳发生化学反应,生成难挥发的蹄化锆等化合物[7]。该组核素从压力容器早期释放阶段开始向安全壳释放,如图 3(d)所示,^{127}Te^{m}、^{129}Te^{m}半衰期长,且母核^{127}Sb、^{129}Sb 的衰变贡献,导致其活度降低缓慢,其余核素衰减速度快。事故一年后,废液中^{127}Te^{m}的放射性活度为 2.59×10^{13} Bq,占该组核素总活度的 98.21%。

安全壳废液中的稀有金属核素^{103}Ru 和^{106}Ru 活度降低缓慢,如图 3(e)。事故一年后,废液中^{103}Ru、^{106}Ru 的放射性活度分别为 2.13×10^{12} Bq、2.11×10^{14} Bq,其他核素衰减消失。

事故后铈组核素从堆芯到安全壳的释放量小,废液中^{141}Ce、^{144}Ce、^{238}Pu、^{239}Pu、^{240}Pu、^{241}Pu 放射性活度随时间变化很小,如图 3(f)。事故一年后^{143}Ce、^{239}Np 衰减消失,而^{144}Ce 和^{241}Pu 活度高达 10^{13} Bq,占该组总活度的 83.32% 和 16.09%。

图 3(g)和图 3(h)显示:镧组核素中^{92}Y、^{93}Y、^{97}Zr、^{142}La 衰变快,事故后约 30 d 可从废液中去除,^{147}Nd、^{143}Pr、^{140}La 经过一年的衰变后活度也降至较低,而^{90}Y、^{91}Y、^{95}Nb、^{95}Zr、^{241}Am、^{242}Cm、^{244}Cm 放射性活度随时间变化很小,活度均高于 10^{10} Bq,尤其是^{90}Y,事故一年后放射性活度为 6.03×10^{14} Bq,占该组核素总活度的 98.45%。受母核衰变的影响,堆芯停止向安全壳释放后,部分核素在废液中的活度继续升高。

3　结论

根据严重事故情况下安全壳废液中放射性核素的来源,以及核素衰减过程,建立了废液放射性源项计算模型,分析了事故后安全壳废液中各组核素活度的变化,主要得出以下结论。

(1)在包壳释放和压力容器内早期释放阶段,安全壳废液中核素的活度逐渐增大,随后除镧组核素,其他各组核素活度随时间逐渐减小,碘总活度降低最快,而铯组总活度降低最慢。受母核衰变及自身衰减速率的影响,在堆芯停止向安全壳释放后镧组核素总活度呈现先增大后减小的趋势。

(2)在事故初期,碘是废液中的主要核素,占总活度的80%以上,其次是铯组核素。铯组核素占总活度的份额先减小后增大,而其他组核素占总活度的份额先增大后减小,事故一年后铯组核素占总活度的93.91%,钡和锶组、镧组核素份额分别为2.45%、2.31%。

(3)对于卤素,^{131}I活度降低速度最慢,是放射性废液重点关注的核素,但经过较长时间的贮存衰减是可以去除的;而其他组核素中^{134}Cs、^{137}Cs、^{89}Sr、^{90}Sr、$^{127}Te^{m}$、^{103}Ru、^{106}Ru、^{144}Ce、^{241}Pu、^{90}Y、^{91}Y、^{95}Nb、^{95}Zr衰减很慢,事故一年后放射性活度依然保持在10^{12}~10^{16}Bq水平,较长时间内仅靠核素自身的衰减无法去除,是放射性废液的重要组成成分。

参　考　文　献

[1] 李福志, 赵　璇, 张　猛. 核电站严重事故情况下的放射性废液处理[C]//中国核学会2015年学术年会论文集. 北京: 中国核学会, 2015: 1-7.
Li Fuzhi, Zhao Xuan, Zhang Meng. Treatment of radioactive liquids in the nuclear accident[C]//2015 Annual Academic Meeting of China Nuclear Society. Beijing: Chinese Nuclear Society, 2015: 1-7.

[2] 徐春燕, 刘新华, 柴国旱, 等. 核电厂严重事故工况下放射性废液滞留包容原则和措施[J]. 核安全, 2015, 14(4): 12-16.
Xu Chunyan, Liu Xinhua, Chai Guohan, et al. A preliminary study on the principles and measurements of retention and containment of radioactive liquid waste under severe accident conditions of NPPS[J]. Nuclear Safety, 2015, 14(4): 12-16.

[3] 周　伟. 日本福岛核事故及对内陆核电建设的启示[J]. 电子质量, 2017, 12(369): 103-107.
Zhou Wei. Japan's Fukushima nuclear accident and its enlightenment to the construction of inland nuclear power[J]. Electronics Quality, 2017, 12(369): 103-107.

[4] 余少青, 张春明, 陈晓秋, 等. 日本福岛核电站事故后高浓度放射性废水处理系统介绍及其应用启示[J]. 辐射防护, 2013, 33(5): 294-299.
Yu Shaoqing, Zhang Chunming, Chen Xiaoqiu, et al. Post-accident high-level radiation contaminated water treatment system in Fukushima dai-ichi nuclear power plant[J]. Radiation Protection, 2013, 33(5): 294-299.

[5] 贾紫永, 李　斗, 徐杨华, 等. 核电站事故废液MVR处理的模拟试验[J]. 净水技术, 2018, 37(1): 106-111.
Jia Ziyong, Li Dou, Xu Yanghua, et al. Simulated experiment of MVR treatment for accident liquid waste in nuclear power plant[J]. Water Purification Technology, 2018, 37(1): 106-111.

[6] 李小龙, 徐春艳, 刘新华, 等. 福岛事故废液滞留和循环处理进程分析[J]. 核科学与工程, 2016, 36(5): 701-798.
Li Xiaolong, Xu Chunyan, Liu Xinhua, et al. The process analysis of retention and cycling treatment of liquid waste from fukushima nuclear disaster[J]. Nuclear Science and Engineering, 2016, 36(5): 701-798.

[7] 漏　汇, 钱　磊, 倪依雨. AP1000核电厂严重事故废液处理应急措施研究[C]//中国核学会2015年学术年会论文集. 北京: 中国核学会, 2015: 240-246.
Lou Hui, Qian Lei, Ni Yiyu. The research on the emergency measures about severe accident of AP1000 waste liquid treatment[C]//2015 annual academic meeting of China Nuclear Society. Beijing: Chinese Nuclear Society, 2015: 240-246.

[8] 高圣钦. 严重事故下裂变产物释放和迁移研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工程大学, 2015.
Gao Shengqin. Research on fission product release and transport under severe accident conditions[D]. Haerbin: Harbin Engineering University, 2015.

[9] 李　亢, 陈志宏. 基于严重事故剂量后果的堆芯重要核素选择[J]. 原子能科学技术, 2012, 46(S): 464-468.
Li Kang, Chen Zhihong. Significant isotopes selection of core inventory based on severe accident radiological dose consequence[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2012, 46(S): 464-468.

[10] Nuclear Regulatory Commission. Accident source term for light-water nuclear power plants: NUREG-1465[R]. Rockville: NRC, 1995.

[11] 孙树正. 放射性同位素手册[M]. 北京: 原子能出版传媒有限公司, 2011: 61-95.
Sun Shunzheng. Radioisotope handbook[M]. Beijing: Atomic Energy Publishing Media Limited, 2011: 61-95.