

负热电离质谱法测定 核燃料裂变产物中钼同位素比值

梁帮宏, 张劲松, 李 兵, 杨 彬, 李己才, 孙 鹏, 刘 志, 陈云明

(中国核动力研究设计院, 四川 成都 610005)

摘要: 钼同位素⁹⁵Mo、⁹⁷Mo、⁹⁸Mo、¹⁰⁰Mo是核燃料的重要裂变产物, 为了测定辐照后核燃料元件裂变产物中钼同位素比值, 以SrCl₂为发射剂, 采用负热电离质谱法测定MoO₃⁻。在单铼带模式下, 钼涂样量为0.1 μg时可获得约2 h稳定离子流, 同位素比值测定相对标准偏差(RSD)小于0.5%。实验使用5个法拉第杯一次跳峰完成7个钼同位素测定, 分别采集跳峰前后的 m/z 143信号, 并选作同位素比值分母, 避免信号随时间波动引入误差。通过评价天然钼本底水平, 表明质谱测定过程中铼带和试剂本底的干扰可忽略; 通过求解六元一次方程组, 可扣除MoO₃⁻基团中氧同位素干扰; 通过测定锆、钨、钼混合样品, 表明该方法可减小钼、钨同量异位素干扰。实验对天然钼及裂变产物钼同位素比值进行了测定, 通过数据修正扣除燃料元件中天然钼干扰, 可获得燃料元件裂变产物中钼同位素比值。

关键词: 负热电离质谱法(NTIMS); 裂变产物; 钼; 同位素比值

中图分类号: O657.63

文献标志码: A

文章编号: 1004-2997(2016)01-0134-06

doi: 10.7538/zpxb.youxian.2016.0003

Determination of Molybdenum Isotope Ratios in Fission Products of Nuclear Fuel by Negative Thermal Ionization Mass Spectrometry

LIANG Bang-hong, ZHANG Jin-song, LI Bing, YANG Bin,

LI Yi-cai, SUN Peng, LIU Zhi, CHEN Yun-ming

(Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610005, China)

Abstract: Molybdenum isotopes of ⁹⁵Mo, ⁹⁷Mo, ⁹⁸Mo and ¹⁰⁰Mo are the important fission products in nuclear fuel. In order to determine the molybdenum isotope ratios of irradiated nuclear fuel element, MoO₃⁻ was detected by negative thermal ionization mass spectrometry (NTIMS) using SrCl₂ as an emitter. As a result, 0.1 μg Mo sample loaded onto single rhenium filament can obtain stable ion beam for about 2 h, and relative standard deviation (RSD) of molybdenum isotope ratio determination was less than 0.5%. 7 molybdenum isotopes were measured using 5 Faraday cups with 1 peak jumping. The m/z 143 signal was collected before and after the peak jumping, respectively,

收稿日期: 2015-05-30; 修回日期: 2015-08-03

作者简介: 梁帮宏(1983—), 男(羌族), 四川北川人, 助理研究员, 从事核燃料元件辐照后放化及质谱分析研究。

E-mail: wdlbh@163.com

网络出版时间: 2016-01-18; 网络出版地址: <http://www.cnki.net/kcms/detail/11.2979.TH.20160118.1615.006.html>

and selected as the denominator of isotope ratio, which avoided the signal fluctuation error. Background level of natural molybdenum was evaluated, which indicated that background of rhenium filaments and reagents can be ignored in the process of mass spectrometry determination. Oxygen isotope interference in MoO_3^- ions was deducted by means of solving matrix equation group. The determination results of ruthenium, molybdenum and zirconium mixed samples show that the method can reduce the isobaric interferences of zirconium and ruthenium. The natural molybdenum interference in spent fuel element was deducted by data correction, and the molybdenum isotope ratios of fission product were obtained.

Key words: negative thermal ionization mass spectrometry (NTIMS); fission products; molybdenum; isotope ratios

钼位于 ^{235}U 热中子裂变产额曲线第一峰值附近, ^{95}Mo 、 ^{97}Mo 、 ^{98}Mo 、 ^{99}Mo 、 ^{100}Mo 是 ^{235}U 的重要裂变产物,除 ^{99}Mo 半衰期约为66 h外,其余同位素均存在于辐照后的核燃料中。因此,裂变产物中钼同位素测定对燃料燃耗分析、裂变产物研究等具有重要意义^[1-2]。

近年来,有采用多接收电感耦合等离子体质谱法测定钼同位素的报道^[3-8],但一般来说,通常采用热电离质谱法(包括正热电离质谱法(PTIMS)和负热电离质谱法(NTIMS))测定 Mo^+ 和 MoO_3^- 。与正热电离质谱法相比,负热电离质谱法的离子流信号强度和稳定性更佳,适合微量样品的测定。为满足辐射防护最优化原则,应尽量减少放射性样品的操作量,由于裂变产物中钼的含量低,因此负热电离质谱法更适用于裂变产物中钼的测定。

由于钼的电离电位较高(7.1 eV),常选用发射剂提高其电离效率。正热电离质谱法的发射剂有抗坏血酸、抗坏血酸+硅胶、硼酸+硝酸、硼酸+硅胶^[9-13];负热电离质谱法的发射剂一般为硝酸钙^[14-16]。本研究尝试以氯化铯为发射剂,通过研究离子流变化趋势,优化测定带电流和测定时间,建立负热电离质谱测定钼同位素的方法,并测定辐照后核燃料样品裂变产物中钼同位素比值。

1 实验部分

1.1 主要仪器

MAT 262 热电离质谱仪(质量分辨率大于500,丰度灵敏度优于 5×10^{-5});德国 Finnigan 公司产品;Element XR 高分辨电感耦合等离子

体质谱仪(动态线性范围 10^{12} ,最高分辨率(FWHM)20 000);美国 Thermo 公司产品;AG245 电子天平;瑞士 Mettler Toledo 公司产品;除气装置:德国 Finnigan 公司产品。

1.2 主要材料与试剂

Mo (GSB 04-1737-2004)、 Zr (GSB 04-1762-2004)、 Ru (GSB 04-1747-2004)国家标准物质;浓度均为1 000 mg/L,国家有色金属及电子材料分析测试中心产品;待测样品:反应堆辐照后燃料元件芯件经切割、溶解后,分离得到待测钼样品;铱带(18 mm $\times$ 0.7 mm $\times$ 0.04 mm):使用前经除气装置除气; $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$:优级纯;去离子水:电阻率 $>18 \text{ M}\Omega \cdot \text{cm}$ 。

1.3 热电离质谱的测量

1.3.1 样品加载 用微量移液器移取1 μL 钼样品溶液于铱带上,以1.4 A 电流烘干;然后在样品印痕上滴1 μL SrCl_2 溶液,以2 A 电流烘干,保持10 s;当黑烟减少或铱带变红时,立即停止电流;采用单带结构,样品带装入转盘,待测。

1.3.2 升温测量 铱带升温时,蒸发带以200 mA/min 的速率升至1 200 mA,稳定2 min;再以100 mA/min 的速率升至1 600 mA,保持电流2 min;然后以50 mA/min 的速率升至1 850 mA,此时 MoO_3^- 离子流出现,微调转盘位置和离子透镜使信号增强;当 Mo 涂样量在0.1 μg 以下时,信号先下降后增强,稳定30 min 后对样品进行测定。

2 结果与讨论

2.1 离子流变化趋势

实验采用负热电离质谱法测定 MoO_3^- 离

子,以 SrCl_2 溶液为发射剂,可显著提高其电离效率。0.1 μg 钼在单带和双带模式下, m/z 146 离子流信号分别可达 50 mV 和 200 mV,离子流持续时间可达 2 h。0.1 μg 钼在单带测量时, m/z 146 离子流信号及 $^{146}\text{Mo}/^{143}\text{Mo}$ 值随时间的变化趋势示于图 1。从图中可以看出:

保持 1 850 mA 带电流不变,离子流强度先下降再升高,最后再逐渐降低;测量前 30 min 的分馏效应严重, $^{146}\text{Mo}/^{143}\text{Mo}$ 值逐渐增大;最佳测定时间在 30~70 min 之间, $^{146}\text{Mo}/^{143}\text{Mo}$ 值分散性小,相对标准偏差(RSD)可达 0.5% 以下。

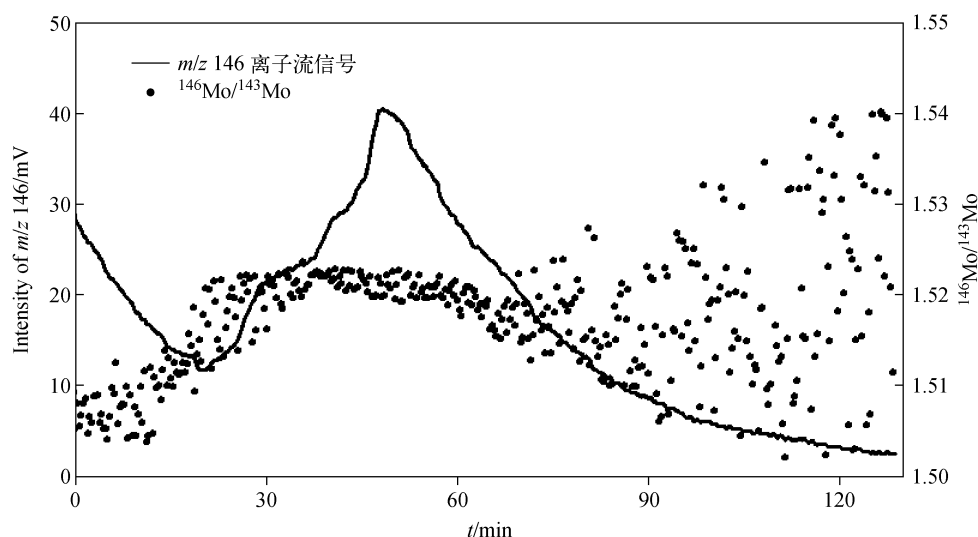


图 1 0.1 μg 钼在单带测量时, m/z 146 离子流信号及 $^{146}\text{Mo}/^{143}\text{Mo}$ 值随时间变化的趋势图

Fig. 1 Trend graph of m/z 146 ion signal intensity and $^{146}\text{Mo}/^{143}\text{Mo}$ vs time with 0.1 μg molybdenum loaded onto single filament

2.2 法拉第杯接收模式

实验所用的质谱仪有 5 个法拉第杯,可同时接收 5 个钼同位素,剩余 2 个钼同位素采用跳峰模式接收。一般的做法是,用中心杯跳峰 2 次分别测定剩余的 2 个钼同位素,但该方式耗时长(20 s 以上),离子流信号强度变化会影响测量准确度。本实验只进行 1 次跳峰,杯接收模式列于表 1。第 1 次数据采集时,中心杯接收 m/z 143 信号,根据质量色散调节其他 4 个杯位置,使 m/z 140、142、145、148 信号可同时被接收;第 2 次数据采集时,中心杯接收 m/z 144 信号,由于两次接收信号的质量差仅为 1 u,因此, m/z 143、146 信号也可同时被接收。由于 m/z 143 信号

被采集 2 次,以第 2 次采集的结果来计算 $^{144}\text{Mo}/^{143}\text{Mo}$ 、 $^{146}\text{Mo}/^{143}\text{Mo}$ 比值,可减小信号波动引入的误差,提高测量精度和准确度。

采用表 1 中的杯接收模式对天然钼同位素进行测定,结果列于表 2。当信号缓慢变化时,两种模式所测数据的相对偏差在 10^{-4} 级,一旦信号变化加剧,相对偏差将显著增大,可见跳峰测定的准确性受信号稳定性影响严重,而同时测定 m/z 143、144、146 时所得 $^{144}\text{Mo}/^{143}\text{Mo}$ 、 $^{146}\text{Mo}/^{143}\text{Mo}$ 值的相对标准偏差明显好于跳峰测定比值,当信号波动时这种优势更为明显。

2.3 本底干扰

为了减小铼带及发射剂中天然钼本底给核

表 1 测定钼同位素的法拉第杯接收模式

Table 1 Faraday cups collecting mode for molybdenum isotopes determination

信号采集次数	6 号杯	5 号杯	4 号杯	3 号杯	2 号杯
第 1 次	m/z 140	m/z 142	m/z 143	m/z 145	m/z 148
第 2 次(跳峰)	—	m/z 143	m/z 144	m/z 146	—

表 2 跳峰测定与同时测定的结果
Table 2 Results of peak jumping and simultaneous determination

同位素比值	跳峰(m/z 143 为第 1 次信号采集时测定)		同时(m/z 143 为第 2 次信号采集时测定)		相对偏差/%
	平均值	RSD/%	平均值	RSD/%	
$^{144}\text{Mo}/^{143}\text{Mo}$	1.04827	0.09	1.04796	0.03	0.3
$^{146}\text{Mo}/^{143}\text{Mo}$	1.52041	0.11	1.51950	0.05	0.6

燃料样品中钼同位素测定带来的误差,应采取降低本底,分析本底干扰影响程度。选用高纯 SrCl_2 试剂,用经二次蒸馏后的去离子水配制 SrCl_2 发射剂溶液。采用高分辨电感耦合等离子体质谱法(HR-ICP-MS)测定 SrCl_2 溶液中钼浓度,在 Sr 浓度为 200 mg/L 的 SrCl_2 溶液中,钼浓度为 33 ng/L。因为在 1 μg 发射剂溶液中引入的天然 Mo 本底仅为 3.3×10^{-5} ng,所以发射剂中的本底干扰可忽略。实验所用铼带经过丙酮浸泡和硝酸清洗后送入真空室除气,可减少本底干扰。在清洗后的铼带上滴加 1 μL SrCl_2 溶液,在 1 850 mA 带电流下, m/z 146 信号低于 0.1 mV,表明质谱测定过程的钼本底干扰可忽略。

2.4 氧同位素干扰

由于氧同位素的影响,利用 MoO_3^- 测量钼同位素比值时需要测量结果进行修正。 MoO_3^- 是由 1 个 Mo 原子和 3 个 O 原子构成,其中钼有 7 个同位素,氧有 3 个同位素, MoO_3^- 离子团有多种组合方式。例如,质量数为 143 的离子团有以下组合方式:

$$\begin{aligned}
 {}^{143}(\text{MoO}_3^-) &= {}^{92}\text{Mo} + {}^{16}\text{O} + {}^{17}\text{O} + {}^{18}\text{O} \\
 &= {}^{92}\text{Mo} + {}^{17}\text{O} + {}^{17}\text{O} + {}^{17}\text{O} \\
 &= {}^{94}\text{Mo} + {}^{16}\text{O} + {}^{16}\text{O} + {}^{17}\text{O} \\
 &= {}^{95}\text{Mo} + {}^{16}\text{O} + {}^{16}\text{O} + {}^{16}\text{O} \quad (1)
 \end{aligned}$$

以此类推,其他被测质量数也有多种组合

$$\begin{cases}
 (1 - R_{140/143} \cdot R_{17/16} \cdot R_{18/16})x_1 - R_{140/143} \cdot R_{17/16}x_2 = R_{140/143} \\
 (R_{17/16}^2 - R_{142/143} \cdot R_{17/16} \cdot R_{18/16})x_1 + (1 - R_{142/143} \cdot R_{17/16})x_2 = R_{142/143} \\
 (R_{18/16}^2 - R_{144/143} \cdot R_{17/16} \cdot R_{18/16})x_1 + (R_{17/16}^2 - R_{144/143} \cdot R_{17/16})x_2 + x_3 = R_{144/143} - R_{17/16} \\
 (R_{17/16} \cdot R_{18/16}^2 - R_{145/143} \cdot R_{17/16} \cdot R_{18/16})x_1 + (R_{17/16} \cdot R_{18/16} - R_{145/143} \cdot R_{17/16})x_2 + \\
 R_{17/16}x_3 + x_4 = R_{145/143} - R_{17/16}^2 \\
 (R_{18/16}^3 - R_{146/143} \cdot R_{17/16} \cdot R_{18/16})x_1 + (R_{18/16}^2 - R_{146/143} \cdot R_{17/16})x_2 + \\
 R_{17/16}^2x_3 + R_{17/16}x_4 + x_5 = R_{146/143} - R_{17/16} \cdot R_{18/16} \\
 - R_{148/143} \cdot R_{17/16} \cdot R_{18/16}x_1 + (R_{18/16}^3 - R_{148/143} \cdot R_{17/16})x_2 + R_{18/16}^2x_3 + \\
 R_{17/16} \cdot R_{18/16}x_4 + R_{17/16}^2x_5 + x_6 = R_{148/143} - R_{17/16} \cdot R_{18/16}^2
 \end{cases} \quad (2)$$

方式,经推导可列出六元一次方程组,示于式(2)。其中, $R_{17/16}$ 、 $R_{18/16}$ 分别为 $^{17}\text{O}/^{16}\text{O}$ 、 $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 同位素比值, $R_{140/143}$ 为质量数 140 与 143 处原子数比值测量值, x_1 为 $^{92}\text{Mo}/^{95}\text{Mo}$ 同位素比值,其他符号以此类推。求解矩阵方程(2)可扣除氧同位素对测量结果的影响,得到扣氧修正后的钼同位素比值。

2.5 同量异位素干扰

锆、钌、钼均是主要的裂变产物,其中锆是核燃料包壳成分,锆、钌同位素都可能对乏燃料中裂变产物钼同位素造成同量异位素干扰,这种干扰在正离子模式测量时尤为严重。在负离子模式下,待测离子为 MoO_3^- 基团,Zr 为 IV 价,Ru 的稳定价态为 IV、VI 价,无法形成 ZrO_3^- 、 RuO_3^- 基团,从根本上避免了同量异位素干扰。本实验对 Zr、Ru、Mo 混合样品进行测定,其涂样质量比为 1:1:1,测量时对 m/z 137~153 进行扫描,结果示于图 2。从图中可以看出,除了钼的 7 个同位素质谱峰外,没有发现 Zr、Ru 干扰。

2.6 样品测定结果

实验样品包括 3 个辐照后核燃料待测样品和 1 个天然钼样品,测定结果列于表 3。除了裂变产物 ^{95}Mo 、 ^{97}Mo 、 ^{98}Mo 、 ^{100}Mo 外,从待测样品中还测出了非裂变产物 ^{92}Mo 、 ^{94}Mo 、 ^{96}Mo , $^{92}\text{Mo}/^{96}\text{Mo}$ 、 $^{94}\text{Mo}/^{96}\text{Mo}$ 、 $^{92}\text{Mo}/^{94}\text{Mo}$ 与天然钼

测量值基本一致,由此判定样品中存在天然钼本底,天然钼可能来自核燃料制造过程中所使用的钼坩埚。根据待测样品及天然钼同位素比值测定值,可将天然钼本底扣除,修正计算出裂变产物钼同位素比值,计算公式示于式(3):

$$R'_{i/95} = \frac{R_{i/92} - R''_{i/92}}{R_{95/92} - R''_{95/92}} \quad (3)$$

式中, $R'_{i/95}$ 为裂变产物 $i\text{Mo}/^{95}\text{Mo}$ 修正值, $R_{i/92}$ 、 $R_{95/92}$ 分别为待测样品中 $i\text{Mo}/^{92}\text{Mo}$ 、 $^{95}\text{Mo}/^{92}\text{Mo}$ 测定值, $R''_{i/92}$ 、 $R''_{95/92}$ 分别为天然钼中 $i\text{Mo}/^{92}\text{Mo}$ 、 $^{95}\text{Mo}/^{92}\text{Mo}$ 测定值。将表 3 的数据代入式(3),可求出裂变产物中钼同位素比值,结果列于表 4。由于待测样品为辐照后核燃料芯体,芯体中由裂变产生的钼同位素比值与天然

钼同位素比值有较大差异。由于 3 个待测样品的燃耗不同,测得的钼同位素比值并不完全一致。

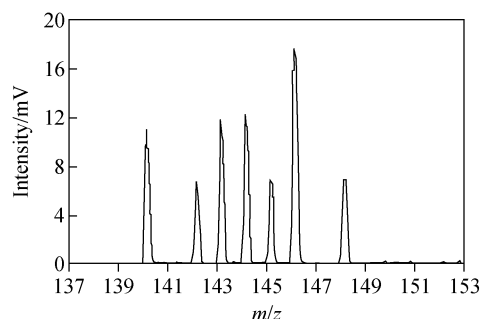


图 2 Zr、Ru、Mo 混合样品测量时 MoO_3^- 质谱峰
Fig. 2 Mass peaks of MoO_3^- of Zr, Ru, Mo mixed sample

表 3 待测样品与天然钼样品的测定结果

Table 3 Isotope ratios determination results of Mo in spent fuel and natural samples

样品	$^{92}\text{Mo}/^{95}\text{Mo}$	$^{94}\text{Mo}/^{95}\text{Mo}$	$^{96}\text{Mo}/^{95}\text{Mo}$	$^{97}\text{Mo}/^{95}\text{Mo}$	$^{98}\text{Mo}/^{95}\text{Mo}$	$^{100}\text{Mo}/^{95}\text{Mo}$
待测样品 1	0.10321 ± 11	0.06433 ± 6	0.11653 ± 8	0.89574 ± 87	0.93131 ± 98	0.97390 ± 75
待测样品 2	0.81364 ± 74	0.51196 ± 54	0.91802 ± 68	0.67873 ± 89	1.4541 ± 14	0.66324 ± 55
待测样品 3	0.42193 ± 45	0.26026 ± 20	0.47930 ± 34	0.93927 ± 80	1.2159 ± 13	0.84078 ± 59
天然钼	0.92930 ± 99	0.57995 ± 55	1.0478 ± 7	0.60065 ± 90	1.5196 ± 16	0.60704 ± 50

注:置信概率 95%

表 4 待测样品中裂变产物钼同位素比值的修正结果

Table 4 Isotope ratios modification results of Mo fission products in spent fuel samples

样品	$^{97}\text{Mo}/^{95}\text{Mo}$	$^{98}\text{Mo}/^{95}\text{Mo}$	$^{100}\text{Mo}/^{95}\text{Mo}$
待测样品 1	0.9326 ± 14	0.8578 ± 13	1.0197 ± 13
待测样品 2	1.2280 ± 21	0.9936 ± 15	1.0586 ± 14
待测样品 3	1.2209 ± 17	0.9632 ± 15	1.0352 ± 13

注:置信概率 95%

3 结论

本研究以 SrCl_2 为发射剂,采用负热电离子质谱法测定钼同位素比值,所得的离子流信号稳定, $0.1 \mu\text{g}$ 钼单带测量时离子流持续时间可达 2 h,相对标准偏差小于 0.5%。该方法避免了锆、钨同量异位素干扰,适用于基体复杂、钼含量低的核燃料裂变产物中钼同位素分析。

参考文献:

[1] 张春华. 核燃料燃耗的质谱测定[J]. 核动力工

程, 1987, 6(8): 49-56.

ZHANG Chunhua. Mass spectrometry determination of nuclear fuel burn up[J]. Nuclear Power Engineering, 1987, 6 (8): 49-56(in Chinese).

[2] 李桃生, 方栋. 核燃料的燃耗测量方法综述[J]. 核电子学与探测技术, 2005, 25(6): 852-857.

LI Taosheng, FANG Dong. Introduction to burn-up measurement method of nuclear fuel[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2005, 25 (6): 852-857(in Chinese).

[3] ANBAR A D, KNAB K A, BARLING J. Precise determination of mass-dependent variations in the isotopic composition of molybdenum using MC-ICP-MS[J]. Anal Chem, 2001, 73(7): 1 425-1 431.

[4] 朱建明, 朱祥坤, 黄方. 钼的稳定同位素体系及其地质应用[J]. 岩石矿物学, 2008, 27(4): 353-360.

ZHU Jianming, ZHU Xiangkun, HUANG Fang. The systematics of molybdenum stable isotope and its application to earth science[J].

- Acta Petrologica Et Mineralogica, 2008, 27(4): 353-360(in Chinese).
- [5] 李津,朱祥坤,唐索寒. 钼同位素分析方法初探[J]. 矿物学报,2009,29(S1):614-616.
LI Jin, ZHU Xiangkun, TANG Suohan. Preliminary study on molybdenum isotope analysis[J]. Acta Mineralogica Sinica, 2009, 29(S1): 614-616(in Chinese).
- [6] 李津,朱祥坤,唐索寒. 钼同位素的 MC-ICP-MS 测定方法研究[J]. 地球学报,2010,31(2):251-257.
LI Jin, ZHU Xiangkun, TANG Suohan. High-precision measurements of Mo isotopes using MC-ICP-MS[J]. Acta Geoscientia Sinica, 2010, 31(2): 251-257(in Chinese).
- [7] AUPHAS N, REISBERG L, MARTY B. Solvent extraction, ion chromatography, and mass spectrometry of molybdenum isotopes[J]. Anal Chem, 2001,73(11): 2 613-2 616.
- [8] MOUREAU J, GRANET M, CHARTIER F, et al. High accuracy measurements of Mo isotopes by MC-ICP-MS with in situ Mo/Zr separation using N_2O in a collision reaction cell[J]. J Anal Atom Spectrom, 2008, 23(11): 1 538-1 544.
- [9] 林久之. 钕和钼同位素丰度比的精密测定[J]. 核动力工程,1980,1(4):56-60.
LIN Jiuzhi. Precise determination of neodymium and molybdenum isotope ratios[J]. Nuclear Power Engineering, 1980, 1(4): 56-60(in Chinese).
- [10] LU Q, MASUDA A. High accuracy measurement of isotope ratios of molybdenum in some terrestrial molybdenites[J]. Am Soc Mass Spectrom, 1992, 3(1): 10-17.
- [11] TURNLUND J R, KEYES W R, PEIFFER G L. Isotope ratios of molybdenum determined by thermal ionization mass spectrometry for stable isotope studies of molybdenum metabolism in humans[J]. Anal Chem, 1993, 65(13): 1 717-1 722.
- [12] WIESER M E, de LAETER J R. Thermal ionization mass spectrometry of molybdenum isotopes[J]. Int J Mass Spectrom, 2000, 197(2): 253-261.
- [13] WIESER M E, de LAETER J R. Molybdenum isotope mass fractionation in iron meteorites[J]. Int J Mass Spectrom, 2009, 286(2/3): 98-103.
- [14] GIUSSANI A, HANSEN C, NUSSLIN F, et al. Application of thermal ionization mass spectrometry to investigations of molybdenum absorption in humans[J]. Int J Mass Spectrom, 1995, 148(95): 171-178.
- [15] WIESER M E, de LAETER J R, VARNER M D. Isotope fractionation studies of molybdenum[J]. Int J Mass Spectrom, 2007, 265(1): 40-48.
- [16] 邓辉,梁帮宏,张炯,等. 钼同位素丰度的负热电离质谱测量方法研究[C]. 中国质谱学会无机质谱、同位素质谱、质谱仪器和教育专业委员会学术交流会论文集,2007:30-31.