

## 多接收电感耦合等离子体质谱法测定<sup>79</sup>Se

张继龙,任同祥,王同兴,赵永刚

(中国原子能科学研究院,北京 102413)

### Determination of <sup>79</sup>Se with MC-ICP-MS

ZHANG Ji-long, REN Tong-xiang, WANG Tong-xing, ZHAO Yong-gang  
(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

**Abstract:** The analysis of <sup>79</sup>Se in high radioactive waste using a multi-collector inductively coupled plasma mass spectrometry (MC-ICP-MS) is described, Hexapole collision cell was used to remove argide-based interferences, which have always presented a problem to the measurement of certain elements, such as Ca, Cr, Fe, and Se. <sup>78</sup>SeH was deducted from the measurement of <sup>79</sup>Se.

**Key words:** MC-ICP-MS; Se; half-life

中图分类号:O657.63 文献标识码:A 文章编号:1004-2997(2006)增刊-23-02

半衰期是长寿命裂变核素的重要核参数之一,准确测定该参数,不仅对核结构方面的研究有理论上的意义,而且对反应堆设计、同位素生产、废物处理处置以及中子活化分析等方面都有很重要的实际应用价值。<sup>79</sup>Se 半衰期的测定从二战时期美国曼哈顿计划就已开始,至今已先后被测量了 5 次,但所测半衰期值在误差范围内始终无法很好的相互吻合。随着科学技术的不断进步,应用新的先进仪器重新准确测定<sup>79</sup>Se 的半衰期是很有意义的。

中国原子能科学研究院通过离子交换和沉淀法相结合的分流流程从高放废液中分离得到了符合测量要求的<sup>79</sup>Se 溶液,并采用低本底液闪烁仪准确测定了溶液中<sup>79</sup>Se 的放射性活度。本实验室利用六级杆碰撞室充入氢气消除<sup>38</sup>Ar<sup>-</sup><sup>40</sup>Ar<sup>+</sup>和<sup>40</sup>Ar<sup>-</sup><sup>40</sup>Ar<sup>+</sup>等多原子离子的干扰,采用

多接收电感耦合等离子体质谱(MC-ICP-MS)为该工作准确测定了<sup>79</sup>Se 的原子数。

### 1 实验

#### 1.1 仪器和试剂

多接收电感耦合等离子体质谱仪(Iso-probe),英国 GV 公司产品,采用加有能量过滤的光电倍增器为接收器;冷却气 14.1 L/min;辅助气 1.0 L/min;雾化气 0.95 L/min;射频功率 1 300 W。

硝酸(BV III 级),超纯水(Mill-Q,电阻 18.2 MΩ)。

天然硒系列标准浓度溶液,高放废液中分离出的硒溶液。

## 1.2 碰撞气体流速的选择

电感耦合等离子体质谱的工作气体是氩气,离子源提供的等离子体中存在着大量的氩离子和氩复合离子,其中, $^{39}\text{K}^{40}\text{Ar}^+$ 、 $^{38}\text{Ar}^{40}\text{Ar}^+\text{H}^+$ 、 $^{38}\text{Ar}^{40}\text{Ar}^+$ 、 $^{40}\text{Ar}^{40}\text{Ar}^+$ 对测量 $^{79}\text{Se}$ 有非常大的影响。Isoprobe 提供了一个六级杆碰撞室,碰撞室内通入一定比例的氢气和氩气,即能起到能量聚焦的作用,又可剔除氩复合离子的干扰。

为了确定最佳的测量条件,本实验室分别研究了氢气流量和氩气流量对  $m/z=79$ 、80 和 81 的信号强度的影响。实验中通入空白溶液(2%硝酸),雾化器流量保持在 0.910 L/min。图 1 是  $m/z=79$ 、80 和 81 的信号强度随氢气流量的变化曲线。

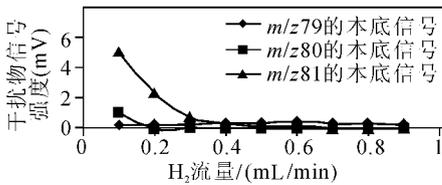


图 1 氢气流量与 78,79 和 80 的本底噪声关系图

Fig. 1 Flux of Hydrogen and the background of mass 78,79,80

## 1.3 氢化物的扣除

采用碰撞气体氢气消除氩复合离子的同时,硒和氢又结合成硒的氢化物。其中, $^{78}\text{SeH}$ 将影响 $^{79}\text{Se}$ 的定量测量。但在硒稳定同位素中没有 $^{79}\text{Se}$ 和 $^{81}\text{Se}$ ,因此,在扣除各自的本底后, $^{78}\text{SeH}/^{78}\text{Se}$ 应等于 $^{80}\text{SeH}/^{80}\text{Se}$ 。但 $^{78}\text{Se}$ 的信号会受到 $^{77}\text{SeH}$ 的影响。因此,测量出 $^{80}\text{SeH}/^{80}\text{Se}$ 的比值用于扣除高放中分离出的硒溶液中 $^{78}\text{Se}$ 的氢化物对所测对象 $^{79}\text{Se}$ 的影响。

## 2 结果与讨论

从图 1 可知,在所研究氢气流量范围内, $m/z79$ 的信号强度变化较小,而 $m/z80$ 和 81 处的信号强度则随着氢气流量的增加,呈明显下降

趋势。固定氢气的流量为 0.60 mL/min。当氩气流速在 1.0~1.4 mL/min 的范围内变动,本底的信号强度没有明显变化。随后用 100 ng/g 的天然硒溶液进样,在其他条件都不变的情况下,调节氩气流量,当氩气流量达到 1.4 mL/min 时,硒的信号达到了最大值。故最终选定氢气的流量为 0.60 mL/min。氩气流量为 1.4 mL/min。

获取碰撞气体氩和氢的流速以及氯化物的贡献因子后,依次测量天然硒的标准浓度溶液,六个样品点的数据用最小二乘法拟合,并给出 $^{80}\text{Se}$ 的浓度曲线,结果示于图 2,其线性方程是  $Y=10312X+277.44$ 。

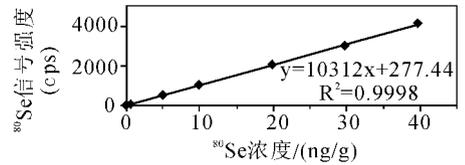


图 2  $^{80}\text{Se}$  的浓度曲线

Fig. 2 The curves of  $^{80}\text{Se}$  concentrations

得到 $^{80}\text{Se}$ 的浓度曲线,测量高放废液中分离出的 $^{79}\text{Se}$ 的量,计算出三个样品中 $^{79}\text{Se}$ 的浓度,其浓度分别是 1.10、1.31、1.33 ng/g。然后经质量、收率、高放废液取样量校正,给出了高放废液中 $^{79}\text{Se}$ 的原子数分别为  $9.02 \times 10^{14}$ 、 $8.56 \times 10^{14}$  和  $8.55 \times 10^{14}$ 。它们各自的标准偏差是 5.4%、5.3%、5.3%。误差的主要来源是质谱测量的统计误差和两步离子交换的收率引起的误差。

## 3 结论

由测定结果得到 $^{79}\text{Se}$ 的半衰期为  $(4.61 \pm 0.29) \times 10^5$  a。与文献中 $^{79}\text{Se}$ 的半衰期测量值相比较,我们采用了先进、可靠的测量仪器,精心排除可能的干扰因素,保证了所得结果的可信度。这也是在前人研究工作基础上的进一步提高。