

使用胶体石墨技术测定铀同位素丰度比

杨坤山 王娅妮

(兰州大学现代物理系)

〔摘要〕 本文介绍了胶体石墨和铀样品的装载技术, 在 $(\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot \text{C} \cdot \text{Ta})$ 体系内, 带的碳化处理及铀离子的获得同时完成。本方法不仅提高了热电离效率, 改善了离子流的稳定性, 而且有效地避免了铀样品的早期蒸发。

一、前 言

质谱法分析铀同位素丰度比的精密度受到多种因素的影响, 其中以离子流随时间的变化及分馏效应的影响更为显著。为了提高热电离效率, 改善离子流的稳定性, 虽有多种方法可供选择, 但以带的碳化处理较为方便有效。

我们研究了胶体石墨和铀样品的装载技术(石墨量与样品中的含铀量按化学计量配制)。在 $(\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot \text{C} \cdot \text{Ta})$ 体系内, 带的碳化处理及铀离子的获得一次完成。本方法不仅提高了热电离效率, 改善了离子流的稳定性, 同时有效地避免了铀样品的早期蒸发。实验证明, 在整个测量过程中, 极难检测到 UO_2^+ 或 UO^+ 。

对所获取的原始数据, 采用数理统计方法处理, 不仅可以选择最佳测量条件, 而且可以对分馏效应的影响进行系统校正^{〔2-4〕}。

二、实 验 与 结 果

在铀带的中心部位压出直径0.8毫米的槽, 将配制好的胶体石墨(SR)用微量注射器注入槽内, 并在红外灯下烘干。然后通电流使有机物质分解(如蔗糖)。最终在带上得到约1平方毫米的石墨斑。

在带通电流的情况下, 铀样品溶液缓缓滴入石墨层, 均匀渗透。当水份蒸发干后, 升温转化铀样品。实践证明, 石墨层作为铀样品的载体, 可以有效地防止样品溶液向带四周延展。

将30微克U和2微克C装在带上, 样品转化电流为2安; 样品转化时间为3分钟^{〔4〕}。质谱计运行正常, 带电流升到约5安, 只能检测到金属铀离子。

采集的原始数据包括:

离子流趋于稳定时间(等待时间), 各种离子讯号的峰值电压, 相应的基线漂移值, 每组数据获取相应的逝去时间。

1984年12月22日收

我们选择了铀同位素丰度比 $R_0 = 0.031565 \pm 0.000005$ (已经 MAT-250 质谱计标定) 的标准样品进行实验, 分析结果列入表 1、表 2。

表 1 铀 装 载 量 50 微 克

标准样品 R_0	测量值 (95%置信度) R_x	回归线斜率 $S = /分$	校正系数 $B = R_0/R_x$
0.031565 ± 0.000005	0.03173	-3.6×10^{-5}	0.995
	0.03155		1.000
	0.03166	-1.7×10^{-5}	0.997
	0.03177	-1.3×10^{-5}	0.995
平均值 $\bar{R}_x = 0.03167$ 标准偏差 $\sigma = \pm 10 \times 10^{-5}$ 变异系数 $K = \pm 3 \times 10^{-3}$		$\bar{S} = -2.2 \times 10^{-5}$	$\bar{B} = 0.9967$

表 2 铀 装 载 量 30 微 克

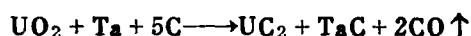
标准样品 R_0	测量值 (95%置信度) R_x	回归线斜率 $S = /分$	校正系数 $B = R_0/R_x$
0.031565 ± 0.000005	0.03160	-1×10^{-5}	0.999
	0.03155	-1.5×10^{-5}	1.000
	0.03151	-1×10^{-5}	1.001
	0.03154	-1.8×10^{-5}	1.000
	0.03159		0.999
	0.03153		1.001
平均值 $\bar{R}_x = 0.03153$ 标准偏差 $\sigma = \pm 3.5 \times 10^{-5}$ 变异系数 $K = \pm 1.1 \times 10^{-3}$		$\bar{S} = -1.3 \times 10^{-5}$	$\bar{B} = 1.0009$

从表 1 可以看出, 平均值 \bar{R}_x 大于标定值 R_0 , 是由于所采集的数据集中于分馏过程的前半部分。表 2 中给出的平均值 \bar{R}_x 更接近于标定值 R_0 , 是因为所采集到的数据均匀分布于样品蒸发量 63% (理论值) 的两侧, 所以各次实验的重现性更理想些。对于 ZhT-1301 型质谱仪器, 由于采用胶体石墨技术, 得到上述结果是令人满意的。

三、讨 论

1. 发射机理

铀样品装载于石墨层, 在高真空和高温的环境中, 发生如下的转换^[4]



有新物种 UC_2 和 TaC 生成。

TaC 可以提高带的表面功函数,已为人们所公认。 UC_2 的熔点为 $2200^\circ C$ ^[5],所以 UC_2 的形成是避免铀样品早期蒸发的关键因素。 UC_2 是不稳定的化合物,当它熔融时,又将解离出铀原子。所以按化学计量配制的石墨、铀样品装载方式,最终只能检测到金属铀离子。

2. 方法估计

(1) 由于铀样品装在1平方毫米的石墨层内,会有较好的牢固性。同时,由于铀样发射面积的减小,有利于改善离子源的光学聚焦性能。认真操作,不会出现失误。

(2) 与树脂球技术^[6],活性碳技术相比较,本方法简便易行。尤其是一些低档仪器采用本方法,可以提高铀样品分析精度。以ZnT-1301型质谱计为例,分析精度优于 $\pm 0.5\%$ 。

(3) 本方法对于排除氧同位素的干扰,减小放射性的污染均有效果。

参 考 文 献

1. 朱凤琴等,质谱学杂志, Vol 7, No1, 1(1986)
2. D. Tzttas, Application Note, No46, Finnigan MAT(1981)
3. 杨树贵等,质谱学杂志, Vol 4, No1, 29(1983)
4. 刘炳寰等,质谱学方法与同位素分析,科学出版社, 1983, P.197
5. 约瑟夫·哲·卡茨等,铀化学,化学工业出版社, 1960, P.145
6. 车宗伶,质谱学杂志, Vol.4, No2, 51(1983)

Uranium Isotope Ratio Measurements Using a Colloidal Graphite Technique

Yang Kunshan, Wang Yani

(Department of Modern Physics, Lanzhou University)

Received 22, Dec.1984

Abstract

In the present paper a loading technique of colloidal graphite and uranium sample have been described. The results show that the layer of TaC forms and the ionization of uranium are realized simultaneously in the system of $UO_2(NO_3)_2$, Ta and C. With the aid of this technique the premature evaporation of uranium sample can be precluded and the stability of ion current is improved.