

多接收电感耦合等离子体质谱法精确测量 铀中痕量钚同位素方法研究

李力力¹, 李金英², 赵永刚¹, 常志远¹, 张继龙¹, 王同兴¹

(1. 中国原子能科学研究院, 放射化学研究所, 北京 102413; 2. 中国核工业集团公司, 北京 100822)

摘要: 经过核燃料后处理得到的铀产品中含有极微量钚杂质, 对其同位素组成进行分析有利于对应铀材料的溯源。本工作在铀钚化学分离的基础上, 对影响 MC-ICP-MS 法精确测量痕量钚同位素丰度比值的仪器条件进行了优化, 研究了仪器分辨率、离子提取模式的选择、“背景和干扰”等参数的影响, 探索研究了 MC-ICP-MS 上质量偏倚的校正方法。对选择的两个后处理铀产品中痕量钚同位素比进行了测量, 当铀钚比例达 10^{10} 时, 测得的 $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 相对不确定度优于 5%。并且建立了在 MC-ICP-MS 上测量 $\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 量级钚同位素丰度比值的方法。

关键词: 铀; 痕量钚; MC-ICP-MS; 测量

中图分类号: O 657. 63 文献标识码: A 文章编号: 1004-2997(2009)06-0327-07

Studies on the Precise Measurement of Isotope of Trace Plutonium in Uranium by MC-ICP-MS

LI Li-li¹, LI Jin-ying², ZHAO Yong-gang¹, CHANG Zhi-yuan¹,
ZHANG Ji-long¹, WANG Tong-xing¹

(1. Department of Radiochemistry, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China;
2. China National Nuclear Corporation, Beijing 100822, China)

Abstract: The infinitesimal plutonium impurity was contained in the uranium product obtained by reprocessing. The precise measurement of the isotope ratio of plutonium was beneficial to the identification of the corresponding source of uranium product. Basing on the separation of trace plutonium from uranium matrix, the operating parameters of MC-ICP-MS were studied and optimized for determining the isotope ratio of trace plutonium, such as the adjustment of resolution, selection of mode of ion extraction, elimination of background and interference, etc. The correction method of the mass discrimination was explored for MC-ICP-MS measuring isotope ratio. The isotope ratio of $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ in two selected uranium products obtained by reprocessing, which was measured and corrected by measuring plutonium reference material. The ratio of uranium and plutonium is more than 10^{10} , and the

sum of relative uncertainty for plutonium measurement is better than 5%. The measuring method of isotope ratios establishes for $\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$ level of plutonium.

Key words: uranium; trace plutonium; MC-ICP-MS; measurement

为了有效利用铀资源,对乏燃料进行后处理是必然的选择。后处理铀产品中含有微量的钚杂质,钚的同位素组成与卸出乏燃料的堆型、燃料铀的初始丰度及反应堆运行历史紧密关联,通过准确测定铀产品中的钚丰度,可辅助判断铀产品的来源,在核不扩散领域有一定的应用价值。

质谱法是测量微量钚同位素丰度的理想方法。与表面热电离质谱(TIMS)相比,多接收电感耦合等离子体质谱计(MC-ICP-MS)^[1-2]克服了等离子体闪烁引起的不稳定,采用多个接收器实现了多种同位素比值的精密测定,低的检出限为高精度的痕量元素同位素丰度比值的测定提供了可能。

本研究在已建立的化学分离方法的基础上^[3],对在 MC-ICP-MS 上影响测量大量铀中痕量钚的同位素丰度比值精密度和准确度的各种

因素进行系统研究,并对实际的后处理铀产品中的钚同位素比进行测量。

1 实验部分

1.1 仪器和试剂

IsoprobeTM型多接收电感耦合等离子体质谱计(MC-ICP-MS);英国 GV 公司产品,氦气等离子体炬管,六极杆碰撞池,9 个 Faraday 杯接收器,7 个离子计数器以及 1 个 Daly 检测器。在 Daly 检测器前配有 WARP, Fassel 炬管, Cyclonic 型雾室, Ni 采样锥和撒样锥,孔径分别为 1.1 mm 和 0.7 mm, Meinhard PFA 同心雾化器 ($100 \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$) 和 Aridus (CETAC, USA) 膜去溶进样系统。用 $0.05 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 铀标准液通过单因素法优选的 MC-ICP-MS 仪器操作参数,实验条件列于表 1。

表 1 调整优化后的 MC-ICP-MS 实验参数

Table 1 The adjusted and optimized parameters of MC-ICP-MS

	参数	设置
气体流速	入射功率	1 350 W
	反射功率	< 5 W
	冷却气流速	$14.1 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$
	辅助气流速	$1.05 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$
	雾化器流速	$0.60 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$
Aridus 参数	碰撞气流速(Ar)	$1.20 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ (Meinhard 进样) $1.15 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ (Aridus 进样)
	PFA 雾化器流速	$100 \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$
离子束参数	N ₂ 吹扫气流速	$10 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$
	Ar 吹扫气流速	$3.99 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$
	PFA 雾化室温度	70 °C
	PFA 去溶膜温度	160 °C
	Collimator Cone	400 V
分辨率	D Focus	5 472.5 V
	D Bias	42.54 V
	Slit lens	3 333.3 V
	Z Focus	1 179.4 V
	Z Bias	11.09 V
离子提取模式		Hard 或 Soft
Daly 检测器扫描质量范围		238.5~239.5(测量钚)
		237.5~238.5(测量铀)
积分时间		10 s

超纯水装置(18.2 M Ω ·cm);美国 Millipore 公司产品。

硝酸(BV-Ⅲ级);由北京化学试剂研究所提供;UTB 系列铀同位素工作标准物质;由中国原子能科学研究院放射化学研究所分析测试中心提供。

钚同位素标准物质(IRMM-290b/C3, IRMM-290b/A3, IRMM-290b/D3);购自欧共体核技术中心。将 1 mg 固体硝酸钚标准加入 5 mL 4 mol·L⁻¹ 硝酸溶解,定容至 15 mL,备用,钚浓度约为 67 g·L⁻¹。取储备液连续稀释至浓度约为 5 ng·L⁻¹。

1.2 样品

含钚样品 01 号;由中国原子能科学研究院提供。

两种堆后铀样品,均为 UF₄ (²³⁵U < 0.7%) 粉末,来自不同生产批次。样品的溶解:准确称量 1.319 28 g 样品,放入铂坩埚中,加入 4 mL HNO₃ 后,在电热板上加热,沸腾时将样品取下,稍冷后滴加 30% H₂O₂,样品中不断产生气泡,待气泡散尽再次加热,重复以上过程直至样品完全溶解。稍冷后加入 4 mL HNO₃,待晶体全部溶解后,再放到电热板上加热至微干,重复 3 次以上。最后,用 4 mL HNO₃ 将晶体溶解,用 10% HNO₃ 经溶液定容在 25 mL 容量瓶中。样品中铀浓度均为 40 g·L⁻¹。按照文献[3]提供的方法,将铀钚进行分离。

2 结果与讨论

2.1 仪器主要操作参数的选择

在 ICP-MS 中,影响灵敏度的主要因素有入射功率、雾化气流速和炬管轴向位置^[4]。为了获得较高的单电荷离子产率,尽可能减少双电荷离子和多原子离子产率以提高分析灵敏度是选择参数的原则。在 ICP-MS 上分析铀、钚时,入射功率一般选择 1 350 W。在每次使用该仪器测量前,应用标准溶液调节仪器至最佳状态。

2.2 离子提取模式的选择

在 MC-ICP-MS 上提供了“硬提取(hard)”和“软提取(soft)”两种离子提取模式。“硬提取”是在样品锥和截取锥后的瞄准锥上加有负电压,通过电场作用以提取更多的离子;“软提取”是在瞄准锥上加正电压以减少界面中二次离子的生成,从而降低噪声,提高信噪比。选择最佳

信噪比还是选择最佳灵敏度要视实际样品的情况而定。低丰度同位素在其质量数上的信噪比是此种情况下的关键因素。一般而言,测量丰度差异较小的样品,在最佳灵敏度时测量精度高;测量丰度差异较大的样品,选择最佳信噪比时测量较好,此时虽然损失灵敏度,降低测量精度,但能保证测量工作的正常进行。在本研究中,测量对象是铀产品中的钚杂质同位素比值,²³⁹Pu 和²⁴⁰Pu 的丰度差异较大,应以获取最佳灵敏度为目的。因此,采用 Aridus 进样系统下的“硬提取”模式,此时相对于“软提取”模式,灵敏度提高 4~5 倍。

2.3 MC-ICP-MS 中的“背景和干扰”研究

除优化仪器参数外,在 MC-ICP-MS 上进行同位素比值测量前要校正背景。由非感兴趣元素产生的原子和(或)分子干扰,对空白有 3 个贡献:1)由光子、噪音及类似物产生的连续背景;2)前一样品的记忆效应;3)试剂空白。在背景校正中,最简单和最明显的是分析制备样品所用的同样试剂配成的“空白”溶液,从样品谱中减去空白谱。

对于大量铀中痕量钚的同位素丰度比值,铀的量是产生干扰的主要因素。在等离子体中,²³⁸U 与氢离子结合后形成 m/z 239 的²³⁸UH⁺ 离子以及²³⁸U 的拖尾会对 m/z 239 的测量形成干扰。在不同的仪器及测量条件下,测得的²³⁸UH⁺ 产生几率有所不同。Stürup 等^[5]利用高分辨双聚焦电感耦合等离子体质谱计(PlasmaTrace 2)测量环境样品中的钚,将 1 μ g·L⁻¹ 钚标准溶液进样,在仪器的最佳测量条件下,测得²³⁸UH⁺/U⁺ 比值为 4×10^{-5} ;金玉仁等^[6]采用萃取色层技术分离、同位素稀释技术在双聚焦电感耦合等离子体质谱计上(ELEMENT, Finnigan-MAT)对环境样品中的钚进行测量,为研究质谱测量中²³⁸UH⁺ 对 m/z 239 的影响,对 12 个不同同位素组成及浓度的纯铀样品进行测量后得到²³⁸UH⁺/U⁺ 为 4.6×10^{-5} ; Taylor 等^[7]曾在 Isoprobe 上测量不同浓度的天然铀溶液以研究²³⁸UH⁺ 的影响,利用 Faraday 杯接取²³⁸U, Daly 检测器接取 m/z 239 的信号,测得的²³⁸UH⁺ 和²³⁸U 拖尾对 m/z 239 质量数上大约有 $5.7 \times 10^{-6} \pm 3\%$ 的贡献。Chiappini 等^[8]在四极杆质谱计上测得²³⁸UH⁺/U⁺ 比值为 1×10^{-5} 。

Isoprobe 是带有 WARP 过滤器的质谱计, 具有高的丰度灵敏度, 能消除碰撞后产生的低能离子。因此, 高质量数峰对低质量数一端产生的拖尾比较小, 但对高质量数一端的信号峰有较大影响。一般而言, 对于相差 1 个质量数(1 u)的高质量数的峰拖尾贡献大约是 200×10^{-9} 。

在本研究中, 对 $^{238}\text{U}^+$ 离子以及 $^{238}\text{U}^+$ 对 m/z 239 的拖尾进行研究, 配制了一系列不同浓度的天然铀溶液: 0.001、0.01、0.05、0.1、0.5、1、5、8、10、50、100、200、300、500 $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 。在不同的进样方式下, 研究 m/z 239 与 m/z 238 处的计数比。对于溶液浓度小于 $1 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 的铀溶液, 由于 m/z 239 处的信号强度很低, 为了提高测量灵敏度, 采用 Aridus 进样系统; 对于溶液浓度大于 $1 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 的铀溶液, 采用 Meinhard 型 PFA 雾化器, 测量结果示于图 1, 图 2。结果表明, 对于较大的铀浓度 ($1 \sim 500 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$), $^{238}\text{U}^+/\text{U}^+$ 的平均值为 8.9×10^{-5} ; 对于较小的铀浓度 ($1 \text{ pg} \cdot \text{g}^{-1} \sim 1 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$), $^{238}\text{U}^+/\text{U}^+$ 的平均值为 3.6×10^{-4} 。当铀浓度在 $\text{pg} \cdot \text{g}^{-1}$ 级时, 由于 m/z 238 和 m/z 239 处的信号强度较弱, 计数统计上的涨落很大, 因此 $^{238}\text{U}^+/\text{U}^+$ 的平均值略有增大。

对于 Isoprobe 型 MC-ICP-MS, 当采用 Aridus 进样系统时, 仪器的灵敏度大约是 $4\,000 \sim 5\,000 \text{ s}^{-1} \cdot \text{pg}^{-1} \cdot \text{g}$, 在 m/z 238 处的本底计数约为 $1\,000 \text{ s}^{-1}$, m/z 239 处的本底计数约为 $100 \sim 200 \text{ s}^{-1}$ 。对于含有钷的大量铀样品, 当上柱量为 0.1 g 天然铀、6 ng 钷时, 经过组合的萃取色层法(TBP 色层柱及 7402 季铵盐色层柱)分离流程进行 1 次分离后, 对铀的去污因子大于 10^7 , 解吸液中铀的浓度约为 $1 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 而钷的浓度约为 $0.57 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ (钷的收率以 95% 计)。此时铀对钷的影响大约为 0.06%, 可以认为钷氢峰和拖尾不会影响 $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 丰度比的测量。

考虑到其他同质异位素对测量钷同位素的干扰, 如 $^{207}\text{PbOO}^+$ 、 $^{208}\text{PbOO}^+$ 、 $^{207}\text{PbCl}$ 对测量 m/z 239、240 和 242 的影响, 进样 2% HNO_3 空白溶液和 $100 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 的天然铅溶液, 扫描 m/z 239~242 的质量范围, 对照谱图未发现有任何异常; 只进样 2% HNO_3 空白溶液时, 也未发现异常峰。

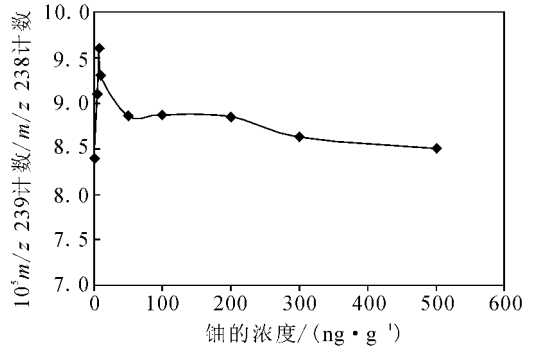


图 1 不同浓度的铀溶液对 m/z 239 的影响 (Meinhard 型 PFA 雾化器进样)

Fig. 1 The effect of various concentration of uranium on m/z 239 (Meinhard nebuliser)

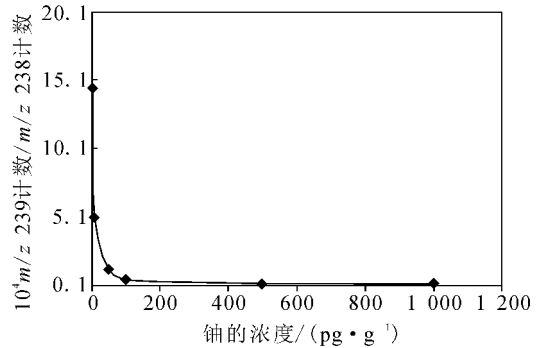


图 2 不同浓度的铀溶液对 m/z 239 的影响 (Aridus 进样)

Fig. 2 The effect of various concentration of uranium on m/z 239 (Aridus nebuliser)

2.4 进样系统对钷同位素测量精度的影响

Aridus 膜去溶进样系统通过去除溶剂能降低氧化物和氢化物, 提高雾化效率。在“硬提取”模式下, 当采用 Meinhard PFA 普通雾化器进样时, 灵敏度大约为 $200 \sim 300 \text{ s}^{-1} \cdot \text{pg}^{-1} \cdot \text{g}$; 当采用 Aridus 系统进样时, 灵敏度大约为 $4\,000 \sim 5\,000 \text{ s}^{-1} \cdot \text{pg}^{-1} \cdot \text{g}$ 。通过使用膜去溶进样系统, 仪器的灵敏度提高了 1 个量级。

取 4 份 $5 \text{ pg} \cdot \text{g}^{-1}$ 01 号样品溶液, 分别用 Meinhard PFA 普通雾化器进样和 Aridus 系统进样, 由 L3, L4 离子计数器接收 ^{240}Pu 、 ^{239}Pu , 每个样品测量 12 次, 进样 4 min, 进样量 0.4 mL。使用膜去溶雾化器使得样品测量精度从大于 2% 改善到小于 1%, 结果列于表 2。

2.5 质量偏倚的校正

在质谱测量中,虽然不同质量的粒子都经过了共同的离子化、能量聚焦、电场加速、磁场偏转等,但是最终测得的同位素比值可能会“偏离”真实值,其偏离程度是 2 个同位素之间质量差的 1 个函数,这种效应被称为“质量偏倚”,它的存在限制了分析数据的准确性和精密性。质量歧视效应是几种不同影响因素的综合结果,一般来说,离心效应、动能效应和空间电荷效应是引起质量偏倚的主要原因。这 3 个效应是在不同的位置产生的,在离子源部分,有离心引起的重离子贫化问题,也有初动能引起的轻离子贫化问题;在撒样锥处有空间电荷效应和动能差异引起的轻离子贫化问题;在飞行管道和加速电压的地方也有空间电荷效应引起的轻离子贫化问题。

表 2 不同进样方式下,样品中²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 测量精密度的比较

Table 2 The comparison of precision of²⁴⁰Pu/²³⁹Pu at the different nebulisers

样品编号	RSD/%	
	Meinhard PFA 雾化器进样	Aridus 膜去溶进样
1	3.0	0.68
2	4.0	0.98
3	4.4	0.93
4	2.0	0.47

已有的质量偏倚校正公式都是经验公式,对于不同的仪器,有不同的质量偏倚公式,而质量歧视的准确函数形式只能由实验测得,并将随仪器的特性而变化。与 TIMS 相比,ICP-MS 产生的质量偏倚比较大,但在同样的实验条件下,质量偏倚随时间、等离子体温度的变化不大。

质量偏倚校正有两种常见的方法:一种是利用同一元素的 1 对具有固定或是已知值的同位素比较校正其他的同位素比;另一种是利用不同元素的一个同位素比较校正另一对同位素的质量偏倚,如利用 U 校正 Pu 或用 Pu 校正 U,但这是建立在由于质量数相差很小,可认为 U 和 Pu 的质量偏倚相同的前提下。本工作研究了利用铀同位素标准物质和钚的已知同位素标准物质对钚的其他同位素测量进行质量偏倚校正。

目前,实验室中存有的是²⁴²Pu/²³⁹Pu 钚同位素丰度标准物质,实际样品需测量的是²⁴⁰Pu/

²³⁹Pu 比值。用 K 表示校正因子, $K = R_c/R_m$, R_c 、 R_m 分别为标准样品的同位素比的参考值和测量值。对于痕量钚同位素比值的测定,一般用离子计数器接收离子, K 因子中主要包括离子计数器的效率差异、仪器的系统偏差和质量歧视效应 3 个因素。

当测量同位素的接收器(如 L3、L4 电子倍增管)固定后,为研究接收器位置移动是否影响质量偏倚的变化,设计如下实验。

选取 L3、L4 两个电子倍增管来同时接收离子束。第 1 次在质量数 251(相对于轴向位置的质量刻度)位置测量 $50 \text{ pg} \cdot \text{g}^{-1}$ 的 UTB500 标准铀溶液,L3、L4 分别接收²³⁸U、²³⁵U;第 2 次改变高压,平行移动 L3、L4 到质量数 250 位置,分别接收²³⁸U、²³⁵U;第 3 次在质量数 254 位置测量标准钚溶液,L3、L4 接收²⁴²Pu、²³⁹Pu。前 2 次测量是在移动接收器后检验校正因子 K 是否因杯位置的移动而发生变化,第 3 次是与前 2 次铀同位素比值的测量做比较,检验铀、钚同位素比测量过程中 K 值的变化,数据列于表 3。

对于多个标准样品的 K 平均值有:

$$\bar{K} = \frac{1}{n} \sum_i K_i$$

结果表明:在前 2 次测量中,改变了接收器位置, K 值相差 0.5%,与测量精度 0.48% 处于相同水平。3 次测量中,随着数据获取位置不同, K 值的外精度为 0.34%,可以认为 K 值是一致的。测量标准铀溶液得到的 K 平均值是 0.865 4,测量钚标准溶液得到的 K 平均值是 0.865 0,两者相差 0.04%,小于测量精度。因此,在没有对应的钚同位素标准物质的前提下,可以用铀标准溶液或钚的其他同位素标准来校正仪器的质量偏倚,进行钚的同位素比值测量。由于杯的位置移动会使 K 产生 0.5% 的差异,在对钚同位素比测量结果进行最终不确定度的评定中,应考虑杯的位置移动带来的影响。

2.6 不同仪器测量结果比较

利用已经研究的微量钚同位素精密测量技术,本实验室与西北核技术所、中国工程物理研究院共同进行了某钚样品中²³⁹Pu/²⁴⁰Pu 的比对测量。本实验室使用的仪器为 MC-ICP-MS,其余两家实验室分别使用了 Finnigan 公司生产的 MAT-262 型和 MAT-261 型热电离质谱计。本实验室的最终测量结果与中值之间的相对偏差

为 0.029%, 这一结果也证明了 MC-ICP-MS 与 TIMS 测量结果的一致性。

表 3 接收器处于不同位置时铀钚标准测量结果

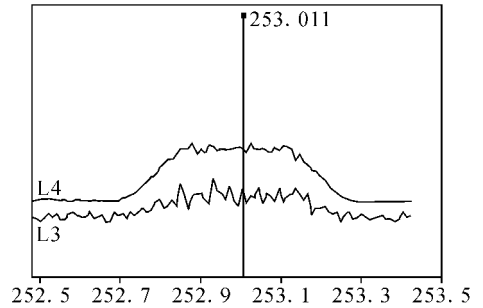
Table 3 The measurement results of uranium or plutonium reference material at the different position of the receptors

标准溶液	K	SD%
50 pg · g ⁻¹ UTB500(251 位置)	0.863 1	0.36
50 pg · g ⁻¹ UTB500(250 位置)	0.867 6	0.49
5 pg · g ⁻¹ IRMM-290b/C3(254 位置)	0.869 9	0.40
5 pg · g ⁻¹ IRMM-290b/A3(254 位置)	0.862 0	0.37
5 pg · g ⁻¹ IRMM-290b/D3(254 位置)	0.863 1	0.46
\bar{K}	0.865 1	0.34

2.7 样品钚同位素丰度比值的测量结果

利用组合的萃取色层法(TBP 色层柱及 7402 季铵盐色层柱)对堆后铀样品进行铀钚分离。每个样品做 3 个平行样品及 1 个流程空白样品。样品上柱后,经过还原、上 TBP 色层柱吸附铀、洗涤钚、氧化钚并再上 7402 季铵盐色层柱、解吸钚,最后定容于 2% HNO₃ 中,在 MC-ICP-MS 上测量 ²³⁹Pu/²⁴⁰Pu。测量时,采用 Aridus 膜去溶系统进样,由 L3、L4 两个离子计数器接收 ²⁴⁰Pu 和 ²³⁹Pu,每个样品测量 12 次,进样 4 min,总进样量 0.4 mL。

样品的钚同位素丰度比值测量结果列于表 4,样品中钚含量为 ng · L⁻¹ 级。同位素丰度比值测量的不确定度主要由样品测量平均值的标准偏差和标准物质的认证值及其测量标准偏差 3 部分组成。经合成后,样品 1 的 ²³⁹Pu/²⁴⁰Pu 同位素丰度比值扩展相对标准不确定度为 4.6% ($k=1.96$),样品 2 的 ²³⁹Pu/²⁴⁰Pu 同位素丰度比值扩展相对标准不确定度为 3.1% ($k=1.96$)。图 3 显示了在 MC-ICP-MS 上测量 ²³⁹Pu/²⁴⁰Pu 时的同位素质量峰,图中从上至下的 2 条峰线分别是:L3 接收的 ²⁴⁰Pu 和 L4 接收的 ²³⁹Pu。结果表明:用 MC-ICP-MS 测量痕量钚同位素丰度比时具有理想的平顶峰。



注:从上至下的两条峰线分别是 L4 接收的 ²³⁹Pu 和 L3 接收的 ²⁴⁰Pu

图 3 后处理铀产品中痕量钚同位素比值的平顶峰图

Fig. 3 The chart of flat peak of isotope ratio of plutonium in uranium product

表 4 两种堆后铀样品中钚的同位素丰度比值测量结果

Table 4 The measurement results of the isotope ratio of plutonium in two samples

样品	²³⁹ Pu/ ²⁴⁰ Pu	标准样品中 ²³⁹ Pu/ ²⁴⁰ Pu 测量值的 RSD/%	标准样品认证值相对不确定度 ($k=2$)	²³⁹ Pu/ ²⁴⁰ Pu 相对不确定度 ($k=1.96$)
	测量值的 RSD/%			
平行样 1	2.2			
样品 1	4.5	1.0	0.088%	4.6%
平行样 3	4.4			
平行样 1	3.6			
样品 2	3.0	1.0	0.088%	3.1%
平行样 3	2.8			

3 结论

系统地研究了 MC-ICP-MS 中影响同位素丰度比值测量的主要因素,包括灵敏度、离子提取模式的选择、钚浓度、背景和干扰、进样系统

等。研究结果表明,雾化气流速和炬管轴向位置是影响灵敏度的两个主要因素;对 MC-ICP-MS 提供的“硬提取”和“软提取”两种离子提取模式,应根据所测量样品的具体情况进行选择;当钚浓

度在 $1 \sim 500 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 时, $^{238}\text{UH}^+/\text{U}^+$ 的平均值为 8.9×10^{-5} ; 铀浓度在 $1 \text{ pg} \cdot \text{g}^{-1} \sim 1 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 时, $^{238}\text{UH}^+/\text{U}^+$ 的平均值为 3.6×10^{-4} ; Aridus 膜去溶进样系统能通过去除溶剂降低氧化物和氢氧化物, 提高雾化效率和仪器灵敏度; 在没有对应的钚同位素标准物质的前提下, 可以用铀标准溶液或钚的其他同位素标准来校正仪器的质量偏倚。建立了 $\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 量级钚同位素丰度比值的测量方法。比对结果表明, 已研究的精密测量痕量钚同位素比值方法的准确度较高。并对两个后处理铀产品中的钚同位素丰度比进行了测量。

参考文献:

- [1] HERTLE H. Multi-collector ICP-MS for high precision isotope ratio measurements; application to isotopic dating methods [R]. IAEA-CN-80/14P; 437-438.
- [2] TAYLOR R N, WARNEKE T, MILTON J A, et al. Multiple ion counting determination of plutonium isotope ratios using multi-collector ICP-MS [J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2003, 18: 480-484.
- [3] 李力力, 李金英, 赵永刚, 等. 铀基体中痕量钚的分离[J]. 核化学与放射化学, 2007, 29(3): 135-140.
- [4] 李力力, 李金英, 赵永刚, 等. 多接收电感耦合等离子体质谱法对钚同位素丰度的测定[J]. 核化学与放射化学, 2006, 28(3): 152-156.
- [5] STÜRUP S, DAHLGAARD H, NIELSEN S C. High resolution inductively coupled plasma mass spectrometry for the trace determination of plutonium isotopes and isotope ratios in environmental samples [J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 1998, 13: 1 321-1 326.
- [6] 金玉仁, 章连众, 韩世钧, 等. 萃取色层分离同位素稀释 ICP-MS 测定空气中费克量钚[J]. 化学学报, 2000, 58(10): 1 291-1 295.
- [7] TAYLOR R N, WARNEKE T, MILTON J A, et al. Plutonium isotope ratio analysis at femtogram to nanogram levels by multicollector ICP-MS [J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2001, 16: 279-284.
- [8] CHIAPPINI R, TAILADE J M, BRÉBION S. Development of a high-sensitivity inductively coupled plasma mass spectrometer for actinide measurement in the femtogram range [J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 1996, 11: 497-503.

仪器信息网“人才频道”新版上线

仪器信息网“人才频道”开通于 2003 年 10 月, 拥有数万份专业个人简历, 每天向求职者提供近千条有效职位信息, 是仪器及分析测试行业专业的人才招聘平台。

为了更好地服务本网用户, 使本栏目达到招聘与求职的精准对接, 仪器信息网“人才频道”近期进行了全面改版升级, 特为招聘时效短、职位需求急等特点的短期用户推出了“急聘与热聘专区”, 以增加用户招聘职位的曝光度, 达到短期内就能招聘到合适人才的效果。

本次改版主要目的是针对用户提出的个人注册简历时间长, 用人单位查找个人简历不能精准搜索等原因, 我们减少了简历注册流程、优化了简历的中英文模板。推出简历高级搜索引擎, 让用人单位能够迅速的从仪器信息网“人才频道”检索出适合自己职位的人才简历。

通过此次改版与整合, 仪器信息网“人才频道”现在推出的栏目包括 7 大板块: 知名企业专区、急聘专区、热聘专区、应届生专区、最新人才推荐、职位风云榜、最受关注雇主排行榜。

至此, 新版“人才频道”将一如既往地保持其“专业针对性强”、“人才库质量高”等特点, 为仪器及分析测试行业专业人才和用人单位搭建沟通的桥梁。

更多栏目详情, 敬请访问 <http://job.instrument.com.cn>。