

SIMS 分析含铀微粒同位素比测量条件的初步研究

沈彦, 王同兴, 赵永刚, 李少伟

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

Study of the Measurement Parameters for Analyzing Uranium Isotope Ratio in Bearing Particles by SIMS

SHEN Yan, WANG Tong-xing, ZHAO Yong-gang, LI Shao-wei

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstracts: The isotope ratios of uranium in particles were closely related to the activities performed in nuclear facilities where the particles were collected, so that the determination of ratio is very important in environmental sample analysis for nuclear safeguards. The method based on the use of secondary ion mass spectrometry (SIMS) was presented for the determination of uranium isotopic composition. The parameters of SIMS were studied in the paper, such as contrast aperture(CA)、lence4(L4)、image field(IF)、the accelerated voltage of primary ions and the secondary ions and so on. These parameters are optimized by measuring the standard reference uranium materials (CRM005 CRM200) for improving the measurement accuracy and the precision of uranium isotopic ratio.

Key words: isotopic analysis; particles; SIMS; measurement parameter

中图分类号: O 657.63 文献标识码: A 文章编号: 1004-2997 (2008) 增刊-49-03

环境取样(ES)是国际核保障的关键手段之一,其主要目的是为提高国际原子能机构探知未申报核活动的能力^[1-3]。微粒中放射性元素的同位素分析作为环境样品中的一种高灵敏度分析技术,已逐渐成为核保障环境监测的常规工具。含铀微粒中铀同位素分析有多种技术可以采纳,二次离子质谱法是最有潜力的一种。分析对象是微米级甚至亚微米级微粒,微粒本身理化性质差别很大,对其进行准确的同位素分析需要细致的仪器参数条件试验,本工作对微粒铀分析过程中 SIMS 仪器相关参数进行初步研究。

1 实验部分

1.1 仪器及样品

SIMS (IMS6F, CAMECA, France); 标准物质: CRM005 CRM20 (New Brunswick Laboratory, USA)。

1.2 实验

以 SIMS 进行同位素测量需要调整仪器以下参数,包括选择离子源,调节一次加速电压、二次加速电压、CA、L4、IF、表面覆氧、一次束流聚焦、散焦、能量狭缝、质量分辨率等参数。该工作目前仅对仪器部分参数,如一次加速电压、二次加速电压、CA、L4、IF 对测量的影响加以研究。仪器的其他测量条件设置为:离子源为 O_2^+ , 能量狭缝为 75 eV, 质量分辨率为 300。接收器选用的离子计数器,跳峰测量,死时间设置为 25 ns, 聚焦时进行测量,数据测量次数为 5×10 cycles, 每个同位素组份测定的积分时间为 2 s。

在实验中,二次光路上的一组狭缝 CA 的孔径大小可以控制二次离子的通过率。为了获得更多的二次离子,提高分析灵敏度,将 CA 从 2[#]孔 (150 μm) 调节到 1[#]孔 (400 μm); L4 作为一次光路上的最后一个调控透镜,通过它可以用来调节一次光斑的大小,为了减小由于提高 CA 狭缝而带来的空间分辨率的下降,将 L4 从 1[#]孔 (750 μm) 调节到 2[#]孔 (200 μm),减小一次光斑直径,用 IF 调节视野范围。

在 CA、L4、IF 之后,调节一次加速高压以及二次加速高压,研究其对测量的影响。核素的二次离子产额与一次离子束的能量具有一定的关系,而一次束的能量等于一次加速电压减去二次加速电压。选用一次高压和二次高压的条件分别为: (12.57+5) kV、6 kV、7 kV、8 kV 以及 (14.98+7) kV、8 kV、9 kV。将两者联系起来考虑其对灵敏度,准确度,精密度的影响。

扫描范围 Raster=50 μm 是指一次离子束轰击样品表面 50 \times 50 μm 的范围; Raster=0 μm ,指一次离子束固定一点轰击样品。

2 结果与讨论

2.1 L4、CA、IF 的影响

对标准物质 CRM005 进行测量,结果列于表 1。通过实验证明,CA=400 μm 、L4=200 μm 、IF=150 μm 时,空间分辨率和灵敏度最高。

表 1 CA、L4、IF 对 CRM005 的 ^{238}U 计数的影响

^{238}U 计数(s^{-1})	L4=750 μm ; IF=250 μm		CA=400 μm ; IF=250 μm		L4=200 μm ; CA=400 μm	
	CA=150 μm	CA=400 μm	L4=750 μm	L4=200 μm	IF=250 μm	IF=150 μm
	1.70×10^4	7.30×10^4	7.30×10^4	3.30×10^4	3.30×10^4	8.20×10^4

2.2 一次束/二次束加速电压、扫描范围对测量结果的影响

图 1~ 4 分别给出了不同一次/二次高压条件下对 ^{238}U 的计数、测量精密度、测量值准确度的影响;图 5 是扫描范围对测量结果平均值的影响。

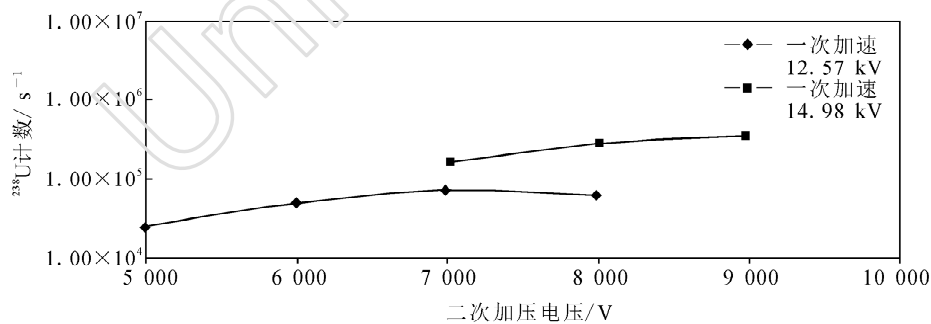


图 1 一次/二次高压对 ^{238}U 的计数的影响

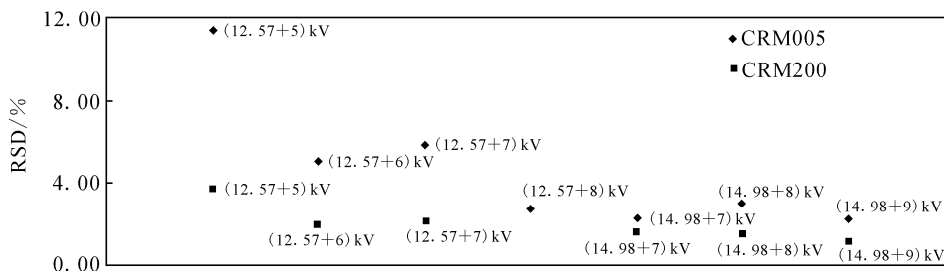


图 2 一次/二次高压对测量结果 RSD 的影响

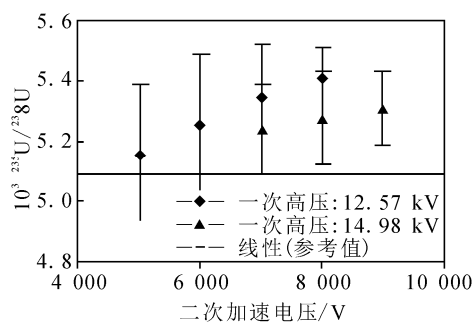


图3 一次/二次高压对 CRM005 测量结果的影响

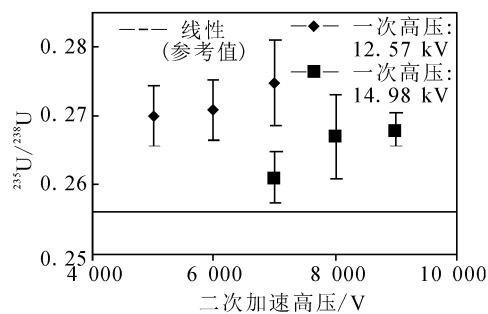


图4 一次/二次高压对 CRM200 测量结果的影响

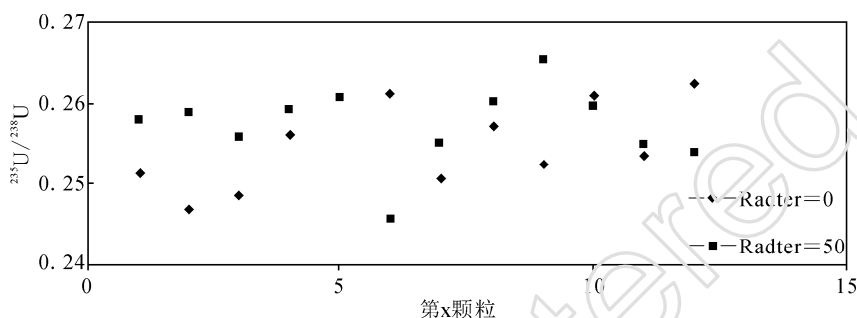


图5 扫描范围对测量结果的影响

可以看出,二次加速电压对 ^{238}U 的计数、测量精密度 (RSD)、测量结果有直接的影响,随着二次加速电压的增加, ^{238}U 的计数增加,测量精密度变好, $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 的测量结果越偏离真实值。

当扫描范围 raster=50 μm 时, CRM200 的测量结果比 raster=0 μm 时要大。

3 结论

改变 L4、CA、IF 等参数,可以明显改善灵敏度;调节一次束与二次束的加速电压,可以改善铀主同位素丰度比测量的准确度以及精密度;为了进一步提高测量结果的准确性,关于仪器的其他参数需要深入研究。

参考文献:

- [1] TAMBORINI G, BETTI M, FORCINA V, et al. Application of secondary ion mass spectrometry to the identification of single particle of uranium and their isotopic measurement[J]. Spectrochimica Acta Part B, 1998, 53(9): 1 289-1 302.
- [2] PIKSAIKIN V M, PSHAKIN G M, ROSHCENKO V A. Review of methods and instruments for determining undeclared nuclear materials and activities[J]. Science and global security, 2006, 14(1): 49-72.
- [3] ESAKA F, WATANABE K, FUKUYAMA H, et al. Efficient isotope ratio analysis of uranium particles in swipe samples by total-reflection X-ray fluorescence spectrometry and secondary ion mass spectrometry[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2004, 41(11): 1 027-1 032.