

文章编号: 0254-5357(2015)04-0414-06

DOI: 10.15898/j.cnki.11-2131/td.2015.04.006

# 戊基磷酸二戊酯萃取色层分离-电感耦合等离子体质谱法测定铀产品中 9 种杂质元素

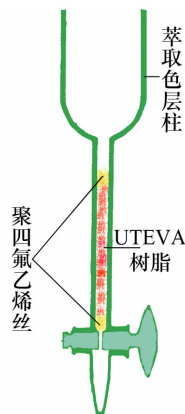
朱留超, 王同兴, 赵永刚\*, 徐常昆, 赵立飞, 姜小燕, 赵兴红  
(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

**摘要:** 铀产品中杂质元素的含量测定在核法证学溯源分析或燃料元件厂质量检验中具有重要应用价值, 保证测量的准确度主要在于控制流程空白、提高杂质元素的回收率。本文建立了戊基磷酸二戊酯(UTEVA)树脂快速分离铀与杂质元素、电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)测定杂质元素含量的系统流程。结果表明, UTEVA 树脂对铀的吸附能力强, 铀样品取样量为 16.43 mg 时, 全流程对铀的去污因子大于  $3 \times 10^5$ , 9 种杂质元素(锰钼镍铜铬铝钆钷)的回收率为 95.1% ~ 105.1%, 国家标准物质 GBW04205 中杂质元素的分析结果与参考值在不确定度( $k=2$ )范围内一致。本工作建立的分离流程对铀的去污效果好, 特别适用于样品量少的情况下铀中杂质元素的分析, 为核法证分析最终的归因溯源或燃料质量检验提供了技术支持。

**关键词:** 铀产品; 杂质元素; 去污因子; 戊基磷酸二戊酯(UTEVA)树脂萃取色层分离; 电感耦合等离子体质谱法

**中图分类号:** O657.63; O614.62

**文献标识码:** A



核法证学产生于上世纪九十年代, 主要是运用各种分析技术对截获的非法贩卖的核材料或放射性物质进行分析, 并为侦测和阻止涉核犯罪提供线索和证据<sup>[1-3]</sup>。这门综合性学科的关注点与核燃料循环的每个环节密切相关, 铀作为核武器的主要原料, 是核法证学研究的主要对象之一。铀在反应堆中使用时, 对其中杂质元素含量有严格的要求, 一般应小于  $5 \mu\text{g/g}$ ; 同时, 由于不同厂家生产的铀产品中杂质元素的含量各不相同, 核法证分析者可以利用这一特点, 结合形态分析、同位素分析<sup>[4-6]</sup>、化学成分分析、年龄分析<sup>[7]</sup>等信息进行核材料的归因分析, 追溯可疑样品的来源。铀中杂质元素含量携带铀冶炼和转化工艺的信息, 已成为核法证溯源中的重要依据, 准确测定杂质元素的含量则是核法证分析实验室的主要考核指标。

对于铀中杂质元素的分析, 需预先将铀与杂质元素分离, 目前国内外大多采用萃取色层法, 这种方法步骤简便、分离速度快, 已有学者使用 TBP、阳离

子交换树脂<sup>[8-9]</sup>分离铀基体中的稀土元素及其他微量杂质元素, 但分析时铀样品取样量较大(300 mg ~ 1 g), 铀残留量为微克量级, 可能会对杂质元素测量产生干扰, 同时未见对流程去污因子的描述。戊基磷酸二戊酯(UTEVA)树脂是近年研制的一种分离树脂, 因其性能可靠、分离效果好、流程本底低而越来越多地被用于样品中铀、钆、钷的分离<sup>[10-12]</sup>, 国外 Quemet 等<sup>[13]</sup>利用 UTEVA 树脂对铀中杂质元素进行了分离测定, 但在我国尚未见报道。在利用 UTEVA 分离铀基体时, 一般采取纯化试剂、减少流程环节等步骤控制流程空白。在测量方法方面, 由于铀产品中杂质元素含量大多在微克量级, 目前常用电感耦合等离子体发射光谱法(ICP-OES)和电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)<sup>[14-15]</sup>进行测定, 由于铀的谱线复杂, 对杂质元素的测量产生谱线干扰, 更多的是应用 ICP-MS 法进行分析。

2013 年 12 月, 核法证学技术专家组首次组织了我国 5 个具有核法证分析能力的实验室开展铀中

收稿日期: 2015-04-24; 修回日期: 2015-06-20; 接受日期: 2015-07-03

作者简介: 朱留超, 助理研究员, 从事核保障技术研究。E-mail: zhuliuchao@sohu.com。

通讯作者: 赵永刚, 研究员, 从事核材料分析及保障技术研究。E-mail: zhaoyg@ciae.ac.cn。

杂质分析比对项目,以提高我国核法证学技术能力,该项目是以燃料生产厂家关注的 Al、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Mo、Cd 共 9 种杂质元素为研究对象,进行铀中杂质元素的测量方法研究。本课题组参加了这次比对工作,建立了采用 UTEVA 树脂分离、ICP-MS 测量铀中杂质含量的系统流程,该成果不但为核法证溯源提供了技术手段,同时也为燃料元件厂质量分析提供了方法。

## 1 实验部分

### 1.1 仪器和主要试剂

NexION 300Q 电感耦合等离子体质谱仪

表 1 实验所用试剂

Table 1 Reagents and materials used in the experiment

试剂	规格和性质	生产单位
UTEVA 树脂	100 ~ 150 μm	法国 TRISKEM 公司
硝酸	BV-Ⅲ	北京化学试剂研究所
盐酸	优级纯	北京化学试剂研究所
<sup>233</sup> U 稀释剂 (IRMM-051)	稀释剂	欧共体核技术中心
铀同位素标准物质 (EC-NRM-199)	同位素标准物质	欧共体核技术中心
铀同位素标准物质 (CRM-030A)	同位素标准物质	美国 NBL 实验室
ICP-MS 用多元素混合标准溶液 (700-101-126)	ICP-MS 浓度标准	加拿大 SCP Science 公司
八氧化三铀中杂质元素标准物质 (GBW04205)	国家标准物质	核工业北京化工冶金研究院
铀比对样品	溶液,基体为 5% 硝酸	核法证学技术专家组分发

### 1.2 标准物质和测量样品

八氧化三铀中杂质元素标准物质 (GBW04205): 固体粉末,作为八氧化三铀中铀和杂质元素成分分析标准物质,在核工业领域已有广泛应用。其中铀的标称值为 84.711% ± 0.021%,杂质元素的标称值见表 2。

多元素混合标准溶液 (700-101-126): 无色液体,加拿大 SCP Science 公司产品,主要用于 ICP-AES 或 ICP-MS 测量过程中的校准,基体为 5% 硝酸,含有 Cu、Ni、Cr、Al、Ti、V 等 28 种杂质元素,浓度均为 100 μg/mL。

比对样品: 黄色溶液,基体为 3 mol/L 硝酸,由核法证学技术专家组分发,要求测量每克铀中杂质元素含量。其中 Cr、Mn、Ni、Mo 为必测元素,Al、Ti、V、Cu、Cd 为选测元素。

### 1.3 样品中铀浓度的测定

由于要测量每克铀中的杂质含量,因此在进行化学分离之前,采用同位素稀释质谱法<sup>[16]</sup> 对对比样品中铀的浓度进行了分析测定。首先利用重量法对样品进行逐级稀释,得到 20 mL 铀浓度大约为 200

(ICP-MS, 美国 PerkinElmer 公司)。  
Isoprobe 多接收电感耦合等离子体质谱仪 (MC-ICP-MS, 英国 GV 公司)。  
超纯水: 电阻率为 18.2 MΩ · cm, 由超纯水装置 (美国 Millipore 公司) 制备。  
电子天平 (型号 BP211D): 德国赛得利斯公司产品,最小分度精度为万分之一克。  
亚沸蒸馏器 (型号 DST-1000): 美国 Savillex 公司产品。  
实验所用试剂见表 1。为了降低流程空白及其对样品分析结果的影响,分离过程中使用的硝酸、盐酸在使用前进行了亚沸蒸馏处理。

ng/g 的溶液。利用上述溶液和<sup>233</sup>U 稀释剂 (IRMM-051) 配制混合溶液,通过测量稀释剂加入前后同位素比值的变化,计算出原始样品中铀的浓度。

质谱测量时采用静态多接收模式,使用法拉第杯接收<sup>235</sup>U、<sup>238</sup>U 的同位素信号,Daly 检测器接收<sup>234</sup>U、<sup>233</sup>U、<sup>236</sup>U 的同位素信号,使用同位素标准物质 CRM-030A、EC-NRM-199 对测量过程中的质量歧视进行线性校正<sup>[17-18]</sup>。

同位素稀释法计算公式如下:

$$c(^{238}\text{U}, \text{X}) = \frac{R(\text{Y}) - R(\text{B})}{R(\text{B}) - R(\text{X})} \times \frac{1}{R(\text{Y})} \times \frac{m(\text{Y})}{m(\text{X})} \times c(^{233}\text{U}, \text{Y})$$

(1)

式中:  $c(^{238}\text{U}, \text{X})$ —样品溶液中<sup>238</sup>U 的浓度;  
 $c(^{233}\text{U}, \text{Y})$ —稀释剂溶液中<sup>233</sup>U 的浓度; $R(\text{X})$ —待测样品中<sup>233</sup>U 与<sup>238</sup>U 的同位素比  $n(^{233}\text{U})/n(^{238}\text{U})$ ;  
 $R(\text{Y})$ —稀释剂中<sup>233</sup>U 与<sup>238</sup>U 的同位素比  $n(^{233}\text{U})/n(^{238}\text{U})$ ;  
 $R(\text{B})$ —混合样品中<sup>233</sup>U 与<sup>238</sup>U 的同位素比  $n(^{233}\text{U})/n(^{238}\text{U})$ ;  
 $m(\text{X})$ —待测样品的质量;  
 $m(\text{Y})$ —加入的稀释剂的质量。

1.4 分离方法

称取一定量的 UTEVA 树脂,用去离子水多次洗涤后浸泡 24 h 以上。用湿法将调好的树脂装入色层柱中,柱的上下两端用少量聚四氟乙烯丝填塞,柱内径 8 mm,床高 100 mm。用去离子水洗涤色层柱,然后用 20 mL 0.5 mol/L 硝酸洗柱,之后用去离子水将柱子洗至中性;用 10 mL 所需酸度的硝酸过柱,使之预平衡备用。对柱子进行洗涤及预平衡过程中,流速保持在 1 mL/min。将样品溶液上平衡好的色层柱,然后用 6 mL 3mol/L 硝酸洗涤色层柱,收集流出液,待测;然后使用 10 mL 3 mol/L 盐酸解吸钍,20 mL 超纯水解吸铀。使用同样的方法进行流程空白实验。

使用八氧化三铀中铀和杂质元素成分分析标准物质 GBW04205 来监测分离流程的回收率,样品使用硝酸溶解后进行分离测定。

1.5 方法不确定度的计算

不确定度的评定依据化学分析中不确定度的评定指南 CNAS – GL06。通过对整个测量过程进行分析,确定不确定度评定的分量为:铀浓度测定的不确定度( $U_{UC}$ )、杂质元素含量测定的不确定度( $U_{IC}$ )、流程回收率的不确定度( $U_R$ )。按照下式计算扩展标准不确定度  $U(k=1.96,95\%$  置信概率):

$$U=1.96\times\sqrt{U_{UC}^2+U_{IC}^2+U_R^2}\tag{2}$$

2 结果与讨论

2.1 UTEVA 树脂分离效果

2.1.1 分离流程对铀的去污因子

通过测量样品进行化学分离前后铀浓度的比值,计算得到分离流程对铀的去污因子,以评价全流程的分离效果。1 mL 铀样品溶液经过 UTEVA 树脂分离后,使用 ICP – MS 对分离后样品中铀的浓度进行了测定。分离前铀浓度为 16.43 mg/g,分离后铀浓度为 0.1 ng/g,即分离流程对铀的去污因子大于  $3.0\times10^5$ 。文献[14 – 15,19]中铀取样量为 300 mg ~ 1 g 时,分离后铀残留量大多为微量级;Quemet 等<sup>[13]</sup>铀取样量为 0.6 g 时,使用 UTEVA 树脂的全流程去污因子为  $3.0\times10^4$ 。从上述数据可以看出,本方法在铀取样量为 16.43 mg 时,经 UTEVA 分离后的铀残留量有了明显的降低,去污因子有了明显的提高。

为了降低仪器的本底,质谱测量时一般要求样品中的铀浓度小于 50 ng/mL。取 1 mL 的 16.43 mg/mL 铀样品分离,收集淋洗液 10 mL,则要求分离

流程去污因子大于  $3.3\times10^4$ 。分离后的样品溶液满足了质谱进样的要求,同时样品中铀对杂质元素的测量影响基本可以忽略不计。

2.1.2 分离流程空白及杂质元素的回收率

根据分离前后标准样品的取样量、分离后样品质量、稀释倍数及杂质元素的测量结果等数据,计算得到了全流程的回收率,全流程空白及回收率测量结果列于表 2。从表 2 可以看出,全流程空白中杂质元素的测量值与样品中杂质元素的含量之比值小于 5%,说明流程空白对杂质元素的测量结果影响较小。Mn、Mo、Ni、Cu、Cr 等 9 种杂质元素的平均回收率介于 95.1% ~ 105.1% 之间,测量结果在标准物质的置信限内,证明实验采用的分离流程能对铀中杂质元素进行有效的回收,与刘文誉等<sup>[8]</sup>使用 TBP 分离 29 种杂质的回收率(81.0% ~ 111.0%)相比,除了因为 Cd 含量低,其回收率波动稍大外,其余 8 种杂质元素的回收率较高、波动小。

表 2 全流程空白及流程回收率测量结果

Table 2 Measurement results of the process blank and the process recovery

测量元素	流程空白值(μg/g)	GBW04205 杂质标准物质分析结果						
		3 次测量值(μg/g)			中位值(μg/g)	置信限(μg/g)	平均回收率(%)	回收率相对标准偏差(%)
Mn	0.004	1.12	1.15	1.12	1.13	0.99 ~ 1.32	100.2	1.6
Mo	0.017	27.20	27.67	28.25	29.14	25.4 ~ 31.0	95.1	1.9
Ni	0.193	4.18	3.77	4.10	3.86	3.44 ~ 4.30	104.1	3.0
Cu	0.124	3.35	3.09	3.36	3.26	2.89 ~ 4.04	100.3	4.6
Cr	0.197	6.95	6.65	6.56	6.53	5.9 ~ 7.61	102.9	5.4
Al	0.115	16.38	17.53	16.54	16.0	14.4 ~ 20.9	105.1	3.6
Ti	0.016	7.39	7.80	7.51	7.67	6.31 ~ 9.82	98.6	2.7
V	0.001	1.44	1.42	1.49	1.50	1.12 ~ 2.02	96.7	2.6
Cd	0.001	0.026	0.025	0.031	0.026	0.00053 ~ 1.93	105.0	12.7

2.2 比对样品的分析

2.2.1 样品中铀浓度的测量

在比对样品分发、保存过程中,样品溶液会有少量的挥发。为了降低样品挥发对比对结果的影响,比对分析要求将杂质元素浓度归一到每克铀中含量,因此本工作利用同位素稀释质谱法测定了样品中铀的含量,根据稀释剂加入前后样品中铀的同位素比值测量结果,计算得到了原始样品溶液中铀的浓度。

首先,利用电子天平对原始样品分三步进行逐级稀释,稀释倍数分别为 90.53、50.49、20.18。上述稀释过程得到的溶液,质谱初步测量结果表明铀的浓度为几百 ng/mL,满足质谱进样分析的要求,利用多接

收器电感耦合等离子体质谱仪测量了<sup>233</sup>U 稀释剂加入后混合样品的<sup>238</sup>U/<sup>233</sup>U 比值,使用同位素标准物质 IRMM-199 对测量结果进行校正<sup>[20-21]</sup>。样品称量数据及同位素比值测量结果列于表 3。

利用前面的公式(1),计算得到样品中<sup>238</sup>U 的浓度为 177.7 ng/g(*n* = 3)。根据稀释倍数及同位素比值测量结果,计算得到原始样品溶液中铀的浓度为 0.01643 g/g。

表 3 同位素稀释法测量结果

Table 3 Measurement results by IDMS

测量项目	方法指标	平行样 1	平行样 2	平行样 3
稀释剂加入前 铀同位素比值	<sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U	5.448 × 10 <sup>-5</sup>	5.422 × 10 <sup>-5</sup>	5.450 × 10 <sup>-5</sup>
	<sup>235</sup> U/ <sup>238</sup> U	7.261 × 10 <sup>-3</sup>	7.258 × 10 <sup>-3</sup>	7.256 × 10 <sup>-3</sup>
	<sup>233</sup> U/ <sup>238</sup> U	<10 <sup>-7</sup>	<10 <sup>-7</sup>	<10 <sup>-7</sup>
	<sup>236</sup> U/ <sup>238</sup> U	<10 <sup>-7</sup>	<10 <sup>-7</sup>	<10 <sup>-7</sup>
同位素稀释法 测量数据	样品取样量(g)	0.8052	0.8077	0.8081
	<sup>233</sup> U 加入量(g)	0.2169	0.2224	0.2225
	稀释剂浓度(ng/g)	250.87	250.87	250.87
	混合样品的 <sup>238</sup> U/ <sup>233</sup> U 比值	2.585	2.525	2.526
	稀释剂的 <sup>238</sup> U/ <sup>233</sup> U 比值	8.042 × 10 <sup>-3</sup>	8.042 × 10 <sup>-3</sup>	8.042 × 10 <sup>-3</sup>

2.2.2 样品中杂质元素浓度的测量

比对样品经过 UTEVA 萃取色层分离,定容后利用 ICP-MS 进行了测量分析。质谱测量时采用标准曲线法(外标法),使用 ICP-MS 多元素混合杂质标准溶液,配制的系列标准溶液浓度(单位 ng/mL)分别为 0.1、0.5、1、5、10。在样品测量过程中,在线加入 10 ng/mL 的 In 溶液作为内标,以校正测量条件波动对分析结果的影响。利用 ICP-MS 测定了样品中 Al、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Mo、Cd 的含量,同时依据化学分析中不确定度的评定指南 CNAS-GL06 对整个测量过程进行不确定度评定。比对样品分析结果及其不确定度列于表 4。

表 4 比对样品中每克铀中杂质元素含量测量结果及其不确定度

Table 4 Measurement results of the impurities content in 1g uranium in control sample and its synthetic uncertainty

测量元素	UTEVA 萃取色层分离(μg/g 铀)	参考值(μg/g 铀)
Al	49.78 ± 8.31	47.36 ± 1.47
Ti	1.25 ± 0.36	1.34 ± 0.24
V	0.22 ± 0.05	0.26 ± 0.06
Cr	24.47 ± 4.16	26.78 ± 2.28
Mn	12.96 ± 2.05	13.45 ± 0.97
Ni	44.98 ± 9.18	43.79 ± 2.32
Cu	18.09 ± 2.71	18.21 ± 1.45
Mo	8.24 ± 1.24	8.37 ± 0.83
Cd	0.38 ± 0.08	0.37 ± 0.02

从表 4 可以看出,比对铀溶液中 9 种杂质元素的测量结果与参考值在不确定度范围内一致,证明采用的分析流程可以对杂质元素进行定量回收,质谱测量准确可靠。将本工作建立的方法与文献中报道的 TBP 萃取色层分离、离子交换分离方法<sup>[14-15,19]</sup>进行对比,可以看出,在铀取样量明显降低的情况下,分离流程对杂质元素的回收率并没有明显变化,全流程对铀的去污效果更好(文献中铀残留量为微克量级),说明 UTEVA 树脂对铀的吸附能力强,淋洗液能够将杂质元素从色层柱上淋洗下来。

3 结论

本工作针对铀中杂质元素含量测量的目标,以分析者、燃料生产厂家关注的 Al、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Mo、Cd 等 9 种杂质元素为研究对象,主要通过纯化试剂、简化分离流程控制流程本底的影响,建立了利用 UTEVA 萃取色层法快速分离铀与杂质元素,ICP-MS 测定铀中杂质元素含量的方法,有效检验了实验室测量铀中杂质元素的技术水平。当铀样品取样量为 16.43 mg,全流程对铀的去污因子大于 3.0 × 10<sup>5</sup>,主要杂质元素获得了高而稳定的回收率(95.1% ~ 105.1%)。本工作建立的分离流程对铀的去污效果好,可以用于铀样品尤其是样品量少的情况下铀中杂质元素的分析,为核材料溯源或燃料质量检验提供了一种技术手段。

4 参考文献

[1] Mayer K, Wallenius M, Ray I. Nuclear Forensics—A Methodology Providing Clues on the Origin of Illicitly Trafficked Nuclear Materials [J]. Analyst, 2005, 130: 433-441.

[2] Moody J, Hutcheon D, Grant M. Nuclear Forensic Analysis [M]. CRC Press, 2005: 338-353.

[3] Wallenius M, Mayer K, Ray I. Nuclear Forensic Investigations: Two Cases Studies [J]. Forensic Science International, 2006, 156(1): 55-62.

[4] Varga Z, Wallenius M, Mayer K, et al. Application of Lead and Strontium Isotope Ratio Measurements for the Origin Assessment of Uranium Ore Concentrates [J]. Analytical Chemistry, 2009, 81(20): 8327-8334.

[5] Fahey A J, Ritchie N W M, Newbury D E, et al. The Use of Lead Isotopic Abundances in Trace Uranium Samples for Nuclear forensics Analysis [J]. Journal of Radioanal Nuclear Chemistry, 2010, 284: 575-581.

[6] Fayek M, Horita J, Ripley E M. The Oxygen Isotopic Composition of Uranium Minerals: A Review [J]. Ore

- Geology Reviews, 2011, 41: 1–21.
- [7] Wallenius M, Tamborini G, Koch L. The ‘Age’ of Plutonium Particles [J]. *Radiochimica Acta*, 2001, 89: 55–58.
- [8] 刘文誉, 曾绍伦. 萃取色层分离/ICP-AES 法测定钚氧化物中的杂质 [J]. *原子能科学技术*, 2004, 38 (5): 424–428.
- Liu W Y, Zeng S L. Determination of Impurities in (Gd,U)O<sub>2</sub> by Column Extraction Chromatography and ICP-AES Multi-component Spectral Fitting [J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2004, 38(5): 424–428.
- [9] Souza A L D, Cotrim M E B, Pires M A F. An Overview of Spectrometric Techniques and Sample Preparation for the Determination of Impurities in Uranium Nuclear Fuel Grade [J]. *Microchemical Journal*, 2013, 106: 194–201.
- [10] 伊小伟, 李冬梅, 党海军, 等. UTEVA 萃取色层分离超铀元素的性能研究 [J]. *核化学与放射化学*, 2010, 32 (1): 22–26.
- Yi X W, Li D M, Dang H J, et al. Separation of Transuranium Elements with UTEVA Extraction Chromatography [J]. *Nuclear and Radiochemistry*, 2010, 32(1): 22–26.
- [11] 苏玉兰, 金花, 应哲聪, 等. TEVA-UTEVA 萃取色层分离后处理铀产品中镅的方法研究 [J]. *原子能科学技术*, 2014, 48(5): 786–791.
- Su Y L, Jin H, Ying Z C, et al. Separation Method of Neptunium from Reprocessed Uranium by TEVA-UTEVA Extraction Chromatography Column [J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2014, 48 (5): 786–791.
- [12] 邓惟勤, 谈树苹, 陶苗苗, 等. H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 调价 UTEVA 树脂对铀的分离方法 [J]. *核化学与放射化学*, 2014, 36 (6): 334–339.
- Deng W Q, Tan S P, Tao M M, et al. Chemical Treatment of Plutonium with Hydrogen Peroxide before UTEVA Separation Procedure [J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2014, 36(6): 334–339.
- [13] Quemet A, Brennetot R, Chevalier E, et al. Analysis of Twenty Five Impurities in Uranium Matrix by ICP-MS with Iron Measurement Optimized by Using Reaction Collision Cell, Cold Plasma or Medium Resolution [J]. *Talanta*, 2012(99): 207–212.
- [14] 杜桂荣, 牛洁, 刘扬, 等. ICP-OES 法测定八氧化三铀中杂质元素钨 [J]. *化学分析计量*, 2014, 23(1): 42–44.
- Du G R, Niu J, Liu Y. Determination of Tungsten in U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> by ICP-OES [J]. *Chemical Analysis and Meterage*, 2014, 23(1): 42–44.
- [15] 苏玉兰, 刘峻岭, 赵立飞, 等. 阳离子交换分离 ICP/MS 测定 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 中的微量稀土元素 [J]. *质谱学报*, 2003, 24(3): 421–424.
- Su Y L, Liu J L, Zhao L F, et al. Determination of Trace Rare Earth Elements in U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> by ICP-MS after Cationic Exchange Separation [J]. *Journal of Chinese Mass Spectrometry Society*, 2003, 24(3): 421–424.
- [16] 李思林, 赵墨田, 苏树新. 质谱同位素稀释法测量电镀标准铀靶残液中微量铀 [J]. *原子能科学技术*, 1987, 21(1): 97–99.
- Li S L, Zhao M T, Su S X. Determination of Trace Uranium in Residual Solution of Electroplating Standard Uranium Target by Mass Spectrometry Isotope Dilution [J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 1987, 21 (1): 97–99.
- [17] 李金英, 刘峻岭, 赵立飞, 等. 等离子体质谱法测量铀同位素丰度方法研究 [J]. *质谱学报*, 1999, 20(3, 4): 133–134.
- Li J Y, Liu J L, Zhao L F, et al. Determination of Uranium Isotope Ratio by ICP-MS [J]. *Journal of Chinese Mass Spectrometry Society*, 1999, 20(3, 4): 133–134.
- [18] 张继龙, 王林博, 张小枝, 等. 土壤样品的微波消解及其痕量铀的分析 [J]. *核化学与放射化学*, 2003, 25 (4): 223–227.
- Zhang J L, Wang L B, Zhang X Z, et al. Determination of Trace Uranium in Five Soil Samples Digested by Microwave [J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2003, 25(4): 223–227.
- [19] 关景素, 符廷发, 高炳华, 等. 阳离子交换分离-水平式 ICP-AES 法测定 UF<sub>6</sub> 或 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 中 ppb 数量级 Gd、Sm、Dy、Eu [J]. *分析化学*, 1986, 14(5): 372–374.
- Guan J S, Fu T F, Gao B H, et al. Determination of ppb Level Gd, Sm, Dy and Eu in UF<sub>6</sub> or U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> by Cation Ionexchange Separation-Horizontal ICP-AES Method [J]. *Chinese Journal of Analytical Chemistry*, 1986, 14 (5): 372–374.
- [20] 王小平, 张继龙. 基层分离-MC-ICP-MS 测定树皮表层 <sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U 同位素比率 [J]. *光谱学与光谱分析*, 2007, 27(7): 1428–1432.
- Wang X P, Zhang J L. Determination of <sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U Isotope Ratios in Camphor Tree Bark Samples by MC-ICP-MS after Separation of Uranium from Matrix Elements [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2007, 27(7): 1428–1432.
- [21] 郝樊华, 刘雪梅, 胡思得, 等. 热表面电离质谱法测定贫化铀样品痕量铀同位素比值及含量 [J]. *岩矿测试*, 2010, 29(4): 373–376.
- Hao F H, Liu X M, Hu S D, et al. Determination of Isotope Ratios and Concentration of Trace Uranium in Depleted Uranium Samples by Thermal Ionization Mass Spectrometry [J]. *Rock and Mineral Analysis*, 2010, 29 (4): 373–376.

# Determination of Nine Impurities in Uranium Products by Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry after UTEVA Extraction Chromatographic Separation

ZHU Liu-chao, WANG Tong-xing, ZHAO Yong-gang\*, XU Chang-kun, ZHAO Li-fei, JIANG Xiao-yan, ZHAO Xing-hong  
(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

**Abstract:** Determination of impurity elements in uranium products is very valuable in nuclear forensics tracing and quality control of fuel cartridges. The accuracy of determination is controlled by procedure blank and the recovery of impurity elements. In this study, a method for rapid separation of uranium from impurity elements by UTEVA resin and determination of impurity elements by Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (ICP-MS) was developed. Results show that UTEVA resin has a strong absorption of uranium. When the sample weight is 16.43 mg, decontamination factor for uranium in the whole procedure is greater than  $3 \times 10^5$ , the recoveries of nine impurity elements range from 95.1% to 105.1%. The contents of impurity elements in national standard material, GBW04205, are consistent with the reference values within the uncertainty ( $k=2$ ). The proposed method has good decontamination ability for uranium and is suitable for analyzing impurity elements in low weight uranium samples. This method provides technical support for nuclear forensics tracing and quality control of fuel cartridges.

**Key words:** uranium products; impurities; decontamination factor; UTEVA extraction chromatography; Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry

## 第十一届全国 X 射线光谱学术报告会通知

为促进我国 X 射线光谱分析学术交流,展示国内在该领域研究和应用的最新进展,推动现代分析测试技术的发展。中国地质学会岩矿测试技术专业委员会定于 2015 年 9 月 17 日~18 日在山东威海举办“第十一届全国 X 射线光谱学术报告会”。会议由岩矿测试技术专业委员会、国家地质实验测试中心承办。

大会已邀请国际《X-Ray Spectrometry》主编 R. Grieken 教授、国际原子能署 C. Strelī 博士、瑞典哥德堡大学 J. Boman 教授、葡萄牙新里斯本大学 M. L. Carvalho 教授等七名外籍专家及我国 X 射线光谱分析知名学者就(同步辐射)X 射线光谱分析中的理论与方法及其在地质、环境、大气飘尘、蛋白质组学、元素形态、文物鉴定、刑侦、三维成像等领域中的应用作专题报告。热忱欢迎从事(同步辐射)X 射线光谱分析及相关领域工作的人员踊跃投稿和积极参加会议,及时提交会议摘要和报告题目(截稿日期 8 月 20 日)。

一、会议地点:威海蓝天宾馆山东威海市环海路 1 号。

二、会议安排:9 月 16 日(下午):威海蓝天宾馆 2 号楼报到;17 日(全天):大会报告;18 日(上午):分会报告;18 日(下午):结束,代表可返程。

三、论文要求:X 射线光谱学术报告会摘要(1500 字以内)。

四、会议回执:请参会代表登录国家地质实验测试中心网站(<http://nrcga.cags.ac.cn/>中"通知公告")填写参会回执,并于 8 月 20 日前发送邮件至会务组,以便预定住房,否则无法保证住宿与价格(会议价)。

五、联系方式:吴晓军 13661340640 唐力君 13671154865  
座机:010-68999770 邮箱:xrs\_chn2007@sina.com