

ISSN 0253-9950
CN 11-2045/TL

HEHUAXUE YU FANGSHEHUAXUE

JOURNAL OF NUCLEAR AND RADIOCHEMISTRY

2005 4

(第 27 卷)

(卷终)

中国核学会核化学与放射化学分会	主办
中国原子能科学研究院	承办
原子能出版社	出版

核化学与放射化学

JOURNAL OF NUCLEAR AND RADIOCHEMISTRY

Vol. 27 No. 4

193~256

2005-11

核化学与放射化学

HEHUAXUE YU FANGSHEHUAXUE

第 27 卷(卷终) 第 4 期

2005 年 11 月

研究报告

- Pu 在铁及铁氧化物上的吸附行为研究 章英杰, 范显华, 苏锡光, 等(193)
- 因子分析技术在铀与 CO, O₂ 反应俄歇分析中的运用 杨江荣, 蒋春丽, 陆 雷, 等(198)
- 从高放废液中分离⁷⁹Se 的流程研究 任同祥, 张生栋, 郭景儒, 等(203)
- 包气带土壤对 Eu(III) 的吸附 刘期凤, 廖家莉, 张 东, 等(210)
- ¹³²I 半衰期的测量 毛国淑, 张生栋, 杨 磊, 等(216)
- 二(2,4,4 三甲基戊基)-二硫代磷酸萃取分离 Am 和 Cm 的研究 梁俊福, 李 旗(220)
- 2,2',2''-三[2-(*N*-羟甲基甲酰基)苯氧基]三乙胺及其稀土配合物的合成与表征 晏太红, 谭民裕(225)
- 铊-氟反应特性研究 II. 动力学特性 黄 刚, 曹小华, 龙兴贵, 等(229)
- β -淀粉样蛋白斑块显像剂¹³¹I-IMPY 的合成与生物分布 陆春雄, 吴春英, 蒋泉福(232)
- 北京城区大气中有机溴污染物的分析 田 青, 徐殿斗, 柴之芳, 等(236)

研究简报

- 用碳纳米管从硝酸溶液中回收镭 王兴海, 李辰砂, 陈 靖(239)
- ¹¹³In^m-*p*-SCN-Bz-DTPA-c-myc 反义核酸的合成及其抑制血管平滑肌细胞增殖 陆巍巍, 金小海, 张锦荣, 等(242)
- 微波加热法合成 *O*-(2-[¹⁸F]氟乙基)-*L*-酪氨酸 王明伟, 尹端沚, 郑明强, 等(248)
- 会议简报 (209)
- 专利介绍 (215, 219)

[期刊基本参数] CN 11—2045/TL * 1979 * q * 16 * 64 * zh * P * ¥8.00 * 800 * 13 * 2005-11

《核化学与放射化学》编辑委员会

顾 问 王方定 刘元方 刘伯里 朱永贻 张焕乔 沈文庆 傅依备

主 编 王祥云

副 主 编 柴之芳 顾忠茂

委 员 (以姓氏笔划为序)

于俊峰 王 驹 王旭辉 王荣福 王家驹 王祥云 包伯荣 叶国安 田嘉禾
刘 宁 刘春立 朱 霖 余耀仙 吴王锁 吴继宗 宋崇立 张生栋 张先业
张红庆 张利兴 李文焱 李文新 李金英 杜 进 杨书录 杨维凡 汪小琳
陈 靖 陈文浚 陈绍亮 周祖铭 林灿生 罗志福 罗顺忠 范 我 赵宇亮
党淑琴 唐志刚 柴之芳 秦 芝 郭景儒 陶祖贻 顾忠茂 章英杰 焦荣洲
魏根栓

编 辑 余耀仙 陈春雪

Research Reports

- Sorption Behavior of Pu on Fe, FeO, Fe₂O₃, and Fe₃O₄
 ZHANG Ying-jie, FAN Xian-hua, SU Xi-guang, et al(193)
- Application of Factor Analysis to AES Studies of Uranium Oxidation by CO and O₂
 YANG Jiang-rong, JIANG Chun-li, LU Lei, et al(198)
- Radiochemical Separating Procedure of ⁷⁹Se From HLLW
 REN Tong-xiang, ZHANG Sheng-dong, GUO Jing-ru, et al(203)
- Adsorption of Eu(III) on Aerated Zone Soil LIU Qi-feng, LIAO Jia-li, ZHANG Dong, et al(210)
- Measurement of Half-life of ¹³²I MAO Guo-shu, ZHANG Sheng-dong, YANG Lei, et al(216)
- Extraction and Separation Study of Am and Cm by Cyanex 301 Extractant LIANG Jun-fu, LI Qi(220)
- Synthesis and Characterization of Lanthanide Complexes With 2,2',2''-Nitrilotris[(2-N-hydroxymethylformyl)phenoxy]triethylamine YAN Tai-hong, TAN Min-yu(225)
- Research on the Characteristics of Titanium-Tritium Reaction II. Characteristics of Kinetics
 HUANG Gang, CAO Xiao-hua, LONG Xing-gui, et al(229)
- Synthesis and Biodistribution of β Amyloid Plaques Imaging Agent ¹³¹I-IMPY
 LU Chun-xiong, WU Chun-ying, JIANG Quan-fu(232)
- Analysis on the Organic Bromine in the Atmosphere in Beijing
 TIAN Qing, XU Dian-dou, CHAI Zhi-fang, et al(236)

Research Notes

- Removal of Am From HNO₃ Solution With Carbon Nanotubes WANG Xing-hai, LI Chen-sha, CHEN Jing(239)
- Synthesis of ¹¹³In^m-*p*-SCN-Bz-DTPA-c-myc Antisense Oligonucleotides and Investigation of its Inhibition Effects on the Proliferation of Vascular Smooth Muscle Cells LU Wei-wei, JIN Xiao-hai, ZHANG Jin-rong, et al(242)
- Radiosynthesis of *O*-(2-[¹⁸F] fluoroethyl)-*L*-tyrosine by Microwave Heating
 WANG Ming-wei, YIN Duan-zhi, ZHENG Ming-qiang, et al(248)

致 谢

在广大作者、读者的关心下,在审稿人的严格把关和编辑、排版、印刷人员的通力合作下,2005年《核化学与放射化学》已顺利完成刊出任务。在此,编辑部全体人员对各位的支持致以衷心的感谢!现将2005年审稿专家的名单公布如下(以姓氏笔画为序):

王 驹 王荣福 王祥云 田伟之 田嘉禾 包伯荣 许启初
叶玉星 朱 霖 朱凤蓉 李洪玉 李先杰 李文焱 李学良
李祯堂 李金龙 沈浪涛 阮於珍 苏锡光 陈云东 陈绍亮
陈文浚 陈 凌 宋崇立 汪勇先 沙连茂 何 辉 范 我
张华北 林灿生 姜 山 郑成法 胡 骥 陶祖贻 顾忠茂
党淑琴 高宏成 唐刚华 唐志刚 崔安智 崔玉国 梁俊福
谢建伦 褚泰伟 魏根栓

核化学与放射化学

(季刊 1979年创刊)

第27卷第4期(总第105期)2005年11月

JOURNAL OF NUCLEAR AND RADIOCHEMISTRY

(Quarterly Started in 1979)

Vol. 27 No. 4 Nov. 2005

主办:中国核学会核化学与放射化学分会

承办:中国原子能科学研究院

编辑:《核化学与放射化学》编辑部

中国原子能科学研究院,北京275信箱

65分箱,邮政编码:102413

电话:(010)69358025

E-mail:hhx@iris.ciae.ac.cn

主编:王祥云

出版:原子能出版社

印刷:保定市印刷厂

国内发行:北京市报刊发行局

国内订购:全国各地邮局

邮发代号:82-162

国外发行与订购:中国国际图书贸易公司

(北京市399信箱,邮政编码:100044)

邮发代号:Q 200

Sponsored by: Society of Nuclear and Radiochemistry

Undertaken by: China Institute of Atomic Energy

Edited by: Editorial Board of Journal of Nuclear and Radiochemistry

China Institute of Atomic Energy

P. O. Box 275(65), Beijing 102413, China

Tel: (010)69358025

E-mail:hhx@iris.ciae.ac.cn

Editor-in-Chief: WANG Xiang-yun

Published by: Atomic Energy Press

Printed by: Printing House of Baoding City

Distributed by: Beijing Bureau for Distribution of Newspaper and Journals

Subscription Handled by: Local Post Offices of China

Postal Issue No. 82-162

Distributed Abroad by: China International Book Trading Corporation

(P. O. Box 399, Beijing 100044, China)

Postal Issue No. Q 200

刊号:ISSN 0253-9950
CN 11-2045/TL

2005年11月20日出版(公开发行)

定价:每期8.00元,全年32.00元

核化学与放射化学

2005年(第27卷)总目次

第1期

过氧化氢湿法氧化模拟有机污物的研究	刘丽君,汤宝龙(1)
二元比例-X射线荧光光谱法测定模拟MOX燃料中U和Ce含量	宋游,郑维明,刘桂娇,等(7)
从裂变产物中提取 ¹³⁵ Cs的研究	钱丽娟,张生栋,郭景儒,等(11)
用预辐射接枝技术制备复合型离子交换纤维	白立峰,齐鲁(15)
N,N,N',N'-四丁基-3-氧-戊二酰胺辐解产物研究I. 二丁胺的定性和定量分析	张晓岚,包伯荣,杨燕琴,等(19)
氦对不饱和和氧化铀吸气行为的影响	蔚勇军,石岩,常元庆(24)
石墨涂层对铀抗蚀性能的影响研究	张广丰,汪小琳,杨维才,等(27)
毛细管法测定 ⁹⁹ Tc在压实皂土中的吸附分配系数和表观扩散系数	章毛连,王祥科,陈磊(31)
对-二羟基硼酰苯丙氨酸的 ⁹⁹ Tc ^m 标记及其生物分布	肖艳,屠荆,唐凌天,等(35)
乏氧显像剂1-H-1-(3- ¹⁸ F-2-羟基丙基)-2-硝基咪唑的自动化合成	唐刚华,王明芳,罗磊,等(43)
Sm-EDTMP稳定常数的测定及其在血浆模型中的平衡组分	蒋树斌,陈晓军,罗顺忠,等(47)
⁹⁹ Tc ^m -N-HL91的制备及其生物分布	张剑英,朱霖,刘猛,等(52)
¹⁸⁸ Re-NEMMPTDD的制备及生物分布研究	王文进,罗顺忠,何佳恒,等(57)
灼烧温度对氦射气析出率的影响	庞荣华,董纯菡,刘晓辉(61)

第2期

中子活化分析在当代无机痕量分析计量学中的作用Ⅲ. NAA用于多元素取样行为的定量表征	田伟之,倪邦发,王平生,等(65)
碱性条件下Sn(II)还原TcO ₄ ⁻ 的动力学研究	刘德军,范显华,姚军(70)
¹³¹ I标记NGR聚乙二醇修饰物及其生物分布	杨顺龙,褚泰伟,刘新起,等(75)
⁹⁹ Tc ^m -MAG ₂ -Ade肿瘤显像剂的合成及其生物活性研究	赵云岭,张春丽,齐传民,等(82)
三羧基铼[¹⁸⁸ Re]的放射化学合成	夏姣云,汪勇先,于俊峰,等(87)
高浓铀年龄的测定	何周国,李安利,范显华,等(91)
硝酸介质中胛的氧化分解	常利,田保生,李卫民(96)
在Na ₂ CO ₃ 溶液中季铵盐萃取Zr机理的研究	刘丽君,汤宝龙,周慧,等(100)
毛细管法测定 ^{152,154} Eu(III)在压实皂土中的表观扩散系数和吸附分配系数	于少明,任安平,王祥科(104)
荧光衰减光谱法研究Eu(III)在氧化铝表面的化学形态	王祥科,郑善良(108)
放射性氦同位素取样装置的建立及其效率标定	王亚龙,张昌云,王旭辉,等(113)
仪器中子活化分析法测定金属钷中的稀土元素	李梅,刘国平,徐存礼,等(117)
N,N-二甲基-3-氧杂-戊酰胺酸与Np(IV),Pu(IV)配合物稳定常数的测定	黄念,王建晨,王海荣,等(120)
网状玻璃态碳对液态钠中铯的静态吸附研究	祁林坤,贾云腾(125)

第3期

镓-237放射性活度标准溶液的研制	林灿生,王孝荣,陈细林,等(129)
Pu在花岗岩中的吸附行为	章英杰,范显华,苏锡光,等(136)
低氧条件下浸出剂和温度对固化体浸出行为的影响	张华,罗上庚,姜耀中,等(144)
人造岩石固化模拟 ¹³⁷ Cs废物的研究	赵昱龙,李宝军,周慧,等(152)

$^{110}\text{Ag}^m$ 在大亚湾表层沉积物上的吸附和解吸	牟德海, 宋海青, 闫世平, 等(158)
裂变产物中 ^{138}Cs 的分离	丁有钱, 杨志红, 崔安智, 等(164)
铀-氟反应特性研究 I. 热力学特性	黄刚, 曹小华, 龙兴贵, 等(169)
全氟代低密度微孔聚苯乙烯泡沫的制备	罗炫, 张林, 杜凯, 等(173)
聚酰亚胺的抗 β 辐照性能研究	熊义富, 敬文勇, 邱志聪(178)
痕量镭在玻璃上的吸附	肖成建, 陈银亮, 付中华(181)
^{18}F 标记氟甲基胆碱的半自动合成及其生物分布	吴战宏, 王世真, 周前, 等(185)
[3,12- ^3H]原人参二醇的合成	吴久伟, 廖莎, 沈德存(190)

第 4 期

Pu 在铁及铁氧化物上的吸附行为研究	章英杰, 范显华, 苏锡光, 等(193)
因子分析技术在铀与 CO, O_2 反应俄歇分析中的运用	杨江荣, 蒋春丽, 陆雷, 等(198)
从高放废液中分离 ^{79}Se 的流程研究	任同祥, 张生栋, 郭景儒, 等(203)
包气带土壤对 $\text{Eu}(\text{III})$ 的吸附	刘期凤, 廖家莉, 张东, 等(210)
^{132}I 半衰期的测量	毛国淑, 张生栋, 杨磊, 等(216)
二(2,4,4 三甲基戊基)-二硫代磷酸萃取分离 Am 和 Cm 的研究	梁俊福, 李旗(220)
2,2',2''-三[2-(<i>N</i> -羟甲基甲酰基)苯氧基]三乙胺及其稀土配合物的合成与表征	晏太红, 谭民裕(225)
铀-氟反应特性研究 II. 动力学特性	黄刚, 曹小华, 龙兴贵, 等(229)
β -淀粉样蛋白斑块显像剂 ^{131}I -IMPY 的合成与生物分布	陆春雄, 吴春英, 蒋泉福(232)
北京城区大气中有机溴污染物的分析	田青, 徐殿斗, 柴之芳, 等(236)
用碳纳米管从硝酸溶液中回收镭	王兴海, 李辰砂, 陈靖(239)
$^{113}\text{In}^m$ - <i>p</i> -SCN-Bz-DTPA-c-myc 反义核酸的合成及其抑制血管平滑肌细胞增殖	陆巍巍, 金小海, 张锦荣, 等(242)
微波加热法合成 <i>O</i> -(2-[^{18}F]氟乙基)- <i>L</i> -酪氨酸	王明伟, 尹端訢, 郑明强, 等(248)

Journal of Nuclear and Radiochemistry

CONTENTS

2005 Vol. 27

No. 1

- Wet Oxidation of Spent TBP/OK and Interphase Crud by H_2O_2 LIU Li-jun, TANG Bao-long(1)
- Determination of U and Ce in Simulative Mixed Oxide Fuel Samples by Binary Ratio and X-Ray Fluorescence Spectrometry SONG You, ZHENG Wei-ming, LIU Gui-jiao, et al(7)
- Separation of Carrier-free ^{135}Cs From Fission Products
..... QIAN Li-juan, ZHANG Sheng-dong, GUO Jing-ru, et al(11)
- Preparation of Composite Ion-exchange Fibers by Pre-irradiation Graft Technique BAI Li-feng, QI Lu(15)
- Study on Radiolysis Products of N, N, N', N'-tetrabutyl-3-oxa-pentanediamide I. Qualitative and Quantitative Analysis of Dibutylamine ZHANG Xiao-lan, BAO Bo-rong, YANG Yan-qin, et al(19)
- Influence of Helium on Deuterium Absorption by Unsaturated Uranium Deuteride
..... WEI Yong-jun, SHI Yan, CHANG Yuan-qing(24)
- Effect of Graphite Coating on the Corrosion Resistance of Uranium Surface
..... ZHANG Guang-feng, WANG Xiao-lin, YANG Wei-cai, et al(27)
- Determination of Distribution and Diffusion Coefficients of ^{99}Tc in Compacted Bentonite by Capillary Method
..... ZHANG Mao-lian, WANG Xiang-ke, CHEN Lei(31)
- Labelling of 4-Dihydroxyborylphenylalanine (BPA) With $^{99}Tc^m$ and Biodistribution of $^{99}Tc^m$ -DMG-BPA
..... XIAO Yan, TU Jing, TANG Ling-tian, et al(35)
- Automated Synthesis of ^{18}F -Labelled Fluoromisonidazole as Hypoxia Imaging Agent
..... TANG Gang-hua, WANG Ming-fang, LUO Lei, et al(43)
- Determination of the Stability Constants of Sm-EDTMP Complexes and Their Speciation in Plasma Model
..... JIANG Shu-bin, CHENG Xiao-jun, LUO Shun-zhong, et al(47)
- Synthesis and Biodistribution of $^{99}Tc^m$ -N-HL91 Complex ZHANG Jian-ying, ZHU Lin, LIU Meng, et al(52)
- Synthesis and Biodistribution of ^{188}Re -NEMPTDD WANG Wen-jin, LUO Shun-zhong, HE Jia-heng, et al(57)
- Effect of Heating Temperature on Emanation Coefficient of Rn
..... PANG Rong-hua, TONG Chun-han, LIU Xiao-hui(61)

No. 2

- Role of Neutron Activation Analysis in Metrology of Modern Inorganic Trace Analysis III. NAA in Characterization of Sampling Behavior for Multi-elements TIAN Wei-zhi, NI Bang-fa, WANG Ping-sheng, et al(65)
- Reduction Kinetics of TcO_4^- by $Sn(II)$ in Basic Medium LIU De-jun, FAN Xian-hua, YAO Jun(70)
- Radioiodination and Biodistribution of PEGylated NGR Peptides
..... YANG Shun-long, CHU Tai-wei, LIU Xin-qi, et al(75)
- Synthesis and Biodistribution of $^{99}Tc^m$ -MAG₂-Ade as A Tumor Imaging Agent
..... ZHAO Yun-ling, ZHANG Chun-li, QI Chuan-min, et al(82)
- Radiosynthesis of Tricarbonyl Rhenium [^{188}Re] XIA Jiao-yun, WANG Yong-xian, YU Jun-feng, et al(87)
- A Method for Determination of HEU Age HE Zhou-guo, LI An-li, FAN Xian-hua, et al(91)
- Oxidation Decomposition of Hydrazine in Nitric Acid CHANG Li, TIAN Bao-sheng, LI Wei-min(96)
- Extraction of Zr from Na_2CO_3 Solution by Quaternary Ammonium Salt
..... LIU Li-jun, TANG Bao-long, ZHOU Hui, et al(100)
- Effect of pH on the Apparent Diffusion Coefficient and Sorption Distribution Coefficient of $^{152,154}Eu(III)$ in Compacted Bentonite; A Study of Capillary Method YU Shao-ming, REN An-ping, WANG Xiang-ke(104)
- Speciation of $Eu(III)$ on $\gamma-Al_2O_3$; A Fluorescence Spectroscopy Study WANG Xiang-ke, ZHENG Shan-liang(108)
- Study on the Sampler for Radioxenon Isotopes and its Sampling Efficiency Calibration
..... WANG Ya-long, ZHANG Chang-yun, WANG Xu-hui, et al(113)
- Determination of Rare Earth Elements in Metal Yttrium by INAA LI Mei, LIU Guo-ping, XU Cun-li, et al(117)

Determination of Stability Constants for Np (IV) and Pu (IV) With N, N-dimethyl-3-oxa-glutaramic Acid HUANG Nian, WANG Jian-chen, WANG Hai-rong, et al(120)
Investigation of Static Adsorption of Cesium from Liquid Sodium by Reticulated Vitreous Carbon QI Lin-kun, JIA Yun-teng(125)

No. 3

Preparation of Neptunium-237 Radioactivity Reference Solution LIN Can-sheng, WANG Xiao-rong, CHEN Xi-lin, et al(129)
Sorption Behavior of Pu on Granite ZHANG Ying-jie, FAN Xian-hua, SU Xi-guang, et al(136)
Effect of Temperature and Leaching Agent on the leaching Behavior of HLW Glass Under Low Oxygen Conditions ZHANG Hua, LUO Shang-geng, JIANG Yao-zhong, et al(144)
Immobilization of Simulated Cesium-137 Waste in Synroc ZHAO Yu-long, LI Bao-jun, ZHOU Hui, et al(152)
¹¹⁰ Ag ^m Sorption and Desorption on Daya Bay Surface Sediment MOU De-hai, SONG Hai-qing, YAN Shi-ping, et al(158)
Separation of ¹³⁸ Cs From Fission Products DING You-qian, YANG Zhi-hong, CUI An-zhi, et al(164)
Investigation on the Characteristics of Titanium-tritium Reaction I. Characteristics of Thermodynamics HUANG Gang, CAO Xiao-hua, LONG Xing-gui, et al(169)
Fabrication of Low-density Porous Perdeuterated Polystyrene Foams LUO Xuan, ZHANG Lin, DU Kai, et al(173)
Study on the Resistance of Polyimide Towards β Irradiation XIONG Yi-fu, JING Wen-yong, Qiu Zhi-cong(178)
Adsorption of Trace Quantity ²⁴¹ Am on Glass XIAO Cheng-jian, CHEN Yin-liang, FU Zhong-hua(181)
Semi-automatic Synthesis and Biological Evaluation of ¹⁸ F-FCH as an Oncologic PET Tracer WU Zhan-hong, WANG Shi-zhen, ZHOU Qian, et al(185)
Synthesis of [³ ,12- ³ H] Protopanaxadiol WU Jiu-wei, LIAO Sha, SHEN De-cun(190)

No. 4

Sorption Behavior of Pu on Fe, FeO, Fe ₂ O ₃ , and Fe ₃ O ₄ ZHANG Ying-jie, FAN Xian-hua, SU Xi-guang, et al(193)
Application of Factor Analysis to AES Studies of Uranium Oxidation by CO and O ₂ YANG Jiang-rong, JIANG Chun-li, LU Lei, et al(198)
Radiochemical Separating Procedure of ⁷⁹ Se From HLLW REN Tong-xiang, ZHANG Sheng-dong, GUO Jing-ru, et al(203)
Adsorption of Eu(III) on Aerated Zone Soil LIU Qi-feng, LIAO Jia-li, ZHANG Dong, et al(210)
Measurement of Half-life of ¹³² I MAO Guo-shu, ZHANG Sheng-dong, YANG Lei, et al(216)
Extraction and Separation Study of Am and Cm by Cyanex 301 Extractant LIANG Jun-fu, LI Qi(220)
Synthesis and Characterization of Lanthanide Complexes With 2,2',2''-Nitrilotris[(2-N-hydroxymethylformyl)phenoxy]triethylamine YAN Tai-hong, TAN Min-yu(225)
Research on the Characteristics of Titanium-Tritium Reaction II. Characteristics of Kinetics HUANG Gang, CAO Xiao-hua, LONG Xing-gui, et al(229)
Synthesis and Biodistribution of β Amyloid Plaques Imaging Agent ¹³¹ I-IMPY LU Chun-xiong, WU Chun-ying, JIANG Quan-fu(232)
Analysis on the Organic Bromine in the Atmosphere in Beijing TIAN Qing, XU Dian-dou, CHAI Zhi-fang, et al(236)
Removal of Am From HNO ₃ Solution With Carbon Nanotubes WANG Xing-hai, LI Chen-sha, CHEN Jing(239)
Synthesis of ¹¹³ In ^m - <i>p</i> -SCN-Bz-DTPA-c-myc Antisense Oligonucleotides and Investigation of its Inhibition Effects on the Proliferation of Vascular Smooth Muscle Cells LU Wei-wei, JIN Xiao-hai, ZHANG Jin-rong, et al(242)
Radiosynthesis of <i>O</i> -(2-[¹⁸ F] fluoroethyl)- <i>L</i> -tyrosine by Microwave Heating WANG Ming-wei, YIN Duan-zhi, ZHENG Ming-qiang, et al(248)

文章编号:0253-9950(2005)04-0193-05

Pu 在铁及铁氧化物上的吸附行为研究

章英杰, 范显华, 苏锡光, 曾继述, 王 勇, 周 舵, 姚 军

中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413

摘要:为了解放射性核素在可能作为高放废物固化体包装容器材料及其腐蚀产物上的吸附行为,研究了包装容器材料的主要组分铁及铁的腐蚀产物 FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 对 Pu 的吸附行为,探讨了水相 pH 值(1.0~10.0), CO₃²⁻ 离子浓度(4.0 mmol/L~0.1 mol/L)等因素对吸附的影响。实验结果表明, Pu 在铁及其氧化物上的吸附能力随水相 pH 值增大而增大;实验环境中氧浓度变化对 Pu 在铁及其氧化物上的吸附影响较小; CO₃²⁻ 浓度增大不利于 Pu 的吸附。

关键词: Pu; 吸附; Fe; FeO; Fe₂O₃; Fe₃O₄

中图分类号: O647.3 文献标识码: A

高放废物处置库采用“多重屏障系统”设计,即把废物贮存在废物容器中,外包缓冲材料,再向外为围岩(花岗岩、粘土岩、凝灰岩、岩盐等)^[1,2]。一般把废物容器和缓冲材料称为工程屏障,把周围地质称为天然屏障。随着时间的推移,一旦处置库遭到天然或人为的作用,工程屏障层可能被破坏,废物容器及废物固化体受到地下水的浸蚀,最终导致废物体中的放射性核素进入地下水中,进而与废物容器材料及其腐蚀产物作用,并向远处迁移。因此,研究放射性核素在高放废物固化体包装容器材料及其腐蚀产物上的吸附是处置库安全及环境评价中不可缺少的内容。本工作主要研究可能作为高放废物固化体包装容器材料的主要组分铁及铁的腐蚀产物 FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 对 Pu 的吸附行为,探讨水相 pH 值、CO₃²⁻ 浓度等因素对吸附的影响。

1 实验部分

1.1 试剂及仪器

Fe, FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 为市售分析纯,粒度 ≤ 0.098 mm;重蒸水,由石英双重蒸馏器制备;模拟地下水,北山 1 号钻孔的花岗岩(深度:600~700 m),粉碎后平均粒度为 0.098 mm,按照 1:50(公斤/升)的比例与重蒸水在特制不锈钢容器中制备,容器内环境气氛为高纯氩气,压力为

2.5 MPa,浸泡时间为 3 a,主要化学成分见文献[3],使用前经截留分子量为 10 000 的膜过滤;BS03 钻孔地下水,北山 3 号钻孔地下水(约 435 m),用特制不锈钢压力容器运输及储存,容器内为 2.5 MPa 高纯氩气,主要化学成分见文献[3],使用前经截留分子量为 10 000 的膜过滤;²³⁸Pu 溶液,主要价态为 Pu(V),制备方法见文献[3]。其它试剂均为市售分析纯。

QUANTULUS1220 液闪谱仪,美国 PE 公司产品;RS-20 III 型高速离心机,日本 TOMY Seiko 公司产品;HI8424 型微电脑 pH/mV/℃ 计,意大利 HANNA 公司产品,附 HI230B 型 pH 电极,HI3131B 型 ORP 电极;低氧工作箱,自行研制,箱中含氧量低于 5×10⁻⁶ mol/mol。

1.2 实验方法

称取 0.3 g 铁粉或铁的氧化物,置于内壁经过二氯二甲基硅烷预处理的 10 mL 聚丙烯离心管中,加入 6.0 mL 模拟地下水或 BS03 地下水,然后加盖,放入振荡器中振荡 24 h 后取出向管中加入 20 μL 已知浓度的²³⁸Pu 溶液(离心管中²³⁸Pu 浓度为 0.25 nmol/L),密封离心管管口,再次放入振荡器中振荡,振荡一定时间后取出,经 18 000 r/min 离心 1 h,取离心管中上层清液 3.0 mL 于液闪仪专用测量瓶中,加入已配好的闪烁液 16 mL^[3],避光保存 24 h 后放入液闪谱仪中

收稿日期:2005-01-31; 修订日期:2005-05-23

作者简介:章英杰(1966—),男,陕西洋县人,副研究员,环境化学专业。

测量 α 计数,离心管中剩余溶液供测量 pH 值、Eh 及电导率用。

2 结果和讨论

2.1 吸附时间对 Pu 在铁及其氧化物上吸附的影响

以 BS03 地下水为水相,重蒸水和模拟地下水为参比,Fe 及 FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 等为固相,测

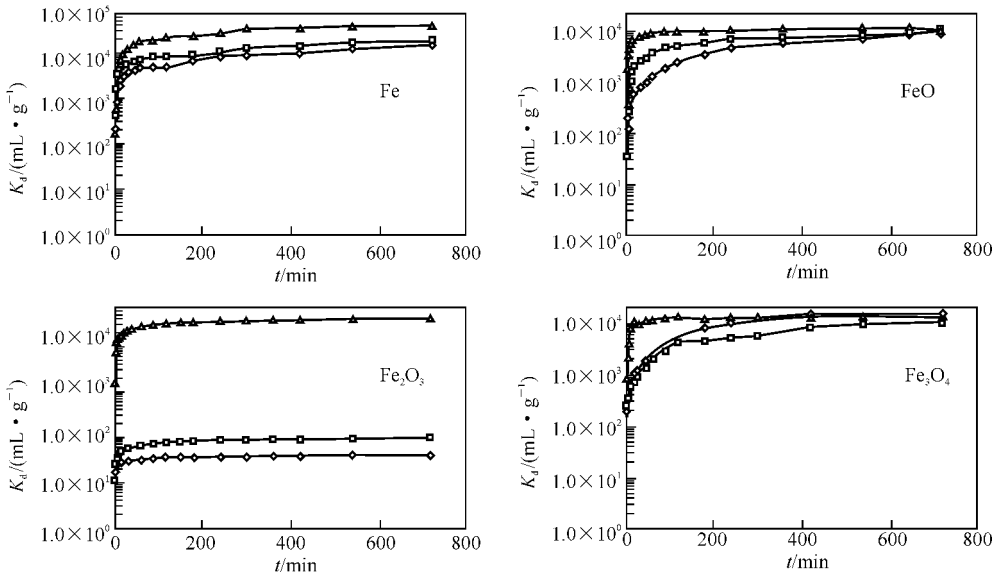


图 1 Pu 在 Fe 及 FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 上的吸附

Fig. 1 Sorption of Pu on the Fe, FeO, Fe₂O₃ and Fe₃O₄ powder

◇——重蒸水(Redistilled water), □——模拟地下水(Simulated groundwater)

△——BS03 地下水(BS03 Well underground water)

2.2 氧浓度对 Pu 在铁及其氧化物上吸附的影响

分别在大气和低氧条件下($\omega(\text{O}_2) \leq 5 \times 10^{-6}$ mol/mol),以 BS03 地下水为水相,重蒸水和模拟地下水为参比,对 Pu 在铁及 FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 等氧化物中的吸附分配比进行了测定,结果列入表 1 和表 2,同时在表 1 和表 2 中列出了吸附平衡后对应实验条件下水相的一些物化参数。比较表 1 和表 2 中数据可看出,实验环境中氧浓度变化对 Pu 在铁及 FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 上的吸附分配比影响较小;水相 pH 值变化对 Pu 的吸附分配比影响较大。

2.3 溶液 pH 值变化对 Pu 在铁及其氧化物上吸附的影响

BS03 地下水 pH 值变化分别对 Pu 在铁及 FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 等氧化物上吸附的影响示于图 2, 3。从图 2 可看出,分别以铁及 FeO,

得不同吸附时间对 Pu 的吸附分配比并示于图 1。从图 1 可看出,在 600 min 左右,吸附达到了平衡; Pu 在 Fe 及 FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 等氧化物上的吸附与水相性质有关,特别是 Pu 在 Fe₂O₃ 上的吸附尤为明显。与文献[3]表 1 中水相成分相比,BS03 地下水中 Fe²⁺ 浓度较高, PuO₂⁺ 被还原为四价,而在重蒸水中无 Fe²⁺ 存在,吸附量减小。本工作将吸附实验时间确定为 48 h。

Fe₂O₃, Fe₃O₄ 为固相,吸附平衡后水相 pH 值比吸附前有不同程度的升高,这可能是这些固相在吸附的同时也在不断的溶解,达到在水相中的稳定形态,消耗了水相中的 H⁺ 离子的缘故;而与 Fe₂O₃ 相接触的水相,在达到吸附平衡后水相 pH 值比吸附前有不同程度的降低,这可能是 Fe₂O₃ 与水接触后,形成了表面羟基,而表面羟基又电离出 H⁺,并与水相中的金属离子结合形成了表面配合物。

由图 3 看出, Pu 在铁及其氧化物上吸附平衡后,在相同 pH 条件下,吸附分配比由大到小的顺序为: $K_d(\text{Fe}_3\text{O}_4) > K_d(\text{Fe}_2\text{O}_3) > K_d(\text{FeO}) > K_d(\text{Fe})$ 。这可能与铁及其氧化产物的表面特征参数有关^[4]。

2.4 Pu 吸附后可能的价态

Pu 在铁及 FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 上吸附平衡后

表 1 大气条件下 Pu 在铁及其氧化物上的吸附

Table 1 Sorption of Pu on the Fe powder and its oxide compounds under atmospheric conditions

固相 (Solid)	水相 (Aqueous phase)	pH	Eh/mV	$\gamma/(\text{mS} \cdot \text{m}^{-1})$	$10^{-3}K_d/(\text{mL} \cdot \text{g}^{-1})$
Fe	重蒸水(Redistilled water)	10.23	-696	14.3	5.0
	模拟地下水(Simulated groundwater)	9.84	-650	17.4	59
	地下水(BS03 Well underground water)	9.01	-710	501.5	9.2
FeO	重蒸水(Redistilled water)	7.21	-344	11.3	1.2
	模拟地下水(Simulated groundwater)	9.12	-389	14.6	3.8
	地下水(BS03 Well underground water)	9.38	-582	494.9	4.0
Fe ₂ O ₃	重蒸水(Redistilled water)	4.05	352	41.3	0.03
	模拟地下水(Simulated groundwater)	4.25	343	31.7	0.13
	地下水(BS03 Well underground water)	7.98	31	501.6	10
Fe ₃ O ₄	重蒸水(Redistilled water)	7.52	199	20.3	5.9
	模拟地下水(Simulated groundwater)	7.73	112	25.9	34
	地下水(BS03 Well underground water)	8.19	43	493.9	10

表 2 低氧条件下 Pu 在铁及其氧化物上的吸附

Table 2 Sorption of Pu on the Fe powder and its oxide compounds under anoxic conditions

固相 (Solid)	水相 (Aqueous phase)	pH	Eh/mV	$\gamma/(\text{mS} \cdot \text{m}^{-1})$	$10^{-3}K_d/(\text{mL} \cdot \text{g}^{-1})$
Fe	重蒸水(Redistilled water)	10.35	-686	20.5	50
	模拟地下水(Simulated groundwater)	10.03	-685	20.9	36
	地下水(BS03 Well underground water)	9.08	-719	460.5	23
FeO	重蒸水(Redistilled water)	9.41	-456	13.3	50
	模拟地下水(Simulated groundwater)	9.30	-554	18.9	19
	地下水(BS03 Well underground water)	8.64	-630	460.5	22
Fe ₂ O ₃	重蒸水(Redistilled water)	4.17	347	33.7	0.05
	模拟地下水(Simulated groundwater)	5.44	164	27.4	1.4
	地下水(BS03 Well underground water)	8.12	51	467.9	29
Fe ₃ O ₄	重蒸水(Redistilled water)	7.55	102	21.7	22
	模拟地下水(Simulated groundwater)	7.92	84	24.1	42
	地下水(BS03 Well underground water)	8.41	54	467.9	19

水相的 pH-Eh 关系示于图 4。在图 4 相邻价态的平衡线计算过程中,假设相邻价态的浓度相等。从图 4 看出,吸附平衡后水相中 Pu 处于四价稳定区,即吸附平衡后水相中 Pu 以四价存在。

2.5 可能的吸附机理探讨

铁及铁的氧化物与水接触后,最终的氧化产物为无定型的 Fe₂O₃ 或其它三价铁的化合物,甚至以胶体形式存在。这些氧化产物有一个共同的

特点,即具有大的比表面,其表面的 Fe³⁺ 在溶液中被水分子包围,并与水发生反应,造成水分子的离解,并进而形成表面羟基官能团 $\text{FeOH}^{[5,6]}$ 。

由于 Pu(IV) 的强烈水解作用以及铁的氧化物等表面的亲水性,当水相 pH 值增大, H⁺ 可以从表面羟基电离,从而导致铁的氧化物整体带负电,与水相中存在 Pu(IV) 及其水解产物

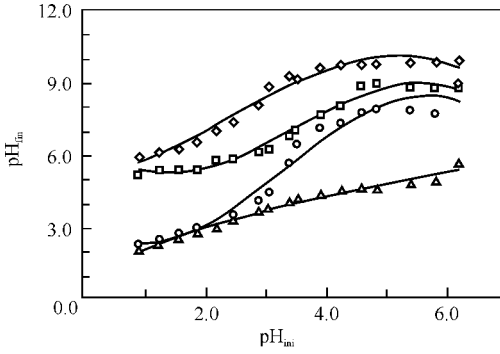


图 2 吸附前后水相 pH 变化

Fig. 2 Variation of the pH value of the aqueous phase before and after sorption

◇—Fe, □—FeO, △—Fe₂O₃, ○—Fe₃O₄

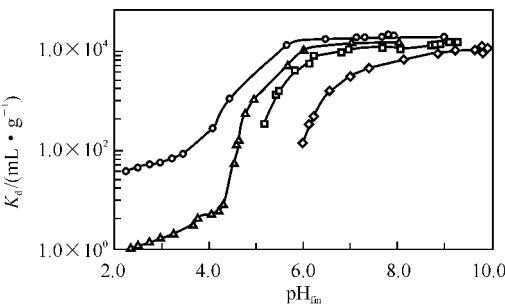


图 3 pH 变化对 Pu 吸附的影响

Fig. 3 Effect of the pH value of the aqueous phase on the sorption

◇—Fe, □—FeO, △—Fe₂O₃, ○—Fe₃O₄

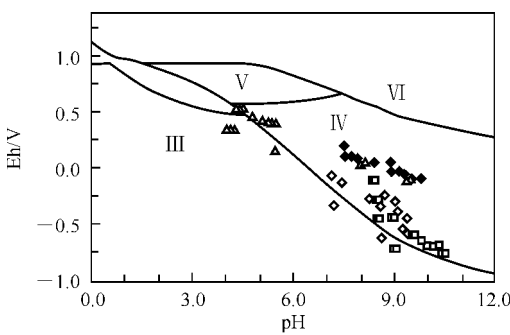
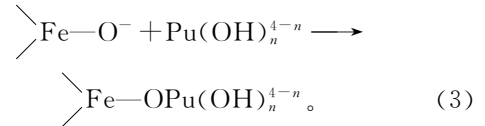
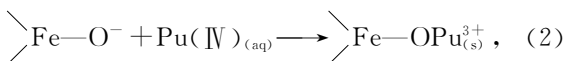
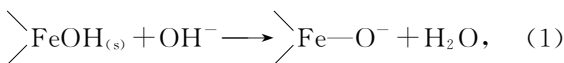


图 4 Pu 吸附后可能的存在价态

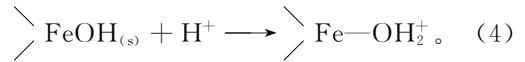
Fig. 4 Possible valence state of Pu after sorption

◇—Fe, □—FeO, △—Fe₂O₃, ◆—Fe₃O₄

Pu(OH)_n⁴⁻ⁿ (n=1~4) 等发生表面配合反应, 吸附到 Fe, FeO 等颗粒表面。可能的反应过程为:



当水相 pH 值减小, 在酸性溶液中, 这种表面羟基可接受溶液中的 H⁺, 或者羟基可以脱离铁的氧化物表面, 从而导致铁的氧化物表面带正电, 对溶液中存在的金属离子吸附能力减弱, 或不吸附。可能的反应过程为:



2.6 CO₃²⁻ 离子浓度变化对 Pu 吸附的影响

通过改变地下水中 CO₃²⁻ 浓度 (4.0 × 10⁻³ ~ 1.0 × 10⁻¹ mol/L), 其它实验条件不变, 测得的 Pu 在铁及铁氧化物中的吸附分配比分别示于图 5。从图 5 可看出, 随着水相中 CO₃²⁻ 浓度的增大, Pu 在铁及铁氧化物中的吸附分配比减小。

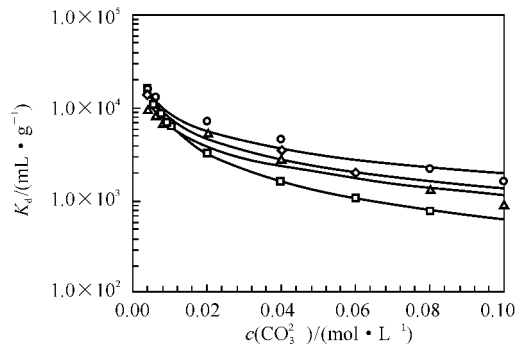


图 5 CO₃²⁻ 离子浓度变化对 Pu 吸附的影响

Fig. 5 Effect of CO₃²⁻ concentration on the sorption of Pu

◇—Fe, □—FeO, △—Fe₂O₃, ○—Fe₃O₄

因水相中 CO₃²⁻ 与 Pu(IV) 发生配合反应, 生成了 Pu(OH)₄(HCO₃)₂²⁻, Pu(OH)₂(CO₃)₂²⁻, Pu(OH)₄(CO₃)₂⁴⁻ 等配合物。这些配合物在水相中的浓度随水相中 CO₃²⁻ 浓度的增大而增大, 且形成的配合物离子与铁及铁的氧化物等形成的

>FeO⁻ 羟基官能团产生了“排斥”作用(负电荷排斥), 使 Pu 的吸附能力降低。

2.7 Pu 浓度对吸附的影响

改变 Pu 的初始浓度 (8.8 × 10⁻¹⁰ ~ 3.9 × 10⁻¹³ mol/L), 考察 Pu 在铁及铁的氧化物上的吸附影响并示于图 6, 水相为 BS03 地下水。从图 6 可看出, 吸附平衡后水相中 Pu 的浓度对数与对应固相中 Pu 的浓度对数呈线性关系, 即 Pu 在

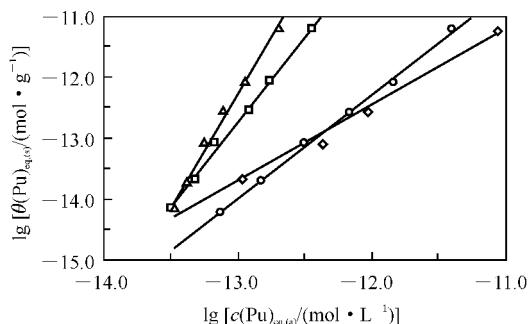


图 6 Pu 在吸附材料上的吸附等温线
Fig. 6 Sorption isotherms of Pu on Fe,
FeO, Fe₂O₃, and Fe₃O₄ powder
 $t = (30 \pm 1) ^\circ\text{C}$
◇—Fe, □—FeO, △—Fe₂O₃, ○—Fe₃O₄

Fe, FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 上的吸附行为均可用 Freundlich 吸附等温式描述^[7], 符合 $\theta = kc_{\text{eq}}^n$ 或 $\lg\theta = \lg k + n \lg c_{\text{eq}}$, 所得直线拟合参数列入表 3。

表 3 Pu 在铁及其氧化物上吸附等温线的拟合结果
Table 3 Fitting results of sorption isotherms
of Pu on Fe, FeO, Fe₂O₃, and Fe₃O₄ powder

吸附材料 (Sorption material)	$\lg k$	n	r
Fe	2.585	1.25	0.992 1
FeO	23.814	2.81	0.997 4
Fe ₂ O ₃	36.721	3.77	0.994 8
Fe ₃ O ₄	8.312	1.71	0.999 4

3 结 论

水相组分对 Pu 在铁及其氧化物上的吸附影响较大; 实验环境中氧浓度变化对 Pu 在铁及其

氧化物上吸附的影响较小; Pu 在 Fe, FeO, Fe₂O₃ 和 Fe₃O₄ 上的吸附能力随水相 pH 值增大而增大, 随水相中 CO₃²⁻ 浓度 ($4.0 \times 10^{-3} \sim 1.0 \times 10^{-1}$ mol/L) 增大而减小; 吸附平衡后水相中的 Pu 主要以四价存在; Pu 在铁及其氧化物上的吸附可用 Freundlich 吸附等温式来描述。

致谢: 在北山采样过程中得到了核工业北京地质研究院环保中心同行们的大力支持和帮助; 在采集地下水样品过程中还得到了东华理工学院硕士研究生黄伟的帮助, 在此表示衷心的感谢。

参考文献:

- [1] 赵欣. 地质环境中钢系元素水溶液化学研究进展[J]. 核科学与工程, 1997, 17(1): 65—74.
- [2] 威瑟斯庞 PA. 世界放射性废物地质处置[M]. 王驹, 张铁岭, 郑华铃, 等译, 北京: 原子能出版社, 1999, 38.
- [3] 章英杰, 范显华, 苏锡光, 等. Pu 在花岗岩中的吸附行为[J]. 核化学与放射化学, 2005, 27(3): 136—143.
- [4] 章英杰. Pu 在特定地质环境下的化学行为研究[D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2004.
- [5] Silva R J, Nitsche H. Actinide Environmental Chemistry [J]. Radiochim Acta, 1995, 70/71: 377—396.
- [6] Lieser K H. Radionuclides in the Geosphere: Sources, Mobility, Reactions in Natural Waters and Interactions With Solids [J]. Radiochim Acta, 1995, 70/71: 355—375.
- [7] Stumm W, Morgan J J. Aquatic Chemistry (2nd) [M]. New York: John Wiley and Sons, 1981, 599—647.

Sorption Behavior of Pu on Fe, FeO, Fe₂O₃, and Fe₃O₄

ZHANG Ying-jie, FAN Xian-hua, SU Xi-guang, ZENG Ji-shu,
WANG Yong, ZHOU Duo, YAO Jun

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(93), Beijing 102413, China

Abstract: The sorption behavior of Pu on Fe, FeO, Fe₂O₃ and Fe₃O₄ powder are studied with batch experiment at ambient temperature. Sorption experiments are performed under atmospheric and anaerobic conditions.

(下转第 224 页, Continued on page 224)

文章编号:0253-9950(2005)04-0198-05

因子分析技术在铀与 CO, O₂ 反应 俄歇分析中的运用

杨江荣, 蒋春丽, 陆 雷, 肖 红, 汪小琳

中国工程物理研究院, 四川 绵阳 621900

摘要:运用因子分析技术和 Multipak 软件中的 TFA 功能对铀分别在 CO 和 O₂ 气氛中的俄歇谱进行了处理。分析表明, 因子分析方法能有效地解决 C(KLL) 和 U(LMM) 俄歇峰中的重峰问题, 并能从原始数据中剥离出纯组元; 同时还清楚地表明, 铀与 CO 在 300 °C 作用 1 h 后, 在其表面形成了铀的碳化物(或碳氧化物); 对铀在低压氧气中的氧化反应, 用因子分析技术获得了金属态和氧化态的铀元素随氧气暴露剂量的变化情况, 清楚地显示了氧化膜生长的 3 个阶段。

关键词: 铀; CO; O₂; 因子分析; 俄歇

中图分类号: O614.62 **文献标识码:** A

因子分析是一种多元统计分析方法, 由于在解决多变量问题时具有显著的优点而被广泛运用于解决化学问题, 如对色谱、质谱、核磁等光谱数据的处理^[1,2]。因子分析可以对待测体系进行定性和定量分析。通过因子分析, 可以确定影响一特定数据矩阵的因子数, 即研究和分析复杂的或是数量庞大的测量数据, 确定影响这些数据的因子数, 获得对测量数据定性和定量的解释。俄歇线形包含了许多化学信息^[3,4]。因此, 在研究金属和合金的表面及界面反应时, 通常运用线形的变化或者峰位的移动来研究元素化学态的变化。但是在有些情况下, 从定量分析上很难分离出这些化学信息。这是由于不同元素或不同化学态的同一种元素的俄歇峰具有重峰现象^[5]。例如, 在俄歇谱中, 在 0~1 000 eV 范围内, Na 的 KLL 峰, Zn 和 Ga 的 LMM 峰, Eu, Gd, Ho, Yb, Lu, Hf, Ta 和 W 的 MNN 峰都有不同程度的重峰现象。为了解决这种重峰问题, 目前在俄歇分析中, 主要运用最小二乘法, 即首先确定组元, 测量的俄歇谱是由这些纯组元线性组合而成, 通过最小二乘法线性拟合确定不同组元在俄歇谱所占的权重^[6]。但这种方法对噪音的影响不敏感。因子分析方法在界面研究及谱峰分离方面已有运用实

例^[7], 并被认为是一种解决未知体系非常有效的方法。本文将因子分析技术运用于铀与 CO 的相互作用、铀与低压氧的表面反应, 以获得一些有价值的信息。

1 实验部分

1.1 试剂和仪器

在本实验中所用的材料为低碳贫铀。俄歇电子能谱仪(AES)采用 PHI-650 型扫描俄歇电子探针(SAM), 其电子枪发射电子束的能量为 3 keV, 束流为 100 nA。电子枪激发的俄歇电子经双通道筒镜分析器(CMA)分析。氩离子枪溅射时, 其离子束能量为 4 keV。AES 数据均在室温下获得。在样品进入分析室之前, 先用砂纸分级打磨至 900[#], 然后用超声波清洗, 吹干并送入真空室。

1.2 实验方法

铀与 CO 的反应: 将样品加热至 300 °C, 然后用氩离子枪溅射样品表面, 直至探测不到氧和碳元素。将本底真空抽至 0.2 μPa 后, 用微漏阀向主真空室充入 CO 气体(99.95%), 使系统真空维持在 2.0 mPa, 并恒温 1 h, 待温度降至室温后再进行元素的深度剖析。

收稿日期: 2005-03-10; 修订日期: 2005-09-25

作者简介: 杨江荣(1970—), 男, 四川广安人, 在读博士生, 高级工程师, 从事表面分析及核材料研究。

铀与 O₂ 的反应: 室温下将样品表面溅射干净, 然后向真空中充入微量的氧气(氧气分压为 3.0 μPa), 并收取俄歇谱。

2 结果和讨论

2.1 因子分析数学处理原理

因子分析技术的目的是确定体系的独立因子数, 然后从获得的数据中分离出有用的数据, 并去除外界因素的影响。

因子分析的主要操作示意图示于图 1。从图 1 中可知, 在进行因子分析之前要有原始数据矩阵。从原始数据通过矩阵乘法得到协方差矩阵 [Z]。协方差矩阵 [Z] 由原始数据阵的转置左乘原始数据阵构造, 即

$$[Z] = [D]^T [D] \tag{1}$$

找到一个矩阵 [Q], 使 [Z] 对角化, 得到:

$$[Z][Q] = [Q][\lambda] \tag{2}$$

式中, [Q] 是特征矢量矩阵, [λ] 为特征值矩阵。Q_j 是矩阵 [Q] 的第 j 列。这些列构成一个相互正交集, 这些正交集通常被归一化, 形成一正交归一集, 因此, [Q]⁻¹ = [Q]^T。

如果令 [U] = [D][Q], 则 [D] = [U][Q]^T。根据矩阵乘积的定义, [D] = [R][C]。

则可得到:

$$[U] = [R], \tag{3}$$

$$[Q]^T = [C]. \tag{4}$$

得到矩阵 [R], [C] 后, 便可复原数据矩阵, 这就完成了短路复原的过程。

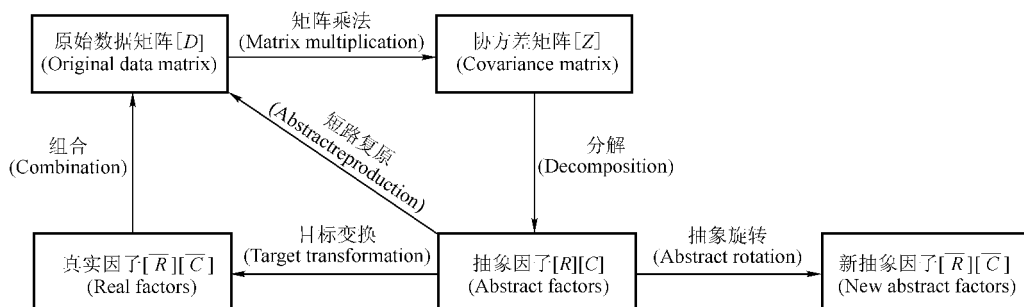


图 1 因子分析的主要操作示意图

Fig. 1 Scheme of key steps in factor analysis

因子分析的一个初衷是用最少的特征向量在误差范围内复原数据。事实上, 实验误差的不可避免, 对协方差矩阵 [Z] 的分解总是产生与 [Z] 的阶数相同的特征向量和特征值。因此就要进行目标变换, 获得真实因子的 [R], [C], 然后再进行数据复原, 具体步骤在文献 [8] 中已有说明, 此处不再赘述。

2.2 铀与 CO 反应

金属铀的活性很高, 易与其它氧化性的气体反应而受到氧化腐蚀。已有研究表明, CO 能钝化金属铀表面, 从而一定程度地提高铀的抗腐蚀能力^[9]。U 和 C 元素在 10~400 eV 内的标准俄歇谱示于图 2。从图 2 看出, 金属铀的 LMM 俄歇峰与 C 的 KLL 俄歇峰在 200~300 eV 范围内有严重的重叠现象, 这给碳元素的定量分析带来很大的困难。俄歇沿深度方向的浓度分布一般只能提供元素的分布情况, 而对不同化学态的同种元素沿深度方向的分布无能为力, 而因子分析技

术在这方面却有很大的优势。

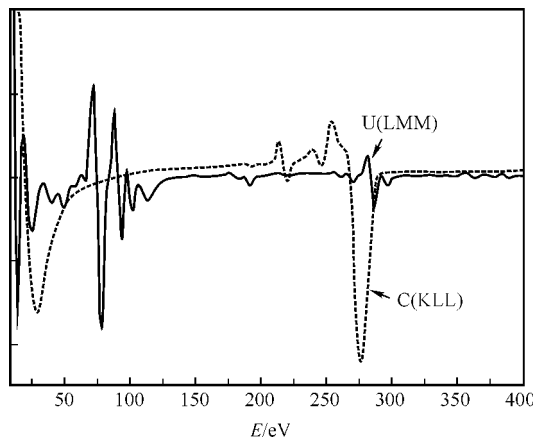


图 2 U 和 C 元素在 10~400 eV 范围内的标准俄歇谱

Fig. 2 Standard Auger spectra for U and C in the range of 10~400 eV

清洁的金属铀表面在 CO 气氛中(CO 分压为 2.0 mPa, 温度为 300 °C)静态浸泡 60 min 后的各元素的深度剖析图示于图 3。从图 3 可知,在样品的外表面 C 元素的浓度相对较高,而 O 元素的浓度则相对较低。随溅射时间的延长,C 元素的深度下降,最后达到一定值。通过对俄歇谱分析,在 C 深度分布曲线上的浓度实际是铀的俄歇峰与碳的俄歇峰产生重峰的结果,因而平台阶段的浓度不是 C 的实际浓度。

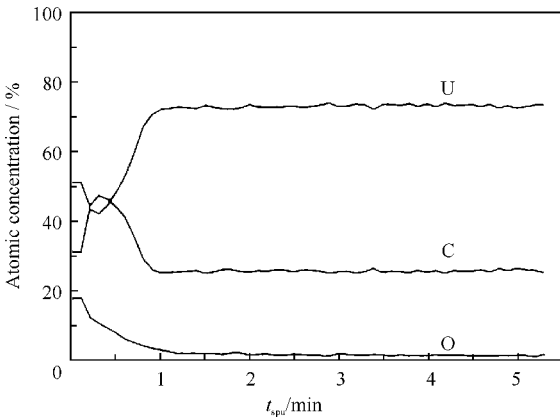


图 3 U, C 和 O 元素的深度剖析
Fig. 3 Depth profile of U, C and O

根据 C 元素在深度剖析过程中的谱峰变化,本文从 C 元素深度剖析中选取了 13 个点,每个点对应一个 C 的俄歇谱,将这 13 点对应的 C 元素的俄歇谱数据列成矩阵形式,形成一个 $D_{n \times 13}$ 矩阵,其中 n 为 C 元素能量窗口中的点数。通过因子分析发现,协方差矩阵($Z_{13 \times 13}$)中的 13 个特征

值列入表 1,这说明数据中包含误差。前 3 个特征值比较大,这表明在 C 元素深度剖析曲线中至少有 3 个组成成分。第 4、第 5 种成分可能存在,但在 95%置信度的情况下,它们可以忽略不计。图 4 为表 1 中前五个特征值所对应的特征向量。从图 4 中可知,前 3 个向量很像组元的深度剖析图,但与实际情况不是一一对应的关系。第 4 个向量在图中分布比较散,但也像一个深度剖析曲线,这可能是离子束效应的影响造成的。第 5 个向量的点分布非常散,这是由于数据包含实验误差造成的。

表 1 协方差矩阵的特征值
Table 1 Eigenvalue of the covariance matrix

No.	特征值(Eigenvalue)	No.	特征值(Eigenvalue)
1	590 286.85	8	38.69
2	85 503.29	9	35.57
3	9 072.81	10	33.24
4	431.35	11	24.09
5	72.36	12	22.48
6	59.16	13	15.62
7	44.69		

运用因子分析技术并结合 MULTIPAK 软件中提供的目标因子分析(TFA)功能对 C 的深度剖析曲线(图 3)进行分析,经因子分析后的 C 深度剖析曲线示于图 5 中。从图 5 可知,金属铀与 CO 相互作用后,在表面产生了自由碳和铀的碳化物或铀的碳氧化物。与图 3 中的 C 元素

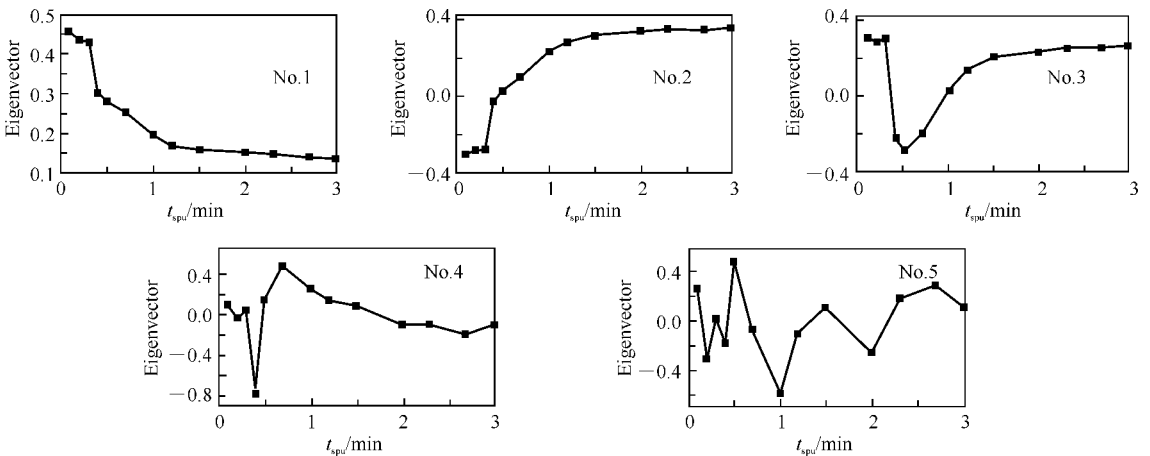


图 4 表 1 中前 5 个特征值对应的特征向量
Fig. 4 Vectors of the first five eigenvalues in table 1