

基于质谱法的钯氢同位素效应研究

刘 孟, 杨江荣, 秦 城, 朱宏志, 王 欢

(中国工程物理研究院, 四川 江油 621907)

摘 要: 钯因其较强的同位素效应而被广泛应用于氢同位素处理中。利用四极质谱对海绵钯的氘分离因子及其影响因素进行了系统研究。通过实验分析了 $-25\sim 155\text{ }^{\circ}\text{C}$ 范围内, 不同氘相对丰度(5%~90%)、氢同位素在固相中溶解度(0.05~0.7)对氘分离因子的影响。结合对 α 相中的氘分离因子计算表明: 海绵钯的氘分离因子随温度的升高而降低, 随氘丰度的增加而增加, 在 $\alpha+\beta$ 及 β 相中随氢同位素在固相中溶解度的上升而有所增长, 在 α 相则不受氢同位素在固相中溶解度的影响。

关键词: 钯; 氢同位素效应; 分离因子; 四极质谱

中图分类号: TG146.3⁺6

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2018)02-0515-06

许多贮氢材料与氘、氚、氙的结合能力存在一定差异, 这种差异被称为贮氢材料的氢同位素效应。利用贮氢材料的同位素效应进行氘、氚、氙纯化分离, 是氙工艺与氙技术中的主要方法之一。虽然 Pd、V、Ti、TiFe、LaNi₅ 等大多数贮氢材料都能用于氢同位素分离^[1-6], 但考虑到工艺的稳定性与可实现性, 通常采用抗毒性性能好、氢同位素效应强、坪台离解压适中的 Pd 作为氢同位素分离材料^[7-11]。

金属氢化物的氢同位素效应可用分离因子(α)来定量描述^[7], 钯的分离因子研究工作较多, 但不同的工作给出的分离因子差异较大, 究其原因主要是研究不系统、影响因素分析不全面^[12-19]。影响钯分离因子的主要参量有温度、氢同位素组成及固相中氢同位素的溶解度, 基于此, 本工作利用质谱法对海绵钯的氢同位素效应进行了系统研究, 实验分析了 $-25\sim 155\text{ }^{\circ}\text{C}$ 范围内, 不同氘相对丰度(5%~90%)、不同固相中的氢(氢同位素)钯比(0.05~0.7)对氘分离因子($\alpha_{\text{H-D}}$)的影响。

1 实 验

实验用海绵钯为粒度 246~351 μm (40~60 目)的团聚体颗粒, 其纯度 $>99.95\%$ (杂质成分为: Pt $<0.005\%$; Rh $<0.001\%$; Ir $<0.001\%$; Au $<0.001\%$; Ag $<0.0006\%$; Cu $<0.0006\%$; Al $<0.001\%$; Ni $<0.001\%$; Fe $<0.001\%$; Si $<0.001\%$), 图 1 为海绵钯的 SEM 形貌。通过 BET 法, 测出其比表面积为 0.438 m^2/g 。XRD 分

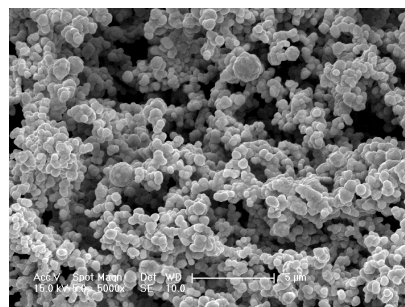


图 1 海绵钯形貌

Fig.1 Morphology of sponge palladium

析表明, 海绵钯具有 fcc 结构, 晶格常数为 0.38914 nm, 基本晶粒尺寸约为 31.26 nm。

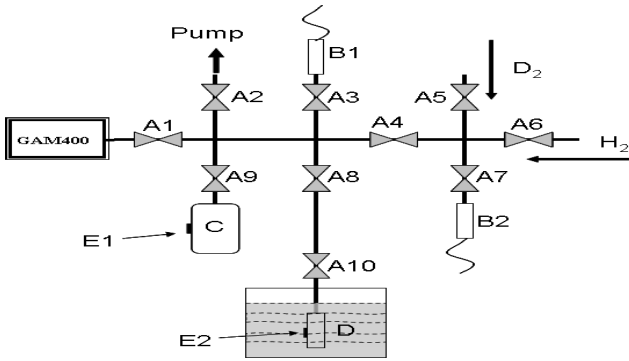
将 12.0 g 海绵钯密封于一不锈钢化学床内, 化学床内部尺寸为 12 mm \times 78 mm, 壁厚为 2.5 mm。经氘质谱检漏(密封漏率 $<1.0\times 10^{-9}\text{ Pa}\cdot\text{m}^3/\text{s}$)后连接到实验系统中, 并用高纯氢(纯度 $>99.999\%$), 在 280 $^{\circ}\text{C}$ 、0.4 MPa 压力下进行吸氢、脱氢, 重复 3 次后完成化学床的活化。

实验装置见图 2, 主要由机械真空泵、高纯氘气源、实验气路控制系统、标准容器、压力温度传感器、恒温装置、GAM400 四极质谱仪组成。实验用的氘纯度均大于 99.99%; 标准容器有效容积为 214 mL; 油浴恒温槽温度调节范围: $-30\sim 180\text{ }^{\circ}\text{C}$, 控温精度为 $\pm 0.1\text{ }^{\circ}\text{C}$; 真空计和压力传感器用于真空监测和

收稿日期: 2017-02-15

基金项目: 国家自然科学基金(21573200)

作者简介: 刘 孟, 男, 1984 年生, 硕士, 中国工程物理研究院材料研究所, 四川 江油 621907, 电话: 0816-3626415, E-mail: m-liu@126.com



A1~A10- valves; B1- 2.5 MPa manometer; B2- 25 kPa manometer; C- standard pressure vessels; D- palladium bed; E1~E2- Pt100; F- isothermobath

图 2 α_{H-D} 测定实验系统示意图

Fig.2 System sketch of testing α_{H-D}

压力检测, 25 kPa 压力传感器 (PMA GmbH) 测量误差为 5 Pa, 2.5 MPa 压力传感器 (PMA GmbH) 测量误差为 0.1 kPa; Pt100 测量误差为 ± 0.1 °C。实验中采取四极质谱对氢同位素气氛进行在线分析, 以获取尽可能多的数据。GAM400 四极质谱仪的分析不确定度为 0.1%。

将活化后的化学床置于油浴恒温槽 F。气、氘气体分别由阀门 A6、A5 进行定量控制, 整个实验系统通过阀 A1 进行抽空。系统与四极质谱 (GAM400) 相连, 进行分离样品气的测量。实验过程中温度、压力等通过数据采集仪 (FLUKE 2680A) 进行实时在线采集。

初始气氘混合气通过 PVT 方法在标准容器 C 内配置, 氘丰度分别为 5%, 30%, 50%, 70% 和 90%。实验前使化学床内海绵钯吸取一定量的氢同位素气体直至固相中的 (H+D)/Pd 达到目标值 (0.05~0.7), 通过恒温槽降低化学床温度 (< -28 °C), 再升至目标温度, 稳定后取样分析, 计算出相应实验条件下的分离因子。

实验中, 为保持四极质谱有足够的分析气量, 低压时采用约 40 mL 的取样体积。随着温度升高, 气相平衡压力升高。为了保证固相中的氢钯比和床体内的氘丰度保持在一个稳定范围, 逐步减小取样体积, 最后约 2 mL。

气氘的分离因子定义如下:

$$\alpha_{H-D} = \frac{([D]/[H])^g}{([D]/[H])^s} \quad (1)$$

式中, α_{H-D} 为气氘的分离因子, $([D]/[H])^g$ 为气相中的氘氘原子比, $([D]/[H])^s$ 为固相中的氘氘原子比。

$$([D]/[H])^g = \frac{c_{D_2} + 1/2c_{HD}}{c_{H_2} + 1/2c_{HD}} \quad (2)$$

式中, c_{D_2} 为气相中的氘气的含量, c_{HD} 为气相中的 HD

的含量, c_{H_2} 为气相中的氢气含量, 均由四极质谱直接测量。 $([D]/[H])^s$ 可由式 (3) 给出:

$$([D]/[H])^s = \frac{{}^D n_i^s}{n_i^s - {}^D n_i^s} \quad (3)$$

式中, ${}^D n_i^s$ 为第 i 次取样后固相中的氘含量; n_i^s 为第 i 次取样后固相中的氢同位素总量, 可由下式获得:

$$n_i^s = n_0 - \sum_i n_i^g \quad (4)$$

式中, n_0 为初始状态下氢同位素在固相中的含量; n_i^s 为经 i 次取样后固相中的氢同位素含量; n_i^g 为取样分析所损耗的气量, 可由 PVT 法计量:

$$n_i^g = \frac{P_i V_i}{RT_i} \quad (5)$$

式中, P_i , T_i , V_i 是第 i 次取样的压力、温度及体积, R 为气体常数。综上可得固相中氘量:

$${}^D n_i^s = {}^D n_0 - \sum_i \frac{n_i^g ([D]/[H])_i^g}{1 + ([D]/[H])_i^g} \quad (6)$$

式中, ${}^D n_0$ 化学床中的初始氘量, $([D]/[H])_i^g$ 为第 i 次取样分析时气相中的氘氘原子比。

2 结果与讨论

2.1 温度效应

图 3 给出了氘丰度分别为 30% 及 68% (考虑取样影响的实际氘丰度) 时分离因子随温度变化的情况, 其中 (H+D)/Pd=0.4。结果表明, 氢同位素效应对温度敏感, 温度的升高导致同位素效应降低。氘丰度为 30% 时, 随着温度的升高, 分离因子由最初的 2.384 (-25 °C) 逐渐降低到最后的 1.719 (155 °C); 氘丰度为 68% 时的分离因子略高于氘丰度为 30% 的分离因子, 由最初的 2.545 (-25 °C) 逐渐降低至 1.834 (155 °C), 但它们随温度变化趋势一致。在 $-25 \sim 155$ °C 范围内, 钯

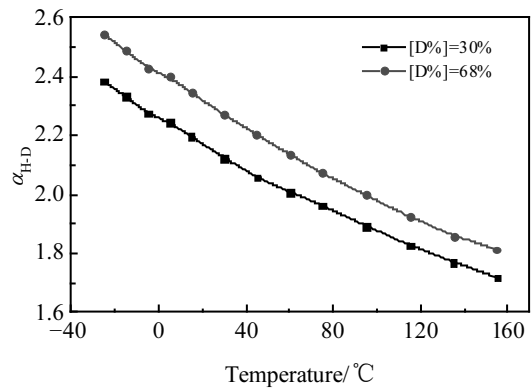


图 3 Pd-H-D 体系中 α_{H-D} 随温度变化曲线, (H+D)/Pd=0.4

Fig.3 Dependence of α_{H-D} on temperature for the Pd-H-D system, (H+D)/Pd=0.4

的气氖分离因子保持在一个较大值 (>1.7), 说明钯具有很大的氢同位素效应: 钯对较轻的同位素 (H) 优先吸附, 而对较重的同位素 (D) 进行优先解吸, 使其在气相中富集。

分离因子与温度的关系满足下式^[16]:

$$\ln \alpha = A/T + B \quad (7)$$

式中, A, B 为常数。对 $\ln \alpha \sim 1/T$ 进行拟合, 见图 4。

拟合结果和部分文献数据见表 1。拟合结果大于 Botter 等的实验值^[13], 小于 Wicke, Luo 等的结果^[14,19]。文献中, Wicke 并没有交代清楚实验时体系的状态, 而 Botter 和 Luo 虽然给出了固相中的氖丰度, 但未给出固相中氢同位素的浓度。实际上氖丰度、固相中氢同位素的溶解度对分离因子都有影响, 下面将结合实验结果展开分析。

2.2 氖丰度

实验测定了 (H+D)/Pd=0.4 时, 不同温度下分离因子随氖丰度的变化关系曲线, 结果如图 5 所示。由图可见, 分离因子随氖丰度的增大而逐渐增大, 其中低丰度时增速较快。

唐涛等采用理想溶液模型^[17], 基于 Rault's 定律计算了 (H+D)/Pd>0.2 时 Pd-H-D 体系的分离因子:

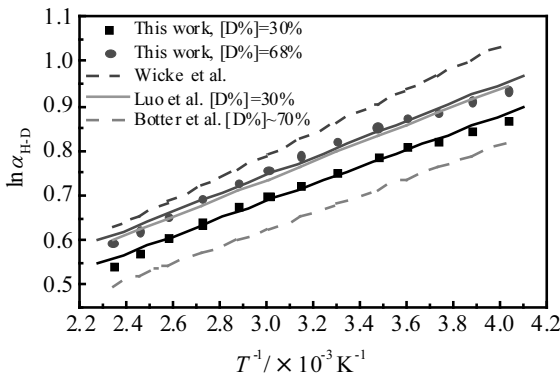


图 4 $\ln \alpha_{H-D}$ 随温度的变化关系, (H+D)/Pd=0.4

Fig.4 Dependence of $\ln \alpha_{H-D}$ on temperature, (H+D)/Pd=0.4

表 1 Pd-H-D 体系的 α_{H-D} 随温度变化关系

Table 1 α_{H-D} vs. temperature for Pd-H-D systems

[D%]	Pd(HD) _x	α_{H-D} vs. T	Ref.
30	$x=0.4$	$\ln \alpha_{H-D} ([D\%]=30\%) = \frac{192}{T} + 0.111$	This work
68	$x=0.4$	$\ln \alpha_{H-D} ([D\%]=68\%) = \frac{202.3}{T} + 0.139$	This work
70	-	$\log_{10} \alpha_{H-D} = \frac{82}{T} + 0.025$	[13]
-	-	$\ln \alpha_{H-D} = \frac{245}{T} + 0.055$	[14]
30	$\alpha+\beta$ coexisting region	$\ln \alpha_{H-D} = \frac{204}{T} + 0.123$	[19]

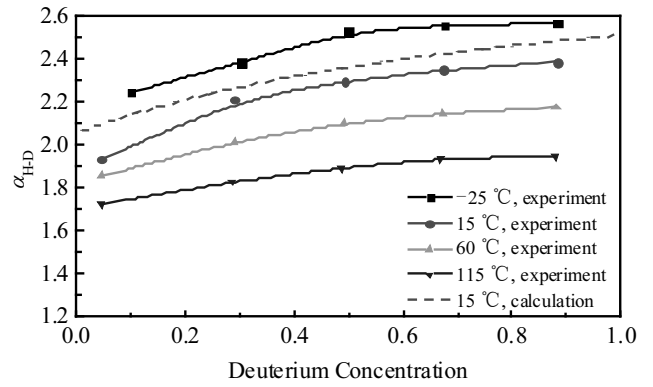


图 5 α_{H-D} 随氖丰度的变化关系

Fig.5 Dependence of α_{H-D} on deuterium concentration

$$\alpha_{H-D} = \frac{P_{D_2}^{eq}(2X_D + \sqrt{K_{HD} P_{H_2}^{eq} / P_{D_2}^{eq}})}{P_{H_2}^{eq}(2X_H + \sqrt{K_{HD} P_{D_2}^{eq} / P_{H_2}^{eq}})} \quad (8)$$

其中, $P_{H_2}^{eq}$ 为 Pd-H 体系的平衡压力, $P_{D_2}^{eq}$ 为 Pd-D 体系的平衡压力。

Luo 等认为, H、D 在 Pd 晶体中的占位相同, 其活度比值等同于氢同位素在固相中丰度的比值^[19], 以此为基础推出了式 (9):

$$\alpha_{H-D} = R_p \frac{2(X_D / X_H) + \sqrt{K_{HD} / R_p}}{2 + \sqrt{K_{HD} R_p} (X_D / X_H)} \quad (9)$$

其中, $R_p = \frac{P_{D_2}^{eq}}{P_{H_2}^{eq}}$ 。将其代入式(9), 结果与式(8)相同。

K_{HD} 为气氖平衡常数, 仅与温度有关。对于气气和气氖反应:



反应平衡常数:

$$K_{HD} = \frac{c_{HD}^2}{c_{H_2} c_{D_2}} \quad (11)$$

在 -25~155 °C 时的值可由测量得到的气相中的 H_2 、 D_2 、 HD 的丰度算出。平衡常数 K 与标准自由能有如下关系:

$$\Delta G^0 = -RT \ln K = -\Delta H + T \Delta S \quad (12)$$

亦即:

$$\ln K = \frac{\Delta H}{RT} - \frac{\Delta S}{R} \quad (13)$$

对 $\ln K_{HD} \sim 1/T$ 进行拟合 (见图 6), 得到式 (14):

$$\ln K_{HD} = \frac{-82.469}{T} + 1.4729 \quad (14)$$

唐涛等人曾测定了 15 °C 时的海绵钯解吸 H_2 、 D_2 的 PcT 曲线^[20], 对 H/Pd 和 D/Pd=0.4 时的 R_p 进行取值, 计算所得分离因子见图 5 中虚线所示。理论计算结果大

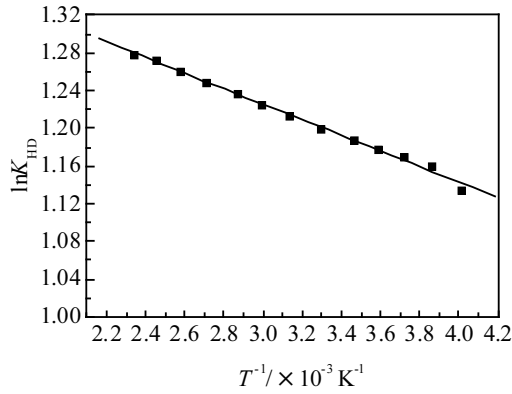


图 6 $\ln K_{HD}$ 随温度的变化关系

Fig.6 Dependence of $\ln K_{HD}$ on temperature

于实验值,但整体变化趋势一致:随温度的升高而逐渐增大,不同之处是低丰度段变化趋势较实验值平缓。

式(8)是基于理想溶液模型给出的分析结果,当浓度较大时应考虑氘在钯中的活度。Luo 虽然考虑了活度,但其认为氘、氕在晶格中占位相同而活度系数相同^[19]。实际上氘原子相对质量存在较大差异,造成其物理化学性质的细微差异,这也是其在 Pd-H-D 体系中产生同位素效应的一个重要原因,这必然造成其活度的差异,所以实际应用时不能简单地认为两者活度系数相同。

2.3 固相中氢同位素的溶解度

固相中氢同位素的溶解度可以用固相中氢同位素的原子总和与钯原子总和的比值 $(H+D)/Pd$ 来表示。

图 7 给出了氘丰度为 90% 时,钯氢化物的 $\alpha+\beta$ 相以及 β 相的氘分离因子实验结果。结果显示: α_{H-D} 随 $(H+D)/Pd$ 值的增大而逐渐增大,其中在 $0.2 < (H+D)/Pd < 0.5$ 较为平缓,在两侧变化趋势明显。Luo 等所给结果中并未涉及氢同位素的溶解度,在其利用式(9)进行理论计算时,在同一温度下所取 R_p 值相同,即认

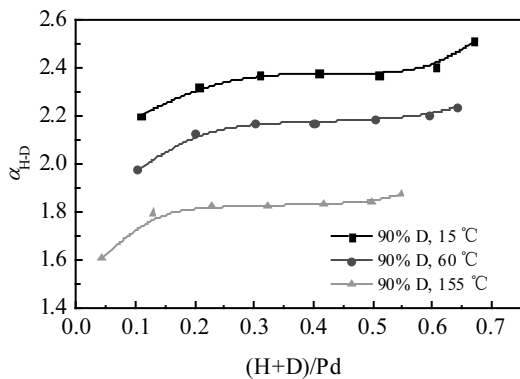


图 7 α_{H-D} 随固相中氘总浓度的变化关系

Fig.7 Dependence of α_{H-D} on concentration in solid $(H+D)/Pd$

为氘-钯、氕-钯体系的坪台压比值不变,而导致其认为分离因子不随固相中氢同位素含量的变化而改变^[19]。实际上,从唐涛等给出的海绵钯的氘、氕 PcT 曲线中可以看出氘、氕的热力学性质变化的区别^[20]:首先氕的坪台区较氘的窄;此外坪台区的氘、氕压力并不是恒定不变的,钯的吸气坪台压和吸氕坪台压在坪台区都随氘(或氕)钯原子比缓慢增长,并且后者增长较快,即在一定氢钯比范围内 R_p 值有所增大。

2.4 α 相分离因子的计算

由于在实验温度下钯氢化物的 α 相平衡压力较小,气体总量也相对较小,一定量的取样会严重影响到气体总量和固相中的氢钯比,因此本研究只进行了相应的理论计算。

在 α 相区,固相中吸氢量很小,形成钯氢固溶体,溶解度与平衡压力近似满足 Sievert 关系。对氘溶于固相,有:



其中, $H(s)$ 为溶解在固相中的氘。有:

$$a_H = K_H f_{H_2}^{1/2} \tag{16}$$

其中, a_H 为固溶氘的活度, f_{H_2} 是氘气的逸度, K_H 是反应的平衡常数。固溶氘的活度又可表示为:

$$a_H = \gamma_H c_H \tag{17}$$

其中, γ_H 为氘的逸度系数, c_H 为固相中的氘浓度。

$$f_{H_2} = \beta P_{H_2}^{1/2} \tag{18}$$

其中, P_{H_2} 为反应(15)气相中氘的平衡压力。

$$\gamma_H c_H = \beta K_H P_{H_2}^{1/2} \tag{19}$$

在低浓度、低气压下, $\beta \rightarrow 1$, $\gamma_H \rightarrow 1$ 所以在固相中氘浓度很小时,可以认为:

$$c_H = K_H P_{H_2}^{1/2} \tag{20}$$

同样对于溶解于 Pd 的氕:



其中, $D(s)$ 为溶解在固相中的氕。也可推出

$$c_D = K_D P_{D_2}^{1/2} \tag{22}$$

其中, c_D 为固相中的氕浓度, K_D 是反应的平衡常数, P_{D_2} 为反应(22)气相中氕气的平衡压力。

由式(20)可以推出:

$$c_{H_2} = \frac{P_{H_2}^{1/2}}{P} = \frac{(c_H / K_H)^2}{P} \tag{23}$$

由式(22)可以推出:

$$c_{D_2} = \frac{P_{D_2}^{1/2}}{P} = \frac{(c_D / K_D)^2}{P} \tag{24}$$

由式(11), (23), (24) 可以推出:

$$c_{HD} = \sqrt{K_{HD} c_{H_2} c_{D_2}} \tag{25}$$

而 $c_D / c_H = X_D / X_H$, 其中 X_D 和 X_H 为固相中氕和

气的丰度。对于 α_{H-D} 存在如下等式：

$$\begin{aligned} \alpha_{H-D} &= \frac{([D]/[H])^g}{([D]/[H])^s} \\ &= \frac{c_{D_2} + 1/2c_{HD}}{c_{H_2} + 1/2c_{HD}} \cdot \frac{c_H}{c_D} \\ &= \frac{c_{D_2} + 1/2\sqrt{K_{HD}c_{H_2}c_{D_2}}}{c_{H_2} + 1/2\sqrt{K_{HD}c_{H_2}c_{D_2}}} \cdot \frac{c_H}{c_D} \\ &= \frac{\frac{(c_D/K_D)^2}{P} + \frac{1}{2}\sqrt{K_{HD}}\frac{(c_H/K_H)(c_D/K_D)}{P}}{\frac{(c_H/K_H)^2}{P} + \frac{1}{2}\sqrt{K_{HD}}\frac{(c_H/K_H)(c_D/K_D)}{P}} \cdot \frac{c_H}{c_D} \\ &= \frac{2c_DK_H^2 + c_H\sqrt{K_{HD}K_HK_D}}{2c_HK_D^2 + c_D\sqrt{K_{HD}K_HK_D}} \\ &= \frac{2X_DK_H^2 + X_H\sqrt{K_{HD}K_HK_D}}{2X_HK_D^2 + X_D\sqrt{K_{HD}K_HK_D}} \end{aligned} \quad (26)$$

可以看出，在 α 相中分离因子与浓度无关。对 Pd-H-D 系统， K_H 和 K_D 的值已经有报道^[14]：

$$\ln K_H = \frac{1163}{T} - 6.45 \quad (27)$$

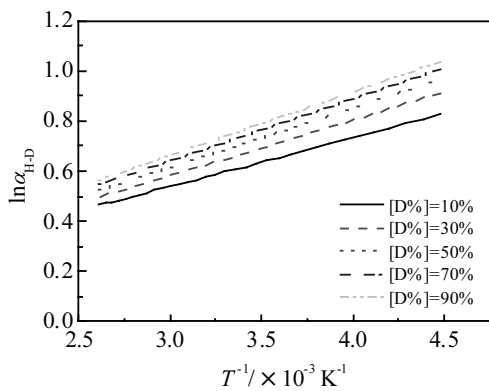


图 8 $\ln\alpha_{H-D}$ 随温度的变化关系

Fig.8 Dependence of calculated $\ln\alpha_{H-D}$ on temperature

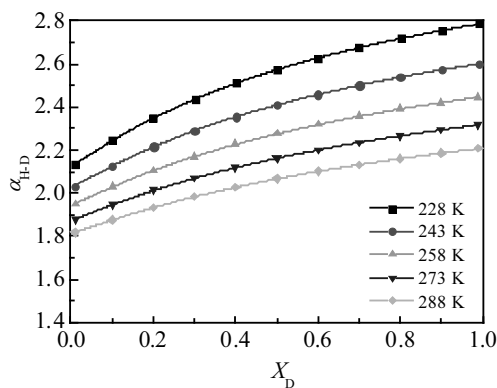


图 9 α_{H-D} 随 X_D 的变化关系

Fig.9 Dependence of calculated α_{H-D} on X_D

$$\ln K_D = \frac{949}{T} - 6.40 \quad (28)$$

将式 (27)、(28) 代入式 (26) 中，可算出 α 相，不同氘丰度和不同温度下海绵钯的氘氢分离因子。计算所得的分离因子变化趋势与 2.3 部分中 $\alpha+\beta$ 及 β 相海绵钯的氘氢分离因子的变化趋势相似：在相同情况下，随温度的增高而减小，并且与 $1/T$ 成线性关系 (图 8)；随氘丰度的增加而增大，在较大氘丰度时增速较为缓慢 (图 9)。

3 结 论

- 1) 海绵钯的氘氢分离因子随着温度 ($-25\sim 155$ °C) 的增加而减小，并且 $\ln\alpha$ 与 $1/T$ 成线性关系。
- 2) 分离因子随氘丰度的增大而逐渐增大，其中低丰度时增速较快。
- 3) 在 $\alpha+\beta$ 及 β 相，分离因子受氢同位素在固相中溶解度的影响，在 $0.2 < (H+D)/Pd < 0.5$ 时较为平缓，而在 $(H+D)/Pd < 0.2$ 或 $(H+D)/Pd > 0.5$ 时变化趋势明显；
- 4) 理论计算了 α 相的分离因子，计算结果表明， α 相分离因子只与温度和氘丰度有关，变化趋势与 $\alpha+\beta$ 及 β 相相似。

致 谢：本研究对卢勇杰、杨鹏飞、鲍明、刘铁中、张学森、朱力桂、王延龙等同事在研究工作中给予的帮助表示感谢。

参考文献 References

- [1] Wiswall R H, Reilly J J. *Inorganic Chemistry*[J], 1972, 11(7): 1691
- [2] Aldridge F T. *Journal of the Less Common Metals*[J], 1985, 108(1): 131
- [3] Fukada S, Yamasaki T, Matsuo H *et al.* *Journal of Nuclear Science and Technology*[J], 1990, 27(7): 642
- [4] Jungblut B, Sicking G. *Zeitschrift für Physikalische Chemie-International Journal of Research in Physical Chemistry & Chemical Physics*[J], 1989, 164(2): 1177
- [5] Fukada S, Fuchinoue K, Nishikawa M. *The Journal of Alloys and Compounds*[J], 1993, 201(1-2): 49
- [6] Andreev B M, Magomedbekov E P, Selivanenko I L. *Atomic Energy*[J], 1998, 84(3): 186
- [7] Jiang Guoqiang(蒋国强), Luo Deli(罗德礼), Lu Guangda(陆光达) *et al.* *Tritium and Its Engineering Technology(氚和氚的工程技术)*[M]. Beijing: National Defence Industry Press, 2007: 512
- [8] Zhang Wei(张伟), Yao Shouzhong(姚守忠). *Tritium Technology(氚工艺)*[M]. Beijing: Atomic Energy Industry Press, 2012: 329

- [9] Leem W. *Tritium Separation Using Metal Hydrides, DP-MS-86-11* [R]. Oxnard: Gordon Research Conferences, 1986: 35
- [10] Botter F, Gowman J, Hemmerich J L *et al. Fusion Technology* [J], 1988, 14: 562
- [11] Rutherford W M, Ellis R, Abell G C. *Supported Palladium Materials for Isotope Separation, MLM-3469*[R]. Miamisburg: Monsanto Research Corporation, 1988: 48
- [12] Glueckauf E, Kitt G P. *Proceedings of the International Symposium on Isotope Separation*[C]. New York: Wiley-Interscience, 1958: 210
- [13] Botter F, Menes J, Tistchenko S *et al. Bulletin de la Société Chimique de France*[J], 1965, 11: 3374
- [14] Wicke E, Nernst G. *Ber Bunsen Ges Phys Chem*[J], 1964, 68(3): 224
- [15] Andreev B M, Perevezentsev A N, Mandrykin I A *et al. Radiokhimiya-USSR*[J], 1986, 28(2): 212
- [16] Fukada S, Fuchinoue K, Nishikawa M. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1995, 226: 311
- [17] Tang Tao(唐 涛), Chen Huchi(陈虎翅), Lu Guangda(陆光达) *et al. Rare Metal(稀有金属)*[J], 2004, 28(4): 652
- [18] Luo W F, Cowgill D F, Causey R A. *The Journal of Physical Chemistry B*[J], 2009, 113(39): 12 978
- [19] Luo W, Cowgill D F. *The Journal of Physical Chemistry C*[J], 2013, 117: 13 861
- [20] Tang Tao(唐 涛), Guo Shulan(郭淑兰), Lu Guangda(陆光达) *et al. Rare Metal(稀有金属)*[J], 2004, 28(2): 308

Study on the Hydrogen Isotope Effect of Palladium by Mass-Spectrography

Liu Meng, Yang Jiangrong, Qin Cheng, Zhu Hongzhi, Wang Huan
(China Academy of Engineering Physics, Jiangyou 621907, China)

Abstract: Palladium is widely used in hydrogen isotope technology owing to its obvious isotope effect. The systematic research of protium-deuterium separation factor of sponge palladium was conducted by quadrupole mass spectrometer. The impact of temperature ($-25\sim 155\text{ }^{\circ}\text{C}$), protium-deuterium relative abundance (5%~90%), hydrogen-palladium ratio in the solid phase (0.05~0.7) on protium-deuterium separation factor of sponge palladium was analyzed by an experimental method. Combining the calculation of that in the α phase, the results show that protium-deuterium separation factor of sponge palladium decreases with the increasing of temperature, and increases with the increasing of deuterium relative abundance. Protium-deuterium separation factor increases with hydrogen-palladium ratio in the $\alpha+\beta$ and β phase, but such effect is not observed in the α phase.

Key words: palladium; hydrogen isotope effect; separation factor; quadrupole mass spectrometer

Corresponding author: Zhu Hongzhi, Ph. D., Professor, Institute of Materials, China Academy of Engineering Physics, Jiangyou 621907, P. R. China, Tel: 0086-816-3626415, E-mail: zhu_hongzhi@sohu.com