

# UF<sub>4</sub> 在空气中热化学反应研究

仲敬荣, 余春荣, 邓 辉, 任一鸣

(中国工程物理研究院, 四川 绵阳 621900)

**摘 要:** 分别采用显微激光拉曼光谱 (micro-laser Raman spectroscopy, MLRS)、X 射线光电子能谱 (X-ray photoelectron spectroscopy, XPS)、称重及形貌观察等手段, 开展了 UF<sub>4</sub> 在空气中的热化学反应实验, 研究不同温度时效 UF<sub>4</sub> 质量、颜色及失重情况, 获取反应前后不同铀化合物的 Raman 和 XPS 特征图谱。结果表明, UF<sub>4</sub> 在空气中加热至 200 °C 时, 性质稳定, 其拉曼光谱图基本无变化; 但在 250 °C 以上, 样品表面颜色发生明显变化, Raman 和 XPS 分析发现有 UO<sub>2</sub>、UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>、U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 等多种铀化合物生成; 随着温度升高, UF<sub>4</sub> 在空气中的化学反应速率呈现由快到慢的变化趋势。

**关键词:** UF<sub>4</sub>; 拉曼光谱 (Raman); X 射线光电子能谱 (XPS); 化学反应; 空气

**中图分类号:** TL211

**文献标识码:** A

**文章编号:** 1002-185X(2016)12-3135-05

铀的卤化物是制备铀金属过程中的重要化合物, 工艺上最重要的方法是用镁或钙热还原铀的卤化物, 其中四氟化铀 (UF<sub>4</sub>) 是最常用的卤化物之一。早在 20 世纪 60 年代, 科学家们<sup>[1,2]</sup>对铀卤化物的制备、化学与物理性质已有详细报道, 并鉴定证明铀的氟化物主要有: UF<sub>3</sub>、UF<sub>4</sub>、U<sub>4</sub>F<sub>17</sub>、U<sub>2</sub>F<sub>9</sub>、UF<sub>5</sub>、UF<sub>6</sub> 等。1999 年, Walker 等<sup>[3]</sup>对氟化铀酰及其水合物的合成、结构和表征进行了详细报道。宋维端等<sup>[4]</sup>对 UF<sub>4</sub> 和 UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 与过热蒸汽作用的动力学机理进行过调研, 康仕芳和董晓雨等<sup>[5,6]</sup>对 UF<sub>4</sub> 的制备和水解反应实验进行了研究。分子光谱法<sup>[7]</sup>主要研究分子中以化学键联结的原子之间的振动光谱和分子的转动光谱, 利用特征谱带的频率, 推断分子中可能存在的基团或键, 进而确定物质的化学结构。拉曼和红外光谱法可看作研究分子能级间跃迁的互补方法, 国内外已有多个研究者利用激光拉曼、红外光谱等手段<sup>[8]</sup>实时研究了金属铀<sup>[9-13]</sup>、铀合金<sup>[14]</sup>、铀氧化物<sup>[15,16]</sup>、铀化合物<sup>[17]</sup>及其表面涂层<sup>[18]</sup>在不同温湿度和气氛条件下的腐蚀反应, 分析推断了各种腐蚀产物及其氧化膜的形成过程, 表征出多种离线条件下无法检测到的中间产物。X 射线光电子能谱 (X-ray photoelectron spectroscopy, XPS) 技术<sup>[19]</sup>也被称作用于化学分析的电子能谱 (electron spectroscopy for chemical analysis, ESCA), 它可以给出固体样品表面所含的元素种类、化学组成以及有关的电子结构重要信息, 在各种固体材料的基础研究和实际应用中起着重要的作用。但是, UF<sub>4</sub> 化学反应过程的分子光谱和 XPS 研究则较少见报道。

UF<sub>4</sub> 中各物相的化学组成 (如 UO<sub>2</sub>、UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 和 UC 等物质) 和物理特性 (如晶体结构、松装密度、粒度、比表面积等) 将影响钙热还原的反应特性, 从而影响高纯铀的纯化质量。因而, 在充分调研并掌握 UF<sub>4</sub> 物化特性的基础上, 分别采用显微激光拉曼光谱 (micro laser raman spectroscopy, MLRS) 和 X 射线光电子能谱 (XPS) 分析技术, 开展 UF<sub>4</sub> 在空气中热化学反应的实验研究, 获取反应前后不同铀化合物的拉曼光谱和 XPS 特征谱, 可为 UF<sub>4</sub> 粉末制备工艺的优化和各工艺流程中不同物质化学形态的研究提供技术方法和基础数据。

## 1 实 验

实验所用的 UF<sub>4</sub> 样品来源于中核北方核燃料元件有限公司。一般情况下, UF<sub>4</sub> 原料样品为翠绿色粉末晶体 (绿盐), 密度 6.70 g/cm<sup>3</sup>, 松装密度 2.0~4.5 g/cm<sup>3</sup>, 熔点 1 036 °C, 沸点 1 417 °C, 几乎不溶于水, 属单斜晶系, 具有非挥发性及非吸水性。为便于实验研究, 需将一定量的 UF<sub>4</sub> 原料样品置于玛瑙研钵中研磨均匀, 并压制成一定厚度 (<1 mm) 的片状, 从而确保 UF<sub>4</sub> 实验样品表面平整, 颗粒分布均匀。

在 (25±5) °C, 相对湿度 50%~60% 下, 用感量为 0.01 g 的电子天平准确称取一定量的 UF<sub>4</sub> 片状样品, 置于马弗炉中分别进行不同温度点和时间段的实验, 马弗炉自带的热电偶温控系统调节样品反应所需的温度或进行程序升温。UF<sub>4</sub> 样品经过不同温度时效之后自然降至室温, 准确称重。首先在 XploRA 型激光拉

收稿日期: 2015-12-15

基金项目: 国家安全某重大基础研究项目资助

作者简介: 仲敬荣, 女, 1975 年生, 硕士, 副研究员, 中国工程物理研究院, 四川 绵阳 621900, 电话: 0816-3626997, E-mail: zhongjingrong@caep.cn

曼光谱仪配备的 BX41 奥林巴斯显微镜上进行表面形貌观察, 同时进行拉曼光谱扫描分析; 然后送至 XPS 真空室, 采用 X 射线光电子能谱分析 UF<sub>4</sub> 在不同温度时效后样品表面元素的组成及价态。

采用法国 Horiba jobin yvon 公司 XploRA 型显微激光拉曼光谱仪, 配备有 532、638、785 nm 3 种不同波长的激光光源, BX41 奥林巴斯显微镜对 UF<sub>4</sub> 样品进行表征。分析参数为: 扫描范围 50~4 000 cm<sup>-1</sup>, 激发波长 532 或 638 nm, 激光功率≤25%或 10%, 物镜 50×LDW, 针孔孔径 300 μm, 狭缝宽度 100 μm, 光栅刻线 1 200 gr·mm<sup>-1</sup> 或 1 200 T, 样品曝光时间 10~20 s, 采样循环次数 5~10 次。

ESCALAB-250 型 X 射线光电子能谱仪, 美国 THERMO 公司, 仪器本底真空优于 2×10<sup>-8</sup> Pa。以单色化 Al Kα(1 486.6 eV) 射线为激发源, 发射电压 15 kV, 功率 150 W, 能谱仪采用半球能量分析器(HMA)采集光电子。当通道能为 30 eV 时, 用 Ag 3d<sub>5/2</sub>(368.3 eV) 标定谱仪, 谱峰的半高宽 0.6 eV。Ar<sup>+</sup> 溅射时, 离子动能 3 keV, 束流 3 μA, 束斑 500 μm×500 μm。

## 2 结果与讨论

### 2.1 拉曼光谱分析

由于 UF<sub>4</sub> 中化学组成的复杂性, 以及铀氧化物结构也比较复杂, 并且不同氧化价态的种类较多, 目前文献报道的主要有 UF<sub>4</sub>、UF<sub>6</sub>、UOF<sub>4</sub>、UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>、UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O、UOF<sub>5</sub>、UO、UO<sub>2</sub>、UO<sub>3</sub>、U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>、UO<sub>2</sub><sup>2+</sup> 等。虽然已有较多文献报道了实验或理论计算的各种铀化合物的拉曼光谱, 但由于样品制备、实验条件、仪器灵敏度等因素, 结果并不完全一致, 且不同化学计量组成的数据仍然相当缺乏。表 1 为实验研究及相关文献报道的不同铀化合物拉曼光谱特征频率范围及对应振动峰的归属指认<sup>[20-22]</sup>。

由表 1 看出, 200~500 cm<sup>-1</sup> 范围内主要为 U-F、U-O 键的弯曲振动, 500~990 cm<sup>-1</sup> 范围主要是 U-F、U-O 及 O=U=O 键的伸缩振动及反对称伸缩振动。其中, UF<sub>4</sub>、UF<sub>6</sub> 的特征吸收区在较低波数范围(700~100 cm<sup>-1</sup>), UO<sub>2</sub> 常在 400~780 cm<sup>-1</sup> 波数范围, 其次是 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>(750~850 cm<sup>-1</sup>), UO<sub>3</sub>、UO<sub>2</sub><sup>2+</sup> 及 UO<sub>2</sub><sup>+</sup> 则在较高波数范围(770~990 cm<sup>-1</sup>)。Pointurier 等<sup>[22]</sup> 收集并制备了多种不同的铀化合物, 并测定出其对应的拉曼光谱图。本研究主要依据表 1 及 Pointurier 等人的测定结果判断 UF<sub>4</sub> 在空气中热化学反应过程所生成的多种铀化合物。

在 (25±5) °C, 相对湿度 50%~60% 下, 对空气中不同温度时效的 UF<sub>4</sub> 样品分别进行拉曼光谱分析。如图 1。

表 1 铀化合物的拉曼特征频率及归属指认

Table 1 Raman characteristic shift and assignment of uranium compounds<sup>[20-22]</sup>

Raman shift/cm <sup>-1</sup>	Uranium compounds	Assignment
667, 532, 202, 142	UF <sub>6</sub> /UF <sub>4</sub>	U-F
868, 552, 660, 389	UOF <sub>4</sub>	U-O, U-F, U-F-U
970~930, 260, 234, 146	UO <sub>2</sub> F <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub> <sup>2+</sup> , U-F, O-U-O, F-U-F
950~935, ~430	UO <sub>2</sub> F <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O	UO <sub>2</sub> <sup>2+</sup> , U-F
820, 590	UOF <sub>5</sub>	U-O, U-F
800, 325, 450	UO	U-O
1156, 576, 635	UO <sub>2</sub>	U-O
750~850, 100~550	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	U-O, -O-U-O-U-O-
787, 826, 100~400	UO <sub>3</sub>	U-O
850~950, 780~870	UO <sub>2</sub> <sup>2+</sup>	O=U=O
800~900	UO <sub>2</sub> <sup>+</sup>	U-O

错误!

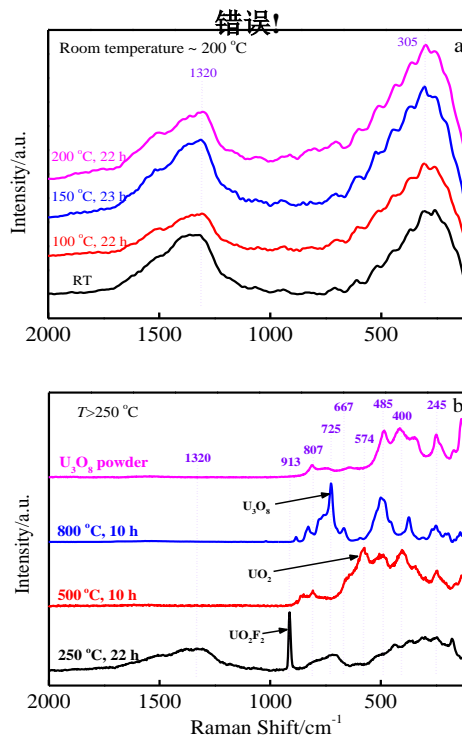


图 1 UF<sub>4</sub> 在空气中不同温度时效的拉曼光谱  
Fig.1 Raman spectra of different uranium compounds UF<sub>4</sub> heated at stated temperatures and for different time in air: (a) room temperature~200 °C and (b) above 200 °C

由图 1 看出, UF<sub>4</sub> 在空气中加热至 200 °C 时, 还相当稳定, 其拉曼光谱图基本没有变化; 但在 250 °C 以上, 样品表面颜色已经发生明显变化, 并逐渐加深, 说明 UF<sub>4</sub> 发生了化学反应, 拉曼光谱分析发现有 UO<sub>2</sub>、UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>、U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>、UO<sub>3</sub> 等多种铀化合物生成。

2.2 XPS 分析

将 UF<sub>4</sub> 原料及其在空气中不同温度时效后的样品分别送入 XPS 分析真空室后不进行 Ar<sup>+</sup>离子溅射刻蚀, 得到图 2 所示的 0~1200 eV 电子轨道结合能范围内的 XPS 能谱。由图 2 看出, UF<sub>4</sub> 样品表面可探测的主要元素包括 U、F、O、C 等, 其中, U 元素的光电子峰有 4d<sub>3/2</sub>(979 eV)、4d<sub>5/2</sub>(746 eV)、4f<sub>5/2</sub>(392 eV)、4f<sub>7/2</sub>(382 eV)、5d<sub>5/2</sub>(98 eV)、5p<sub>3/2</sub>(200 eV)等, U 元素以化合及氧化状态存在于表面, F 元素 1s 峰、O 元素 1s 峰和 C 元素 1s 峰结合能分别为 686, 532 和 284 eV。随着温度升高(图中谱线由下至上), 各元素结合能峰位有所位移, 峰高增强或降低甚至消失, 并且各元素可能有多种化学状态存在。其中, O 1s 峰不断增强, 说明生成的铀氧化物不断增加; F 1s 峰不断减弱直至消失, 即铀的氟化物在高温(≥400 °C)下基本是完全转变为铀的氧化物; C 1s 峰强度变化不大, 代表非束缚碳或称为“石墨碳”碳元素的峰, 则是由环境气氛引入固有存在的碳。

图 3 为 UF<sub>4</sub> 不同温度时效后 U 4f 区域窄能量扫描的 XPS 谱, 对应 U 4f 峰位及卫星峰位如表 2 所示, 表 3 为文献[23,24]报道不同铀氧化物 U 4f 及其卫星峰有关参数。由图表看出, UF<sub>4</sub> 在空气中经过不同温度时效后 U 4f 峰位有所位移, 说明生成了多种氧化物铀相: UO<sub>2</sub>、UO<sub>2+x</sub>、UO<sub>3</sub>、UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>、U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 等。

2.3 不同温度时效的反应速率

在 (25±5) °C, 相对湿度 50%~60% 下, 利用马弗炉开展 UF<sub>4</sub> 在空气中热化学反应的实验研究, 分别进行了 17 个不同温度点和时间段的实验工作。设单位时间 (h) 内 UF<sub>4</sub> 样品的质量变化为反应速率 K (g/h), 以 lnK 与 1000/T 做图, 图 4 为 UF<sub>4</sub> 样品在空气中不同温度时效 lnK 与 1000/T 的 Boltzmann 拟合曲线, R<sup>2</sup> = 0.994, 拟合得到的反应方程如下:

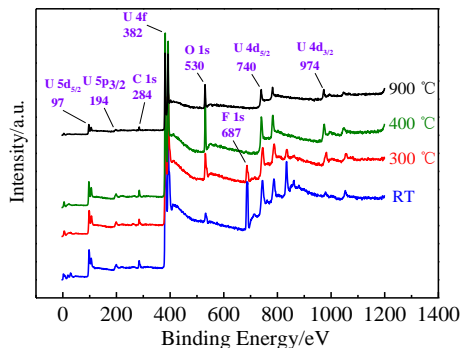


图 2 UF<sub>4</sub> 在空气中不同温度时效后 XPS 全谱变化情况  
Fig.2 XPS full spectra of UF<sub>4</sub> materials after aging at different temperatures in air

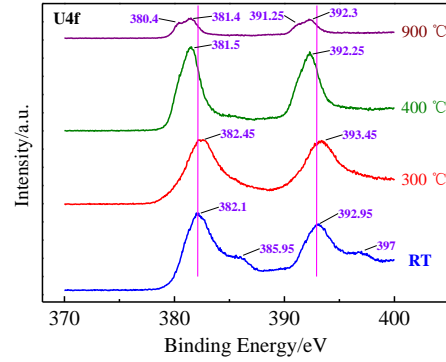


图 3 UF<sub>4</sub> 在空气中不同温度时效后 XPS U 4f 谱变化比较  
Fig.3 U 4f spectra of UF<sub>4</sub> materials after aging at different temperatures in air

表 2 UF<sub>4</sub> 在空气中不同温度时效后 U 4f 峰位变化情况

Table 2 U 4f peak binding energies of UF<sub>4</sub> after aging at different temperatures and for different time in air (eV)

Temperature	U 4f <sub>5/2</sub>	U 4f <sub>7/2</sub>	Satellite peaks	Assignment
Initial, RT	393.0	382.1	397.0, 386.0	UF <sub>4</sub> , UO <sub>2</sub> F <sub>2</sub>
300 °C, 22 h	393.5	382.5	-	UF <sub>4</sub> , UO <sub>2</sub> F <sub>2</sub> , UO <sub>2+x</sub>
400 °C, 10 h	392.3	381.5	-	UO <sub>3</sub>
900 °C, 10 h	392.3	381.4	391.3, 380.4	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>

表 3 文献[23,24]报导不同铀氧化物 U 4f 及其卫星峰有关参数

Table 3 Comparison of binding energies of the U 4f and satellite peaks for different uranium oxides from references[23,24](eV)

Sample	U 4f <sub>5/2</sub>	FWHM	Satellite peaks	U 4f <sub>7/2</sub>	FWHM
UO <sub>2</sub>	391.3	~1.95	387.0, 398.0	380.4	1.95
UO <sub>2+x</sub>	391.5	~2.10	387.0, 398.0, 399.8	380.6	2.10
UO <sub>3</sub>	392.8	-	396.8, 402.8, 385.7	381.9	-
U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	392.6	~2.4	399.0, 402.5	381.7	2.40

$$y = -18.28 + \frac{12.16}{1 + \exp\left(\frac{x - 2.03}{0.16}\right)} \quad (1)$$

由图 4 看出, UF<sub>4</sub> 在空气中的化学反应可分为两个阶段: 200~400 °C 温度范围, 反应速率较快, 由于空气中存在 O<sub>2</sub> 和一定量 H<sub>2</sub>O(g) 的协同作用, 与 UF<sub>4</sub> 复合化学反应生成的多种铀化合物主要出现在此温度范围; 400 °C 以上温度条件反应速率较慢, 则是以反应生成或铀化合物转化成 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 为主。

根据 Arrhenius 方程: lnK=lnA-E<sub>a</sub>/RT, 对 UF<sub>4</sub>

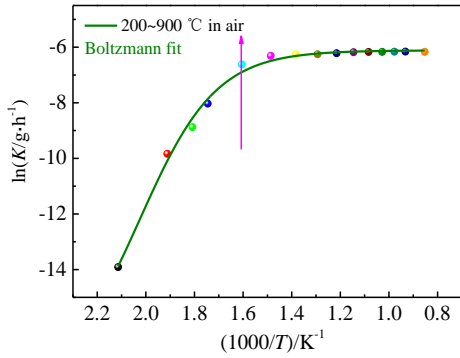


图 4 UF<sub>4</sub> 在空气中不同温度时效的 lnK 与 1000/T 拟合曲线  
Fig.4 Fitting curve of lnK and 1000/T of UF<sub>4</sub> after aging at different temperatures and for different time in air

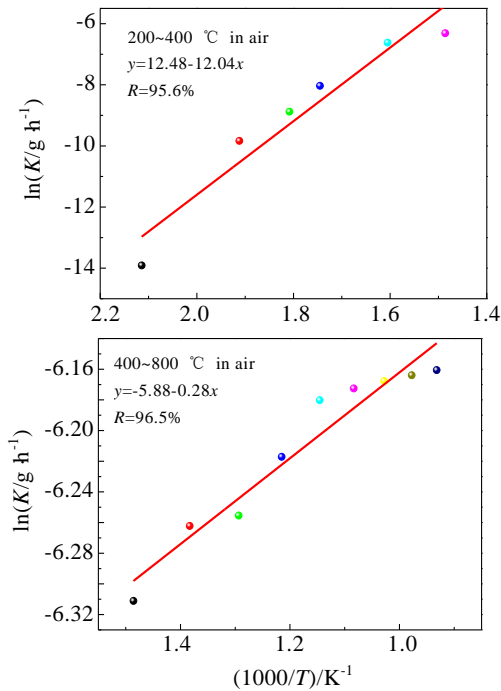


图 5 UF<sub>4</sub> 在空气中不同温度时效 lnK 与 1000/T 的线性拟合  
Fig.5 Fitting calibration curves and linear equations of lnK vs 1000/T of UF<sub>4</sub> after aging at different temperatures and for different time in air

样品在空气中不同温度时效的 lnK 与 1000/T 关系进行分段 (400 °C 为界点) 线性拟合 (图 5 所示)。

将拟合得到的线性方程相关参数带入 Arrhenius 方程, 分别得出:

$$A_1 = 2.63 \times 10^5, E_{a1} = 1.00 \times 10^5 \text{ J/mol (200~400 } ^\circ\text{C)};$$

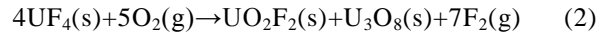
$$A_2 = 2.79 \times 10^{-3}, E_{a2} = 2.33 \times 10^3 \text{ J/mol (400~800 } ^\circ\text{C)}。$$

由上可知, UF<sub>4</sub> 在空气中热化学反应两个阶段的

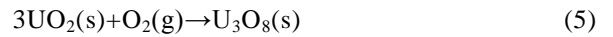
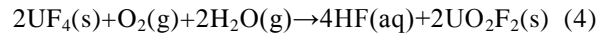
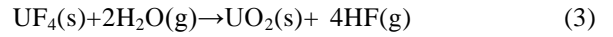
表观活化能大约相差 2 个数量级。

综上所述, 并结合相关文献资料报道, 空气中 UF<sub>4</sub> 不同温度时效的复杂化学反应可归纳如下:

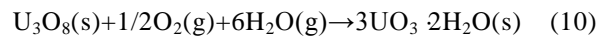
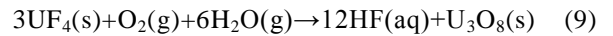
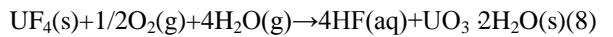
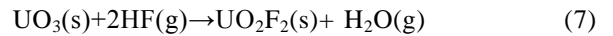
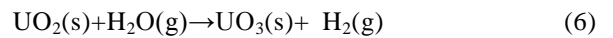
(1) 干燥空气中, UF<sub>4</sub> 在 300~600 °C 范围内主要生成 UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 和 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> :



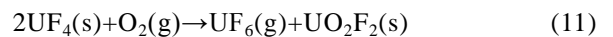
(2) 有水存在时, UF<sub>4</sub> 水解的同时还会生成 UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>, 并且 UO<sub>2</sub> 也可转化为 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>:



(3) 水解生成的 UO<sub>2</sub> 也可能被水汽氧化, 氧化后生成的 UO<sub>3</sub> 再被 HF 氟化为 UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>:



(4) 更高温度 (≥700 °C) 条件, UF<sub>6</sub> 的挥发而使铀损失:



### 3 结 论

1) 通过相关实验条件的设计与控制, 开展了 UF<sub>4</sub> 在空气中热化学反应特性研究, 获取实验条件下反应前后不同铀化合物的 Raman 和 XPS 变化谱图。

2) 200~400 °C 温度范围, UF<sub>4</sub> 热化学反应速率增大 (表观活化能 E<sub>a</sub> 约 10<sup>5</sup> J/mol), 主要是由于生成了多种铀的氧化物相: UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>、U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>、UO<sub>2</sub> 或 UO<sub>2+x</sub>、UO<sub>3</sub> 等。

3) 400 °C 以上温度条件, 反应速率变慢 (表观活化能 E<sub>a</sub> 约 10<sup>3</sup> J/mol), 主要是氧化物铀相之间的转化反应, 并最终全部转变为 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>。

4) UF<sub>4</sub> 在空气中的热化学反应速率呈现由快到慢的变化趋势。

致谢: 在实验过程中, 罗丽珠、陈志磊、蔡定洲等同事提供了诸多有益的分析数据和资料, 在此表示衷心地感谢。

### 参考文献 References

[1] Katz J J, Rabinowitz E. *The Chemistry of Uranium*[M]. New York: Mc-Graw-Hill Book Co Ltd, 1951

[2] Cordfunke E H P. *The Chemistry of Uranium*[M]. Amsterdam-London-New York: Elsevier Publ Co, 1969

[3] Walker S M, Halasyamani P S, Allen S *et al.* *J Am Chem Soc*[J], 1999, 121: 10 513

[4] Song Weidandan(宋维端). *Study on Kinetics Mechanism of*

- Pyrohydrolysis Reaction about UF<sub>4</sub> and UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> with Steam-gas* (UF<sub>4</sub> 和 UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 与过热蒸汽作用的动力学机理的研究)[R]. Beijing: Technological Information Institute of China, 1965
- [5] Kang Shifang(康仕芳), Zhao Jun(赵君). *Journal of Nuclear and Radiochemistry*(核化学与放射化学)[J], 1998, 20(4): 202
- [6] Dong Xiaoyu(董晓雨), Zheng Xiaobei(郑小北), Song Yulong(宋昱龙). *Journal of Nuclear and Radiochemistry*(核化学与放射化学)[J], 2014, 36(3): 181
- [7] Wu Jingguang(吴瑾光). *Recent Advances and Application in Technology of Fourier Transform Infrared Spectroscopy*(近代傅里叶变换红外光谱技术及应用)[M]. Beijing: Science Techniques and Literature Press, 1994
- [8] Chu Mingfu(褚明福), Zou Lexi(邹乐西), Zhong Jingrong(仲敬荣). *Chinese Journal of Rare Metals*(稀有金属)[J], 2005, 29(1): 106
- [9] Ruan C, Luo W, Wang W *et al.* *Analytica Chimica Acta*[J], 2007, 605: 80
- [10] Siekhaus W J. *Composition of Uranium Oxide Surface Layers Analyzed by  $\mu$ -Raman Spectroscopy*[R]. Boston: Lawrence Livermore National Laboratory, 2003
- [11] Zhong Jingrong(仲敬荣), Chu Mingfu(褚明福), Xiao Sa(肖洒) *et al.* *Journal of Nuclear and Radiochemistry*(核化学与放射化学)[J], 2010, 23(1): 27
- [12] Zhong Jingrong(仲敬荣), Xiao Sa(肖洒), Chu Mingfu(褚明福) *et al.* *China Measurement & Test*(中国测试)[J], 2009, 35(2): 112
- [13] Chu Mingfu(褚明福), Meng Daqiao(蒙大桥), Zou Lexi(邹乐西) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2009, 38(4): 627
- [14] Nagelberg A S, Ottesen D K. *Corrosion Behavior of Lean Uranium-titanium Alloys*[R]. Washington, DC: Sandia National Laboratory, 1980
- [15] Yu B Z, Hansen W N. *Mikrochim Acta*[J], 1988, 94(1): 189
- [16] Caculitan N, Siekhaus W J. *The Growth of Epitaxial Uranium Oxide Observed by Micro-Raman Spectroscopy*[R]. Boston: Lawrence Livermore National Laboratory, 2005
- [17] Lefevre G, Kneppers J, Fedoroff M. *J Colloid Interface Sci*[J], 2008, 327: 15
- [18] Roeper D F, Chidambaram D, Halada G P *et al.* *Electrochimica Acta*[J], 2006, 51: 4815
- [19] Liu Shihong(刘世宏), Wang Danghan(王当憨), Pan Chenghuang(潘承璜) *et al.* *X-ray Photoelectron Spectra Analysis*(X 射线光电子能谱分析)[M]. Beijing: Science Press, 1980
- [20] Stephen Paul Anderson. *A Study of the Hydrolysis of Uranium Hexafluoride by Fourier Transform Infrared Spectroscopy*[R]. Knoxville: The University of Tennessee, 1982
- [21] Bostick W D, McCulla W H, Pickrell P W. *Sampling, Characterization, and Remote Sensing of Aerosols formed in the Atmospheric Hydrolysis of Uranium Hexafluoride*[R]. Tennessee: Martin Marietta Energy Systems Inc, Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant, 1984
- [22] Pointurier F, Marie O. *Spectrochimica Acta Part B*[J], 2010, 65: 797
- [23] Zuo Changming(左长明), Zhao Chunpei(赵纯培), Wang Xiaolin(汪小琳) *et al.* *Transaction of Sichuan University Natural Science*(四川大学学报, 自然科学版)[J], 1998, 35(3): 424
- [24] Wang Xiaolin(汪小琳), Fu Yibei(傅依备), Xie Renshou(谢仁寿) *et al.* *Nuclear Techniques*(核技术)[J], 1997, 20(4): 210

## Thermal Chemical Reaction Activation of UF<sub>4</sub> in Air

Zhong Jingrong, Yu Chunrong, Deng Hui, Ren Yiming  
(China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

**Abstract:** Thermal chemical reaction characteristics of UF<sub>4</sub> material in air were investigated by micro-laser Raman spectroscopy (MLRS), X-ray photoelectron spectroscopy (XPS), weighing and morphology observation. Based on the physical and chemical properties of UF<sub>4</sub>, we have obtained the Raman and XPS spectra of different uranium compounds after heating at stated temperatures and for different time. The results indicate that UF<sub>4</sub> sample is equivalent stable until it is heated to 200 °C in air, and its Raman spectra almost do not change. But when heated above 250 °C in air, the surface color of UF<sub>4</sub> sample changes obviously, multiform uranium compounds are formed such as UO<sub>2</sub>, UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>, U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> from Raman and XPS analysis. On the other hand, the chemical reaction rate of UF<sub>4</sub> in air shows a trend from fast to slow.

**Key words:** uranium tetrafluoride (UF<sub>4</sub>); Raman spectroscopy; XPS; chemical reaction; air

Corresponding author: Ren Yiming, Ph. D., China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, P. R. China, Tel: 0086-816-3626995, E-mail: renyiming@caep.cn