

Для тангенциального компонента в случае $\dot{N}^* \gg \gamma^{-3}$ первый член разложения (12) имеет вид

$$F_{||}^{(0)}(\dot{N}^*) = \frac{8}{3} + \frac{2(1+u^2+2u^4)}{u^2(1+u^2)^3} - \frac{\dot{N}^{*2}}{2\pi^2} + \\ + \frac{12\dot{N}^*}{\pi} \int_0^\infty \frac{dz}{\exp\{p(z^2)\}-1} \left[\frac{1}{9+4z^2} - \frac{6}{(9+4z^2)^2} - \right. \\ \left. - \frac{3-4z^2}{(3+4z^2)^2} \right] + \frac{18\dot{N}^*}{\pi} \int_0^\infty \frac{dz}{z} \frac{d}{dz} \times \\ \times \left(\frac{1}{(9+4z^2)(\exp\{p(z^2)\}-1)} \right). \quad (16)$$

В предельном случае $\gamma^{-3} \ll \dot{N}^* \ll 1$ из формулы (16) получим

$$F_{||}^{(0)}(\dot{N}^* \rightarrow 0) = - \left(\frac{1}{3} + \frac{\sqrt{3}}{2\pi} \right). \quad (17)$$

В обратном предельном случае при $\dot{N}^* \gg 1$ для первого члена разложения (12) имеем

$$F_{||}^{(0)}(\dot{N}^* \rightarrow \infty) = \frac{112}{3} \frac{\pi^2}{\dot{N}^{*2}}. \quad (18)$$

Полученные результаты показывают, что при расчете эффектов интенсивности желательно учитывать точные формулы поля частицы и дискретность тока пучка.

В заключение авторы считают своим приятным долгом поблагодарить А. Ц. Амадуни за многочисленные полезные обсуждения проблемы и ценные замечания.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Брук Г. Циклические ускорители заряженных частиц. М., Атомиздат, 1970.
2. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Теория поля. М., «Наука», 1973.
3. Уиттекер Э., Ватсон Дж. Курс современного анализа. Ч. 1. М., Физматгиз, 1963.
4. Амадуни А. Ц., Арутюнян С. Г. Препринт ЕФИ-288 (13). Ереван, 1978.
5. Труды 5-го Всесоюз. совещ. по ускорителям заряженных частиц. Т. II. М., «Наука», 1977.

Поступила в Редакцию 08.01.79

УДК 621.384.83—034.822

Изотопный анализ нанограммовых проб урана

ГАЛЛЬ Р. Н., КОРОЧКИН А. М., ЛЕДНЕВ В. А., СОКОЛОВ Б. Н., ВЯЧИН В. Н.

При масс-спектрометрическом изотопном анализе твердых проб в ядерной физике, геологии и космохимии часто встречаются аналитические задачи, которые необходимо решить, располагая чрезвычайно малым, вплоть до 10^{-10} г, количеством анализируемого вещества. В этих случаях к аппаратуре и методике измерений предъявляются специфические требования, в частности чувствительность масс-спектрометра должна быть очень высокой. Это может быть достигнуто использованием метода поверхностной ионизации в источнике ионов, вторично-электронного умножителя в системе регистрации ионных токов и дискретной развертки масс-спектра. Применение последней значительно уменьшает потери пробы в течение анализа, и при одновременном сокращении времени анализа позволяет повысить его точность.

При анализе малых проб возрастают требования к соблюдению повторяемости условий анализа, так как даже небольшие отступления от них, например во временном режиме или вакуумных условиях, вызывают заметную невоспроизводимость результатов измерений. Для стандартизации временного режима измерений следует применять автоматизированные системы регистрации с последующей автоматической обработкой результатов измерений. Для обеспечения одинаковых вакуумных условий желательно не применять

источники ионов, требующие вскрытия масс-спектрометра для смены анализируемой пробы. В масс-спектрометре должен быть мал уровень «памяти» от предшествующих проб, что особенно существенно при анализах проб, сильно различающихся по изотопной распространенности или по величине.

Перечисленные условия для анализа малых проб с высокой точностью в большой мере обеспечены в масс-спектрометре МИ1320 [1, 2]. Этот прибор обладает высокими техническими характеристиками: коэффициент использования пробы 0,05%, порог чувствительности $2 \cdot 10^{-13}$ г, изотопическая чувствительность $3 \cdot 10^{-6}$, сходимость и воспроизводимость измерений изотопных отношений при отношении 1 : 100 составляет приблизительно $\leq 0,1$ и $\leq 0,05$ отн. % соответственно. Эти характеристики относятся к пробам урана с природным или близким к природному содержанию изотопов, причем для обеспечения точностных параметров использовались относительно большие навески проб ($\sim 1 \cdot 10^{-4}$ г по урану).

В настоящей работе описываются результаты исследований по достижимой точности анализа на масс-спектрометре МИ1320 нанограммовых проб урана. В качестве пробы использовали раствор в азотной кислоте концентрации 0,3 н. уранилнитрата с естественной распространенностью изотопов (табл. 1).

Таблица 1

Концентрации использованных растворов в пересчете на уран при разных навесках проб, ионный ток $^{238}\text{U}^+$ и напряжение на умножителе

Проба, г	Концентрация раствора, г/мл	$^{238}\text{U}^+$, А	$U_{\text{умн}}$, кВ
10^{-6}	10^{-3}	$2,5 \cdot 10^{-11}$	2,3
10^{-7}	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-13}$	3,4
10^{-8}	10^{-4}	$7 \cdot 10^{-14}$	3,8
10^{-9}	10^{-5}	$2 \cdot 11^{-14}$	4,0

Для нанесения пробы использовали кварцевый капилляр диаметром 0,2 мм, который перед нанесением пробы несколько раз промывали раствором уранилнитрата данной концентрации для установления равновесия между концентрацией урана в колбе и внутри капилляра. Для растворов различной концентрации использовали новые капилляры. Погрешность в определении массы наносимой пробы составляла 10–12%. Пробу из капилляра на ленту-испаритель источника ионов переносили небольшими каплями, причем первые капли высушивали при комнатной температуре, а для высушивания последующих капель испаритель подогревали прямым пропусканием электрического тока. Такая методика позволяла предотвратить растекание раствора по испарителю и иметь на испарителе пробу, локализованную в средней его части на участке 1–1,5 мм.

Для каждой пробы проводили серию из шести анализов, в каждом снимали 14–16 масс-спектров $^{238}\text{U}^+$ и $^{235}\text{U}^+$. Спектры записывали в режиме дискретной развертки, интенсивность каждого пика измеряли цифровым вольтметром класса 0,02, результаты измерений поступали в ЭВМ масс-спектрометра, где подвергались математической обработке. При этой обработке результаты измерений интенсивностей каждого пика усредняли, вводили поправку на изменение ионного тока во времени, на дрейф нулевого уровня электрометрических усилителей, вычисляли среднее по анализу изотопное отношение и сходимость результатов измерений. Сходимость результатов измерений вычисляли как среднее квадратическое отклонение разового изотопного отношения от его среднего значения и приписывали как погрешность к результату анализа.

По серии анализов для каждой пробы вычисляли среднее арифметическое значение изотопного отношения и воспроизводимость результатов измерений, рассчитываемую как среднее квадратическое отклонение результатов разового анализа от среднего значения и принимаемую за погрешность измерений. Для каждого анализа использовали новую сменную плату, несущую испарители (вольфрамовая лента $10 \times 0,6 \times 0,02$ мм) и ионизатор (рениевая лента $10 \times 0,8 \times 0,02$ мм).

Перед анализом сменный блок источника ионов с платой подвергали обезгаживанию в течение 2–3 ч в камере тренировки сменных блоков, которое заключалось в общем прогреве сменного блока в вакууме до температуры 250–300 °С и прогреве лент проходящим через них током испарителей (2 А) и ионизатора (3 А). Перед обезгаживанием сменные блоки подвергались механической чистке с последующей промывкой чистым этиловым спиртом. Такая чистка в совокупности с обезгаживанием обеспечивала малый уровень памяти масс-спектрометра. Для проверки памяти в источник ионов вводили сменный блок без нанесения пробы и устанавливали рабочий режим источника. На умножителе регистрировали ток ионов $^{238}\text{U}^+$. При тщательной очистке сменного блока уровень памяти по $^{238}\text{U}^+$ не превышал $3 \cdot 10^{-19}$ А и находился на пределе чувствительности прибора.

Обезгаженный сменный блок с нанесенной пробой через шлюзовое устройство вводили в источник ионов. По задаваемой программе медленно увеличивали ток накала ионизатора и испарителей до достижения тока 1 А на испарителях и 3 А на ионизаторе, затем увеличивали только ток накала ионизатора до установления рабочего режима. Рабочий режим проверяли по ионному току $^{187}\text{Re}^+$, который на коллекторе приемника ионов составлял 10^{-13} А. Данный режим обеспечивал достаточно высокую эффективность ионизации и долговечность работы ионизатора. Затем увеличивали ток накала испарителей до установления рабочего тока $^{238}\text{U}^+$ (см. табл. 1), после небольшой выдержки в течение 10–12 мин проводили анализ и определяли изотопное отношение $R_U = ^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$. Такая выдержка перед анализом необходима для обеспечения стабильности во времени измеряемых ионных токов. При данной методике подготовки пробы для анализа обеспечивался стабильный ионный ток, значение которого изменялось менее чем на 10% за время анализа ($\sim 10 \div 15$ мин).

При работе с электронным умножителем устанавливалась интенсивность ионного тока $^{238}\text{U}^+$, соответствующая падению напряжения на входном сопротивлении электрометрического усилителя 17 В. Это достигалось изменением коэффициента усиления электронного умножителя, что позволяло создать частично воспроизводимые условия анализа, так как при них погрешность анализа, обусловленная нелинейностью входного сопротивления электрометрического усилителя, была постоянной.

Измерения проводили при разрешающей способности масс-спектрометра $R_{10\%} = 400$, давлении остаточных газов в анализаторе $p = 5 \cdot 10^{-9}$ мм рт. ст. (1 мм рт. ст. = 133,322 Па), что обеспечивало изотопическую чувствительность на соседних массах урана $\sim 5 \cdot 10^{-6}$.

Таблица 2

Результаты измерения R_U с применением электронного умножителя

Номер анализа	Проба, г			
	10 ⁻⁶	10 ⁻⁷	10 ⁻⁸	10 ⁻⁹
1	136,40±0,22	136,35±0,68	136,34±1,48	137,22±1,66
2	136,52±0,31	136,49±0,49	136,91±0,74	138,06±0,73
3	136,27±0,25	136,51±0,77	137,28±1,02	137,01±1,73
4	136,57±0,41	136,08±0,72	136,99±1,85	137,82±0,90
5	136,29±0,19	136,75±0,49	138,09±0,68	137,34±1,00
6	136,36±0,22	136,46±1,31	137,25±1,11	137,95±1,05
Средние значения				
	136,40±0,13	136,44±0,22	137,14±0,57	137,56±0,43
Корректированные значения				
	137,78	137,82	138,56	138,95
Средняя сходимость, отн. %				
	0,20	0,54	0,84	0,86
Воспроизводимость, отн. %				
	0,1	0,16	0,42	0,31

Измерения R_U природного урана для различных навесок проб проводили с применением вторично-электронного умножителя (табл. 2), и результаты анализа искажены дискриминационными эффектами в умножителе [3—5]. Для учета влияния дискриминаций была проведена серия анализов пробы $1 \cdot 10^{-6}$ г с применением вместо умножителя коллектора ионов типа цилиндра Фарадея (табл. 3). При пробе $1 \cdot 10^{-6}$ г оказалось возможным получить интенсивные, стабильные во времени ионные токи $^{238}\text{U}^+ \approx (2 \div 3) \cdot 10^{-11}$ А, что вполне достаточно для измерений на коллекторе ионов с воспроизводимостью $\sim 0,11$ отн. %, т. е. с той же точностью, как и для проб природного урана, в 100 раз больших ($\sim 10^{-4}$ г), а время выхода источника ионов на рабочий режим при навесках проб $1 \cdot 10^{-6}$ г в 2—3 раза меньше при общем уменьшении времени анализа на 50—70%.

Сравнивая результаты, приведенные в табл. 2 и 3, можно видеть, что средние значения R_U , полученные с применением коллектора и умножителя, заметно различаются, причем на умножителе получены меньшие значения R_U . Значение R_U , полученное с применением коллектора (табл. 3), соответствует данным других авторов для природного урана [6], т. е. масс-спектрометр не обладает заметной систематической погрешностью, и различие между $R_{U\text{умн}}$ и $R_{U\text{кол}}$ следует приписать дискриминационным эффектам в умножителе.

Воспроизводимость результатов измерений для пробы 10^{-6} г примерно одинакова в обоих случаях, т. е. умножитель при данной точности измерений не вносит заметного вклада в случайную составляющую погрешности измерений. При уменьше-

нии навески пробы возрастали и среднее значение R_U (см. табл. 2), и случайная погрешность измерений. Возрастание R_U обусловлено, по-видимому, в основном двумя причинами: возрастанием роли фракционирования в источнике ионов в период выхода источника ионов на рабочий режим и различием зависимости коэффициента усиления умножителя от напряжения на нем для ионов разных масс. Третья возможная причина — фракционирование изотопов урана при осаждении пробы из раствора на стенках капилляра во время нанесения пробы — в настоящее время практически не изучена.

Для подтверждения роли фракционирования в источнике ионов при малых пробах проводились три последовательных анализа одной и той же пробы (10^{-8} г) при неизменном напряжении на умножителе. Длительность каждого анализа составляла 10 мин. Результаты располагались таким образом: $R_{U_1} = 138,09$; $R_{U_2} = 138,59$; $R_{U_3} = 138,81$, т. е. за 20 мин изотопное отношение $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ увеличилось на 0,5 отн. %. Время выхода источника ионов на рабочий режим после включения тока накала испарителей для пробы 10^{-8} г составляет также 20 мин, т. е. при этом возможно обогащение ^{238}U на несколько десятых процента.

Различие коэффициента усиления умножителя обусловлено в основном процессами эмиссии электронов из первого динода умножителя при бомбардировке его ионами разных масс. Учитывая, что

$$I_{эл} = I_{ион} K_{умн} = I_{ион} \gamma K_{эл}, \quad (1)$$

где $I_{эл}$ — выходной электронный ток умножителя; $I_{ион}$ — входной ионный ток; $K_{умн}$ — коэффициент усиления умножителя; γ — коэффициент вторичной ионно-электронной эмиссии первого динода для данного сорта ионов, а $K_{эл}$ — коэффициент усиления электронного тока умножителя, получаем для изотопов 1 и 2 какого-либо элемента:

$$R_{U\text{умн}} = \frac{I_{1эл}}{I_{2эл}} = \frac{I_{1ион}}{I_{2ион}} \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \frac{K_{1эл}}{K_{2эл}}. \quad (2)$$

Если значения ионных токов $I_{1ион}$ и $I_{2ион}$ таковы, что умножитель далек от режима насыщения, то $K_{эл}$ не зависит от входного ионного тока и

$$R_{U\text{умн}} = R_{U\text{кол}} (\gamma_1/\gamma_2) = R_{U\text{кол}} \alpha, \quad (3)$$

Таблица 3

Результаты измерения R_U для проб 10^{-6} г с применением коллектора ионов (воспроизводимость 0,11 отн. %)

Номер анализа	$^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$	Сходимость, отн. %	Номер анализа	$^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$	Сходимость, отн. %
1	137,81±0,31	0,22	4	137,78±0,25	0,18
2	138,02±0,38	0,27	5	137,80±0,30	0,21
3	137,66±0,35	0,35	6	137,60±0,31	0,22

где $\alpha = \gamma_1/\gamma_2$ — коэффициент дискриминаций множителя.

Поскольку механизм потенциального выбивания электронов в данном случае отсутствует (потенциал ионизации урана $U_i = 6,08$ В [7]), работа выхода медно-бериллиевого сплава $e\phi = 4,2$ эВ [8], то для скоростей ионов $V_i < 3 \cdot 10^5$ м/с, что для урана соответствует энергии $E_i < 100$ кэВ, зависимость γ от энергии иона можно представить в следующем виде [9]:

$$\gamma_i = c_i (V_i^2 - V_0^2), \quad (4)$$

где V_0 — пороговое значение скорости иона, соответствующее началу кинетической эмиссии; c_i — некоторая постоянная для данной пары мишень — ион. Для поверхностей, покрытых газовой пленкой, $V_0 \approx 0$ [9], и при наличии изотопического эффекта для пробы 10^{-6} г получаем

$$1/\alpha = \frac{c_1}{c_2} \left(\frac{V_1}{V_2} \right)^2 = \frac{R_{U \text{ кол}}}{R_{U \text{ умн}}} = 1,010, \quad (5)$$

откуда $c_1/c_2 = C = 0,997$, т. е. изотопический эффект, обусловленный разницей масс ^{238}U и ^{235}U , с учетом погрешности измерений составляет $(0,3 \pm 0,2)\%$. Учитывая формулы (3) и (5), можно провести коррекцию R_U , измеренных с помощью множителя (см. табл. 2). Сравнивая эти значения для разных проб, можно сделать вывод о том, что основной вклад в возрастание R_U при уменьшении пробы вносят эффекты фракционирования в источнике ионов, которые начинают заметно сказываться при пробах $< 10^{-7}$ г. Коэффициент дискриминаций множителя обусловлен в основном различием скоростей ионов разных изотопов.

Возрастание случайной составляющей погрешности измерений при уменьшении пробы происходит, на наш взгляд, в основном за счет увеличения статистических флуктуаций ионного тока

^{235}U , так как при малых пробах не удается получить стабильные в течение длительного времени ионные токи достаточной интенсивности. Так, при пробе 10^{-9} г $I_{^{235}\text{U}} \approx 1,5 \cdot 10^{-16}$ А (см. табл. 1), что приводит к статистическим флуктуациям $\sim 1\%$ за время измерения на одном пике 10 с. При увеличении времени анализа погрешность уменьшается из-за увеличения влияния процессов фракционирования в источнике ионов. Кроме того, на результат анализа при малых пробах сильно влияют малые вариации условий проведения анализа.

Несмотря на приведенные выше факторы, воспроизводимость измерений не превышала 0,45% при пробах вплоть до 10^{-9} г. Поскольку порог чувствительности масс-спектрометра МИ1320 составляет $2 \cdot 10^{-13}$ г, то принципиально возможен анализ пробы природного урана 10^{-10} г, в которой содержание ^{235}U составляет $7 \cdot 10^{-13}$ г, что является достаточным для записи нескольких масс-спектров урана.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Павленко В. А. и др. В кн.: VI Всесоюзный симпозиум по стабильным изотопам в геохимии. Тезисы докладов. М., 1976, с. 227.
2. Галль Р. Н. и др. «Научные приборы», 1978, № 15, с. 19.
3. Van Gorkom M., Glick K. «Intern. J. Mass Spectrom. Ion Phys.», 1970, v. 4, N 3, p. 203.
4. Lao R. e.a. Ibid., 1973, v. 10, N 3, p. 309.
5. Pottier R. e.a. Ibid., 1973, v. 11, N 1, p. 41.
6. Kienitz H. Massenspektrometrie, Verlag Chemie GmbH, Weinheim, 1968.
7. Бакулина И. Н., Ионов Н. И. ЖЭТФ, 1959, т. 36, с. 1001.
8. Фоменко В. С. Эмиссионные свойства материалов. Киев, «Наукова думка», 1970.
9. Добрецов Л. Н., Гомоюнова М. В. Эмиссионная электроника. М., «Наука», 1966.

Поступила в Редакцию 04.07.78
В окончательной редакции 23.05.79

Рефераты статей

УДК 621.039.6.621.039.573

Васильев В. Р., Ершова З. В., Дмитриевская Е. В. Литиевая зона в бланкете термоядерного реактора. — «Атомная энергия», 1980, т. 48, вып. 5, с. 283.

Проанализированы функциональные задачи и условия работы зоны воспроизводства трития бланкета термоядерного реактора для концепции чистого и гибридного вариантов. И в чистом и в гибридном реакторах литиевая зона является зоной воспроизводства трития. Проведена оценка ожидаемой температуры в литиевой зоне реактора-токамака и рассмотрены условия работы зоны воспроизводства трития в бланкете (рис. 4, табл. 2, список литературы 31 наименование).

УДК 621.039.516.6

Комиссаров О. В., Логоша Н. И., Минашин М. Е., Солдатов Г. Е., Филиппова Н. В., Шаронов В. Н. Температурный режим графитовой кладки реакторов Билибинской АТЭЦ. — «Атомная энергия», 1980, т. 48, вып. 5, с. 287.

Излагаются особенности активной зоны реакторов, влияющие на температурный режим графитовой кладки. Тепло, выделяющееся в кладке, отводится к технологическим каналам и каналам СУЗ. Описывается подход к выбору газовых зазоров в конструкции каналов, в основном определяющих температуру графита. Приводятся расчетные и экспериментальные данные по температуре графита. Максимальная температура графита при номинальной мощности реакторов составляет 510°C (рис. 9, список литературы 3 наименования).

УДК 621.039.58:621.039.526.004.6

Кизин В. Д., Поляков В. И., Чечеткин Ю. В., Левин Л. М. Вопросы безопасности при ремонтных работах на АЭС БОР-60. — «Атомная энергия», 1980, т. 48, вып. 5, с. 291.

Проведен анализ ремонтных работ на АЭС БОР-60, связанных с извлечением оборудования из натрия первого контура. Радиационную обстановку после работы реактора с разгерметизированными твэлами определяют γ -излучение ^{137}Cs , а загрязнение поверхностей оборудования — ^{140}Ba — ^{140}La и ^{90}Nb . Аэрозольная активность и загрязнение рабочих мест радиоактивными продуктами не создавали трудностей при проведении ремонтных работ. Облучение персонала при отдельных работах составляло 0,1—3 бэр, средняя доза облучения одного человека из персонала не превышала 0,5 бэр в год. Отмечены положительные и отрицательные факторы, влияющие на радиационную обстановку АЭС с натриевым теплоносителем (табл. 2, список литературы 2 наименования).

УДК 621.039.56

Торлин Б. З. Влияние размещения датчиков на азимутально-радиальную устойчивость реактора. — «Атомная энергия», 1980, т. 48, вып. 5, с. 297.

Цилиндрический реактор в одноступенчатом диффузионном приближении управляется тонкими регулирующими стержнями. Показано, что от размещения датчиков, формирующих управляющие сигналы, зависит устойчивость системы. Рассмотрен ряд примеров. Наиболее устойчивым из рассмотренных оказался реактор, управляемый семью локальными автоматическими регуляторами (рис. 2, список литературы 10 наименований).

Продолжение см. на с. 339