

сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
Дубна

2371 / 2-80

2/6-80
12-80-48

И.Звара, В.П.Доманов, М.Р.Шалаевский,
Д.В.Петров

ОПЫТЫ ПО ПЕРЕНОСУ
ПРОДУКТОВ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ
АЭРОЗОЛЬНОЙ СТРУЕЙ

1980

кр. к вх. 519
от 16.02.81.

Идентификация многих короткоживущих изотопов стала возможной только благодаря разработке быстрых и эффективных способов механической транспортировки продуктов ядерных реакций от облучаемой мишени к детекторам излучения. Так, Макферлан^{/1/} предложил для этой цели метод "гелиевой струи", в котором атомы отдачи из мишени термализуются в объеме, заполненном гелием при давлении $0,5 \pm 1$ атм., а газ откачивается мощным насосом через капилляр, чтобы добиться быстрого переноса активности благодаря высокой линейной скорости газа-носителя.

Оказалось^{/2-7/}, что хорошая эффективность переноса на заметные расстояния достигается только при наличии в газе-носителе различных примесей: паров масла, воды и т.д., в то время как, например, в токе очень чистого гелия через тефлоновый капилляр с диаметром 1 мм и длиной 1 м проходит менее 1% атомов^{/8/}. Очевидно, легко диффундирующие "свободные" атомы металлов и молекулы простых соединений быстро достигают стенок камеры^{/9/} и капилляра и необратимо адсорбируются, а эффективно транспортируются по газовому тракту лишь атомы, адсорбированные на аэрозолях и высокомолекулярных кластерах. Большая кинетическая энергия переносимых частиц и вакуум способствуют их эффективному высаживанию на сборнике, расположенном против выхода гелиевой струи из капилляра /в струе могут реализовываться сверхзвуковые скорости/. Разработка этой методики^{/10-13/} обобщается в обзоре^{/14/}.

Для идентификации изотопов иногда возникает необходимость в химическом разделении транспортируемых элементов. Использование стандартных химических методов при вакуумной откачке выхода капилляра существенно затруднено. В то же время в работах^{/15/} и^{/16/} перенос активности по капилляру осуществлялся в токе нагнетаемого гелия, а на выходе капилляра поддерживалось атмосферное давление. Такой метод транспортировки в комбинации с осуществлением химических операций рассмотрен в работах^{/15,17-20/}. Предлагаются как непрерывные^{/17,18/}, так и дискретные^{/15,19/} схемы разделения с использованием химии растворов. В работе^{/20/} описано разделение продуктов деления в газовой фазе. В качестве газа-носителя использовалась смесь этилена /образует кластеры/ с азотом. Газ поступал в реакционную камеру, куда добавлялись пары брома, а затем - в термохроматографическую колонку, в которой происходило непрерывное разделение образовавшихся бромидов.

Думая о возможности быстрых химических разделений для решения радиоаналитических задач, возникающих при изучении продуктов разнообразных ядерных реакций с тяжелыми ионами в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ, мы остановили свой выбор на аэрозольной струе с атмосферным давлением на выходе капилляра. Нами были выбраны аэрозоли хлористого натрия, поскольку они сравнительно легко получаются, соединение химически малоактивно и радиационно устойчиво ²¹. Это позволит в дальнейшем использовать аэрозоли NaCl в конкретных методиках термохроматографического разделения хлоридов, которые разрабатывались в нашей лаборатории.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ. РЕЗУЛЬТАТЫ

1. Аппаратурное оформление

На *рис. 1* изображена схема установки, на которой проводились эксперименты по определению эффективности переноса продуктов ядерных реакций от мишени на пучке циклотрона 8 до сборника 9 и испытывались различные способы сбора аэрозолей.

Аэрозоли NaCl образовывались в генераторе 7 конденсацией паров хлористого натрия в токе гелия. Перед входом в генератор газ-носитель очищался от возможных аэрозольных загрязнений на фильтре 3. Расход и давление газа контролировались реометрами 6 и 10 и манометрами 2 и 5. Заторможенные в мишенном объеме / камере / ядра отдачи адсорбировались на аэрозолях и в токе газа переносились по капилляру 11 к сборнику 9.

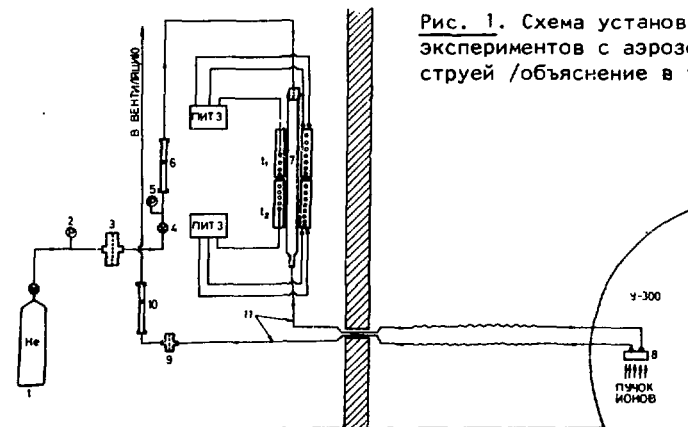


Рис. 1. Схема установки для экспериментов с аэрозольной струей /объяснение в тексте/.

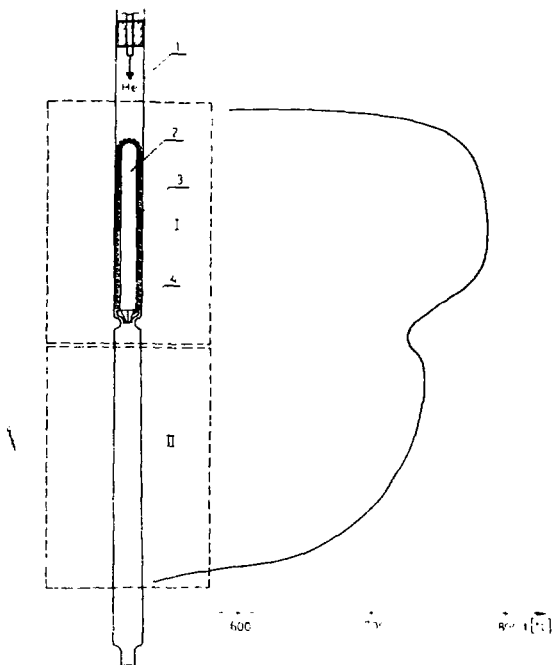


Рис. 2. Схема генератора и температурное распределение: 1 - кварцевый корпус, 2 - кварцевый вкладыш, 3 - кристаллы, 4 - ограничитель, I - верхняя печь, II - нижняя печь.

Конструкция генератора аэрозолей NaCl , использованного в настоящей работе, изображена на рис. 2. Генератор состоит из цилиндрического кварцевого корпуса 1 с внутренним диаметром 14 мм и длиной 55 см. Середина корпуса имеет сужение для закрепления ограничителя 4 /кварцевая пробка с продольными разрезами/, удерживающего кварцевый вкладыш 2 диаметром 8-9 мм. В зазор между внутренней стенкой корпуса и вкладышем помещены кристаллы NaCl размером 1-2 мм.

При попадании паров NaCl из верхней части генератора, нагреваемой печью I, в нижнюю, менее нагретую часть, обогреваемую печью II, происходит образование и формирование аэрозолей NaCl /спонтанное образование полидисперсных аэрозолей и затем выравнивание размеров частиц/. Для обеспечения устойчивой

работы генератора необходимо стабилизировать его тепловой режим. Постоянство температур обеих печей поддерживалось с точностью $\pm 0,1^\circ\text{C}$ с помощью прецизионных изодромных терморегуляторов типа ПИТ-3.

2. Некоторые характеристики генератора аэрозолей NaCl

Эмпирически был подобран следующий режим генератора: температура верхней печи $t_{\text{верх}} = 780^\circ\text{C}$, нижней - $t_{\text{низ}} = 740^\circ\text{C}$ и объемная скорость гелия $v_{\text{He}} = 1$ л/мин /норм. усл./ . Исходя из этих параметров были измерены основные характеристики генератора: производительность и устойчивость работы по времени, а также сделаны оценки концентрации и размеров аэрозолей.

Сбор аэрозолей производился на двухслойном волокнистом фильтре Петрянова ФП^{/22/}/проскок аэрозолей при площади фильтра 4 см^2 составляет $< 0,1\%$. По окончании эксперимента сборник переносился в кювету с дистиллированной водой и растворенный хлористый натрий оттитровывался по методу Мора^{/23/}. Содержание хлористого натрия - $c[\text{NaCl}]$ в аэрозольной струе на расстоянии $0,4-0,5$ м от генератора /трубка внутреннего диаметра 4 мм/ равно $25-26$ мкг/л, что составляет примерно 2% от концентрации насыщенного пара NaCl при 780°C . При длительной эксплуатации порядка нескольких суток $c[\text{NaCl}]$ уменьшается до $20-21$ мкг/л, что, по-видимому, можно объяснить уменьшением скорости испарения соли вследствие рекристаллизации и спеканием частиц^{/24/}.

Таблица 1

Содержание NaCl в аэрозольной струе при различных давлениях в генераторе. U - относительная линейная скорость газа в нижней части генератора

№ опыта	P /атм/	U /относ./	$c[\text{NaCl}]$ /мкг/л/
1	1	1,0	24,7
2	1	1,0	26,2
3	1	1,0	26,0
4	1,15	0,87	34,3
5	1,15	0,87	34,9
6	1,15	0,87	33,3
7	1,35	0,74	40,0
8	1,35	0,74	39,0
9	1,50	0,66	43,0
10	1,50	0,66	43,5

При заданном объемном расходе гелия, измеренном при нормальных условиях, $c_{[NaCl]}$ меняется в зависимости от давления или же от линейной скорости газа /см. табл.1/, что связано, по-видимому, со скоростью образования зародышей аэрозолей.

Концентрация частиц с размером $d > 4 \cdot 10^{-5}$ см в аэрозольной струе определялась с помощью счетчика аэрозолей АЗ-5. Данные представлены в табл.2.

Таблица 2
Концентрация частиц NaCl определенных размеров
в аэрозольной струе

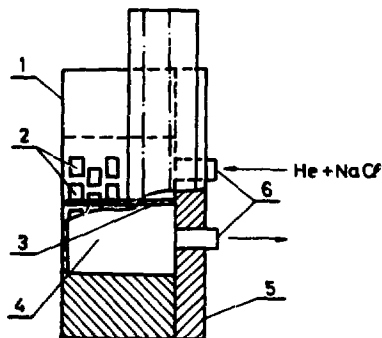
d /мкм/	0,4-0,5	0,5-0,6	0,6-0,7	0,7-0,8	0,8-0,9	0,9-1,0	1,0-1,5	1,5-2,0
N /1/л/	$2 \cdot 10^5$	$1,5 \cdot 10^4$	95	42	27	17	46	21
d /мкм/	2-4	4-7	> 7					
N /1/л/	37	3	0					

Пересчет этих результатов показывает, что частицы NaCl с $d > 0,4$ мкм обуславливают не более 0,1% от $c_{[NaCl]}$ на выходе генератора. Следовательно, аэрозоли NaCl в условиях эксперимента состоят в основном из частиц с $d < 0,4$ мкм. Концентрация частиц с $d = 0,1$ мкм должна составить $\sim 2 \cdot 10^7$ 1/см³, а при $d = 0,2$ мкм соответственно $\sim 3 \cdot 10^6$ 1/см³, чтобы $c_{[NaCl]}$ равнялась 26 мкг/л.

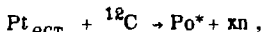
3. Эксперименты по транспортировке продуктов ядерных реакций

Была проведена серия предварительных экспериментов с целью определения влияния температурного режима генератора и расхода газа-носителя на перенос продуктов ядерных реакций. Облучалась мишень из Pt-фольги толщиной 3 мкм на внутреннем пучке циклотрона У-300 ускоренными ионами ¹²C с энергией 70 МэВ. Схема камеры для облучения мишени пучком тяжелых ионов показана на рис.3. Ускоренные ионы через дюзы 2 попадают на мишень. Объем камеры, в которой термализуются атомы отдачи, равен 12 см³. Съёмная перегородка 3, установленная в газовом объеме, способствует обтеканию стенок камеры аэрозольной струей, что снижает потери, вызванные адсорбцией синтезированных атомов на стенках камеры.

Рис. 3. Камера для облучения мишени: 1 - корпус кассеты, 2 - дюзы, 3 - съемная перегородка, 4 - газовая камера, 5 - крышка, 6 - штуцеры для входа и выхода аэрозольной струи.



Ядра отдачи изотопов полония, образующиеся по реакции



тормозились в гелии и, будучи адсорбированными на аэрозолях, переносились по тefлоновому капилляру 11 длиной 12 м и диаметром 2 мм на сборник 9 /рис.1/, представляющий собой двухслойный петряновский фильтр диаметром 22 мм.

По окончании облучения γ -активность ${}^{201}\text{Pb}$, продукта распада ${}^{205}\text{Po}$, измерялась с помощью Ge-Li -детектора.

Уточнение оптимального теплового режима генератора /температур печей/ проводилось при объемном расходе гелия $v_{\text{He}} = 1$ л/мин /норм.усл./ и давлении газа в генераторе 1,2 атм.

При заданном режиме генератора облучение продолжалось 90 мин, и благодаря постоянной интенсивности пучка интегральный поток ионов через мишень был одинаков во всех четырех опытах. По окончании облучения производилась замена фильтра, и эксперимент продолжался при новом температурном режиме генератора. Результаты этих опытов, представленные в табл. 5, показывают, что лучшая эффективность переноса достигается при условиях облучения №1, для которых температурное распределение показано в правой части рис.2.

Зависимость эффективности переноса активности от объемной скорости гелия была получена в оптимальном тепловом режиме генератора и представлена на рис.4. На участке $v_{\text{He}} = 0 \div 1$ л/мин. наблюдается почти линейная зависимость переноса от объемной скорости газа. Дальнейший рост v_{He} приводит к нежелательному увеличению давления в тракте / при $v_{\text{He}} = 1$ л/мин /норм. усл./ избыточное давление равно 0,2 ати/, но улучшение переноса становится незначительным. Поэтому в дальнейших опытах нами была выбрана объемная скорость газа-носителя $v_{\text{He}} = 1$ л/мин /норм. усл./.

Таблица 3

Эффективность переноса продуктов ядерных реакций при различных температурных режимах генератора

№ обл.	Температура печей	°С	Активность на фильтре / усл.ед./
1	$t_{\text{верх}}$	780	100
	$t_{\text{низ}}$	740	
2	$t_{\text{верх}}$	780	74
	$t_{\text{низ}}$	730	
3	$t_{\text{верх}}$	780	86
	$t_{\text{низ}}$	750	
4	$t_{\text{верх}}$	785	87
	$t_{\text{низ}}$	745	

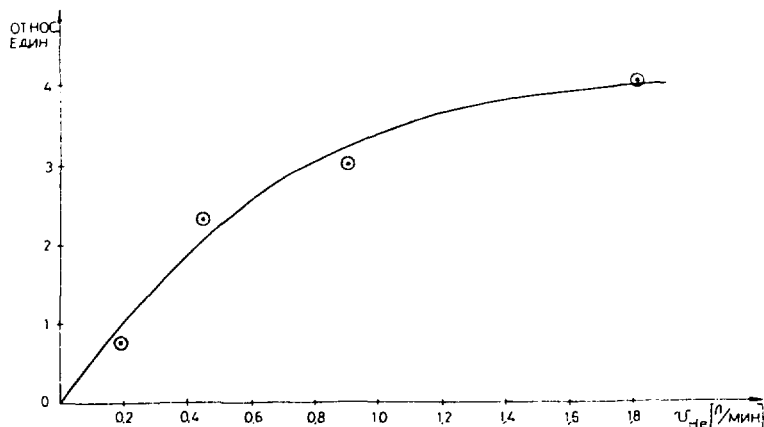


Рис. 4. Зависимость эффективности переноса активности от объемной скорости аэрозольной струи.

Линейная скорость аэрозольной струи в капилляре составляет тогда 5 м/с, и с учетом объема газовой камеры расчетное время транспортировки продуктов ядерных реакций на сборник равно ~2,5 с /капилляр длиной 12 м с диаметром 0,2 см/.

Распределение γ -активности изотопа ^{201}Pb между стенками камеры с перегородкой, капилляром и сборником, полученное в трех идентичных опытах, показано в *табл. 4*. Интервал между облучениями 1 и 2 составляет 1,5 час, между облучениями 2 и 3 - 5,5 час.

Таблица 4
Распределение активности ^{201}Pb между газовой камерой, капилляром и сборником аэрозолей

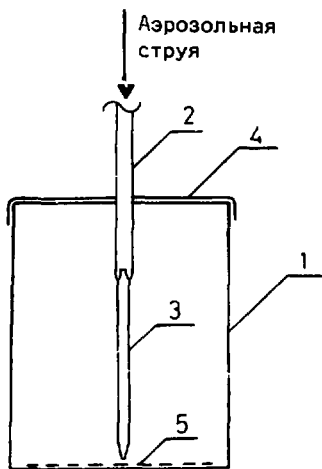
№ обл.	Активность, %		
	"Потери"		Сборник
	Стенки камеры и перегородка	Капилляр	
1	27	11	62
2	22	9	69
3	21	8	71

Довольно высокий процент переноса активности по капилляру позволяет предполагать, что аэрозоли NaCl , производимые генератором, состоят в основном из частиц размером порядка 0,1 мкм и их концентрация равна $10^6 \div 10^7$ 1/см³. Аэрозоли таких размеров имеют наименьшую общую скорость диффузионного и гравитационного осаждения /25/.

4. Улавливание аэрозолей

В описанных выше экспериментах в качестве сборников радиоаэрозолей использовались петряновские фильтры. Собранные на них с высокой эффективностью продукты могут быть использованы для дальнейшего изучения и применения. Непосредственное измерение спектров α -излучения активности, полученной при облучении ториевой мишени ионами азота, показало, что разрешение не хуже 150 кэВ для энергии α -частиц около 6 МэВ. Более высокого разрешения можно было бы достичь, если бы удалось высаживать радиоаэрозоли на гладкий сборник. На *рис. 5* изображено

Рис.5. Приспособление для сбора аэрозолей: 1 - стакан; 2 - тефлоновый капилляр; 3 - стеклянный капилляр; 4 - фильтр из петряновской ткани; 5 - сборник.



приспособление, предназначенное для этой цели. Чтобы увеличить линейную скорость газа, а следовательно, и кинетическую энергию частиц, стеклянный капилляр на выходе струи суживался до 0,5-1 мм. При этом скорость газового потока на выходе возрастала до 20-50 м/с. Однако процент активности, высаженной на Al-фольгу, составил всего лишь около 3, а на липкую ленту типа "Scotch" \approx 12.

ВЫВОДЫ

1. Разработана конструкция генератора, позволяющая в течение длительного времени производить аэрозоли NaCl с содержанием > 20 мкг NaCl на литр и размерами порядка 0,1 мкм.

2. Найден оптимальный тепловой и газодинамический режим генератора при следующих параметрах: температура верхней части равна 780°C , нижней - 740°C ; объемная скорость гелия составляет 1 л/мин. /норм. усл./.

3. Эффективность переноса продуктов ядерных реакций по тефлоновому 12-метровому капилляру с $d = 0,2$ см достигает 70%.

В заключение авторы выражают благодарность В.М. Моралеву и Б.Г. Костровскому за полезные консультации и Б.Л. Жуйкову за помощь в экспериментах.

ЛИТЕРАТУРА

1. Macfarlane R.D., Griffioen R.D. Nucl.Instr. and Meth., 1963, 24, p.461.
2. Junglas H., Macfarlane R.D., Fares Y. Radiochim. Acta, 1971, 16, p.141.
3. Äystö J., Puumalainen P., Valli K. Nucl.Instr. and Meth., 1974, 115, p.65.
4. Ghiorso A. et al. Phys.Rev.Lett., 1974, 33, p.1490.
5. Wollnik H. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1975, 127, p.539.
6. Wieseahn W., Bischoff G., C'Auria J. Nucl.Instr. and Meth., 1975, 129, p.187.
7. Äystö J. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1976, p.139.
8. Äystö J., Valli K. Nucl.Instr. and Meth., 1973, 111, p.531.
9. Звара И. и др. Радиохимия, 1967, 9, с.2.
10. Macfarlane R.D., Griffioen R.D. Phys.Rev., 1963, 130, p.149.
11. Macfarlane R.D. Phys.Rev., 1962, 128, p.274.
12. Macfarlane R.D., Griffioen R.D. Phys.Rev., 1963, 131, p.2176.
13. Михеев В.Л. ПТЭ, 1966, №4, с.22.
14. Macfarlane R.D. Nuclear Spectrometry, v.II (ed. J.Cerny, Academic Press, New York, 1972).
15. Puumalainen P. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1973, 112, p.485.
16. Kosanke K.L., McHarris W.C. Bull.Am.Phys.Soc., 1973, .8, p.58.
17. Kosanke K.L. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1974, 115, p.151.
18. Hellmuth K.H., Valli K. Nucl.Instr. and Meth., 1975, 125, p.99.
19. Aumann D.C., Weismann D. Nucl.Instr. and Meth., 1974, 117, p.459.
20. Silva et al. Nucl.Instr. and Meth., 1977, 147, p.371.
21. Wollnik H. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1975, 127, p.539.
22. Петрянов И.В. и др. Волокнистые фильтрующие материалы ФП. "Знание", М., 1968.
23. Крешков А.П. Основы аналитической химии. "Химия", М., 1961.
24. Фукс Н.А., Сутугин А.Г. Высокодисперсные аэрозоли. В сб.: Итоги науки, сер. "Химия", М., 1969.
25. Грин Х., Лейн В. Аэрозоли - пыли, дымы и туманы. Пер. с англ. Изд. "Химия", Л., 1972.

Рукопись поступила в издательский отдел
12 февраля 1980 года.