

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

К-177

На правах рукописи

КАЛЫГИН ВЛАДИМИР ВИКТОРОВИЧ

ВЫСОКОЭФФЕКТИВНЫЙ ИСТОЧНИК ИОНОВ  
ДЛЯ МАСС-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКОГО ИССЛЕДОВАНИЯ  
РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ И ТРАНСУРАНОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

Специальность 01. 04. 01 - экспериментальная физика

А в т о р е ф е р а т

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Дубна - 1982

Работа выполнена в Научно-исследовательском институте атомных реакторов им. В.И.Ленина.

Научный руководитель -

кандидат физико-математических наук,  
старший научный сотрудник

В.Я.Габескирия

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук,  
старший научный сотрудник

Г.М.Кукавадзе

кандидат физико-математических наук,  
старший научный сотрудник

Д.Д.Богданов

Ведущая организация:

Радиевый институт им. В.Г.Хлопина (г. Ленинград).

Защита диссертации состоится " " 1982г.  
в " " часов на заседании Специализированного Ученого Совета  
Д.С47.01.05 при Лаборатории нейтронной физики и Лаборатории  
ядерных реакций Объединенного института ядерных исследований  
(г.Дубна).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ.  
Отзывы и замечания отправлять по адресу: г.Дубна, Московская  
области, Объединенный институт ядерных исследований.  
Ученому секретарю Специализированного Ученого Совета  
Д.С47.01.05.

Автореферат разослан " " " "

1982 года.

УЧЕНЫЙ СЕКРЕТАРЬ СОВЕТА  
кандидат физико-математических наук

И.В.Таран

" " " "

1982 года

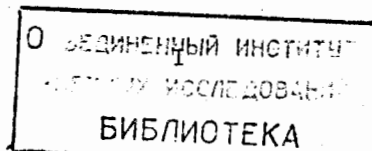
## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы. На современном этапе развития ядерной физики, атомной энергетики и техники особое значение приобретает более точное измерение ядерно-физических констант трансурановых элементов, изучение процессов их накопления в атомных реакторах, а также прецизионное определение состава и характеристик ядерного топлива. При решении этих задач широко используется масс-спектрометрический метод, обладающий высокими метрологическими характеристиками.

Однако решение ряда вопросов данных научных и технических задач, имеющих важное народнохозяйственное значение, требует значительного (не менее, чем на порядок) снижения существующего порога чувствительности масс-спектрометрических измерений. Так, увеличение чувствительности необходимо при исследовании ограниченного количества нуклидов, получаемых в ядерных реакциях и при радиоактивном распаде, в случае анализа веществ, обладающих высокой удельной радиоактивностью, для контроля загрязнения радиоактивными нуклидами окружающей среды, при осуществлении системы гарантий МАГАТЭ и т.п.

Порог чувствительности современных средств измерений, реализующих масс-спектрометрический метод, в основном определяется большими потерями пробы в ионном источнике. Так, в широко применяемом для исследования трансурановых элементов трехленточном источнике ионов потери атомов пробы урана, из-за низкой эффективности их ионизации, составляют  $>99,5\%$ .

Вследствие этого увеличение эффективности ионизации вещества пробы в ионном источнике, а следовательно, и чувствительности масс-спектрометрического метода анализа, является актуальной проблемой экспериментальной физики. Отысканию конкретных путей решения этой проблемы посвящена настоящая диссертационная работа.



Целью настоящей работы являлось: проведение теоретического анализа процессов, протекающих в различных ионизаторах, нахождение оптимального типа и конструкции ионного источника, разработка, создание, экспериментальное изучение высокоэффективного источника ионов, его использование для ядерно-физических исследований при наличии ограниченного количества нуклидов.

Научная новизна и практическая ценность работы. Проведено теоретическое описание процессов образования, вывода ионнов и поведения плазмы в поверхностных ионизаторах. Найдены пути совершенствования известных источников ионов, а также предложены принципиально новые типы высокоэффективных источников, защищенные тремя авторскими свидетельствами. При этом предложенный источник с поверхностно-объемной ионизацией обладает высокой эффективностью при работе с практически любыми элементами.

Впервые в масс-спектрометрии создан и экспериментально исследован плазменный источник ионов с поверхностной ионизацией в частично замкнутой полости, с помощью которого порог чувствительности масс-спектрометрического метода изучения трансурановых элементов снижен примерно на два порядка. Впервые проведено теоретическое и экспериментальное исследование закономерностей испарения пробы из источника ионов данного типа. В результате этих исследований предложена новая экспрессная методика элементного анализа микроколичеств трансурановых (ТУЭ) и редкоземельных (РЗЭ) элементов. Показана также возможность проведения изотопного анализа смеси ТУЭ и РЗЭ без их химического разделения, которое необходимо при работе с трехленточным источником ионов. На основании этого разработана методика проведения в один прием изотопного анализа смеси нанограммовых исключать курья с америдием и РЗЭ, выделенными из ядерного топлива.

С разработанным источником ионов осуществлен ряд измерений

изотопных отношений ТУЭ, требующих предельно высокой чувствительности прибора, определены периоды полураспада долгоживущих нуклидов курья. Это подтверждает пригодность нового источника для прецизионных ядерно-физических исследований.

Разработанный автором источник ионов нашел практическое применение в НИИАР им. В.И. Ленина. Производительность масс-спектрометра с новым источником ионов значительно возрастает, и он может быть использован в практике лабораторных и производственных условий для проведения экспрессных изотопных и элементных анализов ограниченного количества ТУЭ и РЗЭ, их смесей и проб с большим солевым составом.

Ионный источник с поверхностно-объемной ионизацией рекомендуется для масс-спектрометрического изучения и электромагнитного разделения изотопов практически любых элементов, имеющих в ограниченном количестве.

Положения, выносимые на защиту, и степень участия автора в выполненной работе. На защиту выносятся: 1) теоретические исследования процессов образования, вывода ионов и поведения плазмы в известных и предложенных автором новых источниках ионов; 2) впервые созданный автором для масс-спектрометра высокоэффективный плазменный источник ионов с поверхностной ионизацией в частично замкнутой полости; 3) результаты экспериментального изучения нового источника ионов и его практического применения для исследовательских целей.

На протяжении всей работы автор был ее инициатором. Им лично проведены представленные в диссертации теоретические исследования и расчеты, конструирование ионного источника и схем его питания. Автором непосредственно осуществлены: разработка методик, проведение описанных в диссертации измерений и экспериментов, а также обработка и подготовка данных к публикации.

Объем работы. Диссертация содержит 132 страницы машинописного текста, состоит из введения, 4 глав и выводов. Библиографический список включает 88 наименований.

**СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

В первой главе рассматриваются различные типы источников ионов. Наиболее перспективным для эффективной ионизации ТУЭ и РЗЭ представляется источник, созданный в СКБ АП АН СССР для масс-спектрометра (рис. 1а), а также ионизатор, разработанный в ОИЯИ для электромагнитного сепаратора изотопов (рис. 1ж).

Во второй главе теоретически изучена работа известных источников ионов (рис. 1а, ж). Предложены пути их совершенствования, а также новые эффективные ионизаторы (рис. 1б, в, г, д, е, з).

При исследовании изображенных на рис. 1а-1е ионизаторов принято, что все образующиеся на их внутренней поверхности ионы выводятся электрическим полем без вторичного попадания на стенки, где они могут рекомбинировать. Если в точке  $N_u$  поверхности ионизатора  $S$  после  $i$ -го столкновения с ней плотность потока десорбции атомов равна  $\gamma_i(N_u)$ , то в стационарном режиме ее общее значение будет  $\gamma(N_u) = \sum_{i=0}^{\infty} \gamma_i(N_u)$ , причем  $\gamma_0(N_u)$  задается, а

$$\gamma_{i+1}(N_u) = \beta \iint_S dS' \gamma_i(N'_u) f(N'_u, N_u),$$

где  $f(N'_u, N_u) dS$  - вероятность десорбировавшего в точке  $N'_u$  атома попасть в окрестность  $dS$  точки  $N_u$ ,  $\beta$  - коэффициент поверхностной ионизации, вычисленный по формуле Саха-Ленгмюра.

Эффективность ионизатора (доля атомов, покидающая его в виде ионов) равна

$$\eta_u = [G_o - \iint_S dS \iint_{S'_i} dS'_i f(N_u, N'_i) \gamma(N_u)] / G_o$$

Здесь  $G_o$  - поток поступающих в ионизатор атомов,  $f(N_u, N'_i)$  - вероятность десорбировавшего в точке  $N'_i$  атома попасть в окрестность  $dS'_i$  точки  $N_u$ , которая лежит на части плоскости  $S'_i$ , проходящей через выходное отверстие ионизатора. Поток частиц через

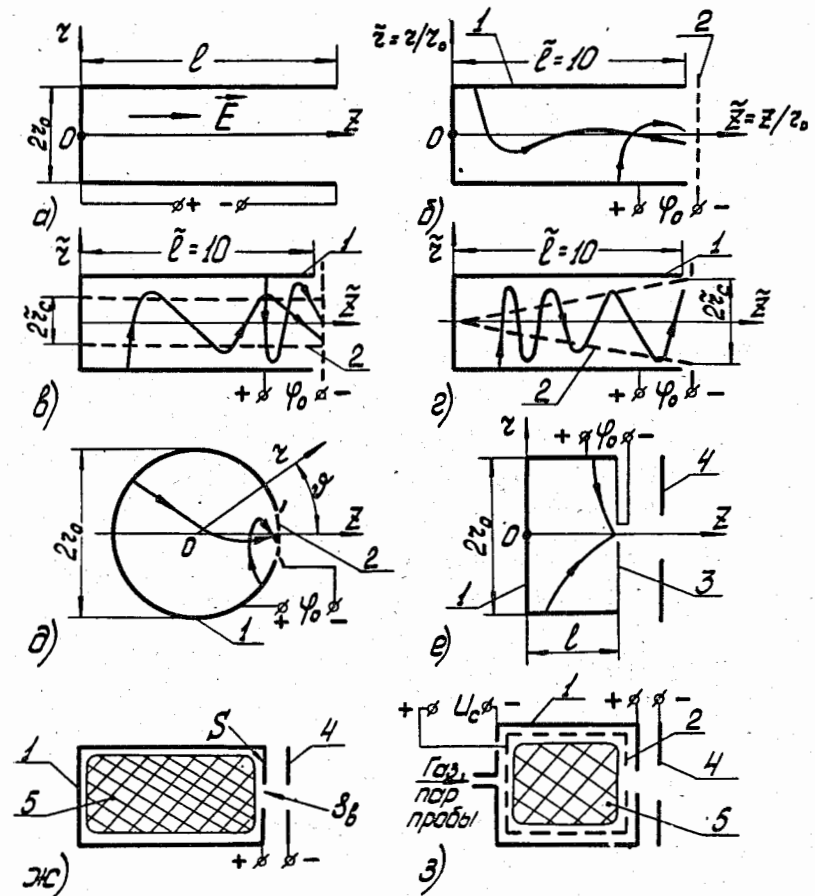


Рис. 1. Различные типы эффективных ионизаторов. Трубочатые с поверхностной ионизацией: с аксиальным электрическим полем (а); с внешним (б), аксиальным цилиндрическим (в) и эквипотенциальным коническим (г) электродами. С поверхностной ионизацией в частично замкнутой полости: с внешним (д) и фокусирующим (е) электродами; плазменный с поверхностно-объемной ионизацией (з). 1 - корпус ионизатора, 2 - электрод-сетка, 3 - фокусирующий электрод, 4 - вытягивающий электрод, 5 - плазма,  $\rightarrow$  траектории ионов, рассчитанные на ЭВМ

единичную площадку с нормалью  $\vec{n}$  в любой точке  $N_v$  объема ионизатора равен  $\gamma(N_v, \vec{n}) = \iint_S dS \gamma(N_u) f(N_u, N_v)$ , где  $S_1$  - часть поверхности ионизатора, для любой точки  $(N_u)$  которой справедливо соотношение  $(N_u, N_v, \vec{n}) \geq 0$ . Значение  $\gamma(N_u)$  использовано для оценки влияния взаимодействия частиц.

Электрическое поле выведет образующийся с тепловой скоростью  $v_z$  ион, если под действием этого поля он или приобретет осевую составляющую скорости  $v_z \geq v_z^*$  (рис. 1б, в, г), или затратит на движение к выходу время  $t_d \leq z_0/v_z^*$  (рис. 1а, д, е).

Для трубчатого ионизатора (рис. 1а) по найденным выражениям для  $f(N_u', N_u)$ ,  $f(N_u, N_u)$ ,  $f(N_u, N_v)$  произведен расчет  $\gamma_i, \gamma, \gamma, \gamma_u$  на ЭВМ. Из полученной зависимости  $\gamma_u$  от  $\bar{\ell}$  (рис. 2) видно, что для ТУЭ ( $\beta \sim 10^{-2}$ ) эффективность может быть достаточно высока. Для вывода ионов напряженность электрического поля в объеме ионизатора должна быть  $E > 16kT\bar{\ell}/\pi e z_0$ , где  $k$  - постоянная Больцмана,  $T$  - температура ионизатора,  $e$  - заряд электрона (т.е. быть порядка 100 В/см при  $z_0 = 1$  мм и  $\bar{\ell} = 10$ ). Такой перепад напряжения на стенках

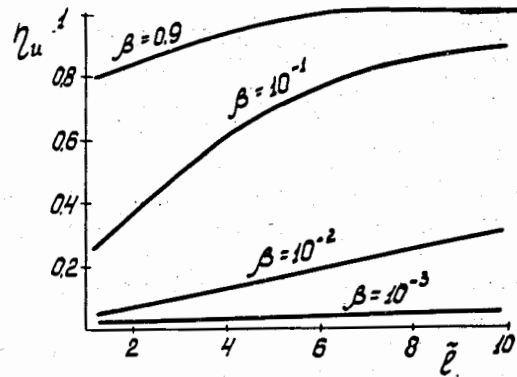


Рис. 2. Зависимость эффективности трубчатого ионизатора  $\eta_u$  от приведенной длины  $\bar{\ell} = \ell/z_0$  для различных  $\beta$

ионизатора дает недопустимо большой разброс ионов по энергиям.

Для устранения этого предложено стенки ионизатора сделать эквипотенциальными, а ионы извлекать с помощью расположенного у выходного отверстия электрода-сетки 2 (рис. 1б), имеющего относительно стенок потенциал  $-\psi_0$ . Для полного вывода образующихся ионов (как показывает анализ их траекторий, рассчитанных на ЭВМ с помощью найденного распределения потенциала поля электрода) необходимо иметь  $\psi_0 \sim 10^2$  В.

С целью уменьшения  $\psi_0$  предложено ввести в ионизатор коаксиальный цилиндрический электрод радиусом  $z_c$ , выполненный в виде прозрачной сетки (рис. 1в). За счет протекания тока потенциал поля внутри электрода 2 меняется линейно. На ЭВМ рассчитаны траектории ионов и найден критерий их вывода:

$$\psi_0 \geq 6kT\bar{\ell}^2 \ln(1/\bar{z}_c) / \pi e \Phi^2 (\sqrt{\bar{\ell}}/\bar{z}_c),$$

где  $\bar{z}_c = z_c/z_0$ ,  $\Phi$  - интеграл вероятности ошибок. Максимальное значение  $\bar{\ell}$  ограничивается наибольшей допустимой величиной пропускаемого через электрод тока. Для ионизатора с электродом, изготовленным из вольфрамовой проволоки в виде спирали, можно достичь, как показывает расчет,  $\eta_u \approx 0,15$  при  $\beta = 10^{-2}$ .

Для увеличения  $\eta_u$  предложено ввести в ионизатор эквипотенциальный электрод-сетку конической формы (рис. 1г). Траектории ионов рассчитаны на ЭВМ, а найденное условие их вывода имеет вид

$$\psi_0 \geq 3\bar{\ell}^2 kT [\ln(1/\bar{z}_c)]^3 / \{2e[(\sqrt{\pi}/2)\Phi(\sqrt{\bar{\ell}}/\bar{z}_c) - \sqrt{\bar{\ell}}/\bar{z}_c] \bar{z}_c\}^2$$

и при  $z_c \approx z_0$  упрощается:  $\psi_0 \approx 3kT\bar{\ell}^2/2e$ . Для  $\bar{\ell} = 20$  и  $T=3000$  К имеем  $\psi_0 \approx 200$  В и  $\eta_u \approx 0,6$  при  $\beta = 10^{-2}$ .

Теоретически изучены источники ионизатора которых имеет вид замкнутой полости с малым отверстием, через которое обеспечен вывод образующихся ионов. Для ионизатора (рис. 1д) с площадью внутренней поверхности сферы  $S_c$  и выходным отверстием, вырезающим часть сферы площадью  $S_b$ , получено:

$$f(N_u'/N_u) = 1/S_c, \quad \gamma(N_u) = \gamma_c = Q_0(1-\beta)/S_c [\beta + S_b(1-\beta)],$$

где  $\delta_s = \delta_i / S_c$ ; для точек  $N_v$ , лежащих на оси  $z$  (рис. 1д), в направлении ее  $\nabla(N_v) = \gamma_c$ . Эффективность ионизатора равна

$$\eta_u = \beta(1 - \delta_s) / [\delta_s + \beta(1 - \delta_s)]. \quad (1)$$

Вывод ионов можно осуществить полем внешнего электрода-сетки 2 (рис. 1д). При  $\delta_s \ll 1$  потенциал внутри сферы приближенно описывается ядром Пуассона для шара. Найденное условие вывода ионов имеет вид  $\varphi_0 \gg 20kT/e\delta_s$ . При  $\beta = 10^{-2}$  для обеспечения  $\eta_u = 0,5$  необходимо иметь  $\delta_s = 10^{-2}$  и  $\varphi_0 \approx 500$  В. Если использовать проникающее в объем ионизатора поле вытягивающего электрода, расположенного на расстоянии, равном диаметру выходного отверстия, то на него необходимо подать потенциал  $\varphi_0 \approx 3$  кВ.

Для уменьшения  $\varphi_0$  предложена конструкция цилиндрического источника с фокусирующим электродом 3 (см. рис. 1е). Протекающий по нему ток создает в ионизаторе такое поле, которое собирает образующиеся ионы в область выходного отверстия ионизатора с радиусом  $r_0$ . С помощью найденного распределения потенциала в объеме ионизатора на ЭВМ рассчитаны траектории ионов. Их анализ показал, что максимуму эффективности соответствует  $\tilde{r} = 1$  и  $\tilde{z}_0 = 0,1$ . При  $\beta = 10^{-2}$  она равна  $\eta_u \approx 0,75$ . Тепловые скорости мало исказят траектории, если  $6z_0\sqrt{M/e\varphi_0} \ll z_0/v_{th}$  ( $M$  - масса иона), или при  $T = 3000$  К  $\varphi_0 \approx 24$  В.

Во всех рассмотренных выше случаях показано, что при реальных значениях тока ионов из ионизатора  $I^+$  процессами столкновения, перезарядки и рекомбинации частиц в его объеме можно пренебречь. Плазма в нем не образуется, если ток  $I^+$  ограничивается величиной ( $I^+ \ll 10^7$  А), при которой  $D(e\varphi_0/kT)^{3/2} \gg l$ , где  $D$  - дебаевский радиус, соответствующий концентрации ионов у стенок ионизатора,  $l$  - характерный размер задачи.

В ионизаторе, типа изображенного на рис. 1к, образующаяся плазма при определенных условиях имеет отрицательный потенциал относительно его стенок  $U$ , а эффективность ионизации значитель-

но превосходит коэффициент поверхностей ионизации  $\beta$ . В стационарном режиме найден баланс ионов, электронов и потока  $Q_0$  поступающих в ионизатор атомов:

$$\left. \begin{aligned} (Q_0 + Q_n)\eta_0 &= \sqrt{kT/2\pi m} n_i (e^{-e\varphi/kT} S + \chi\delta_s) + \alpha_p n_i n_e V, \\ A_p T^2 e^{-(\varphi + e\varphi)/kT} S/e &= \sqrt{kT/2\pi m} n_e S + \alpha_p n_i n_e V, \\ Q_0 &= (Q_0 + Q_n)(1 - \eta_0) + \sqrt{kT/2\pi m} n_i \chi\delta_s, \\ n_i &\approx n_e. \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

Здесь  $A_p$  - постоянная Ричардсона-Дэшмана;  $\varphi$  - работа выхода электронов;  $n_e$  и  $n_i$  - плотность электронов и ионов соответственно;  $m$  - масса электрона;  $\alpha_p$  - коэффициент объемной ионно-электронной рекомбинации;  $V$  - объем полости ионизатора;  $Q_n$  - поток из плазмы на его стенки ионов и образующихся за счет объемной рекомбинации атомов;  $\chi$  - коэффициент, учитывающий проникновение поля вытягивающего электрода в плазму;  $\eta_0$  - рассчитывается по формуле (1) при замене  $\beta$  на  $\beta[1 - \exp(-2z_0/l\delta)]$ , где длина свободного пробега образующихся ионов  $\lambda_i = U^2/(\pi n_i e^2 \Lambda)$ ,  $\Lambda$  - кулоновский "логарифм", а  $\delta$  лежит в пределах  $\delta = 1 \div \arcsin \sqrt{kT/eU}/(\pi/l)$ .

Эффективность ионизатора  $\eta_u$  равна

$$\eta_u = \eta + \beta(1 - \delta_s) \exp(-2z_0/\lambda_i). \quad (3)$$

где  $\eta = j\delta_s/Q_0$ ,  $j = n_i \sqrt{kT/2\pi m}$ . Значение  $\eta$  и все другие интересующие величины определялись из решения системы (2).

На рис. 3 дана зависимость  $\eta_u$  и плотности потока ионов из ионизатора  $j_u$  от потока вводимых в него атомов. Расчет проведен для сферического вольфрамового ионизатора с  $r_0 = 0,5$  см и  $r_s = 0,1$  мм при  $\beta = 10^{-3}$ ,  $\alpha_p = 10^{-10}$  см<sup>3</sup>/с. Как видно из рис. 3 максимальному  $\eta_u$  соответствует  $j_u^+ = e j_u \approx 10^{-3}$  А/см<sup>2</sup> ( $j_u \approx 5 \cdot 10^{15}$  I/см<sup>2</sup>·с). Если количество пробы мало, оптимальный ток



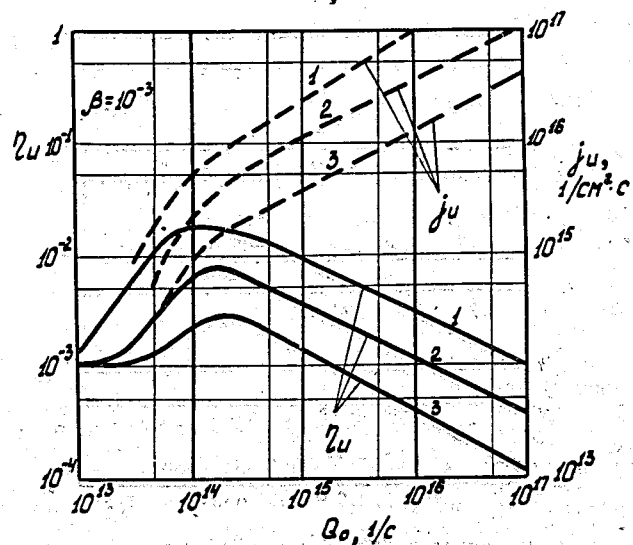


Рис. 3. Зависимость эффективности  $\zeta_u$  и плотности потока  $j_u$  от величины вводимого в ионизатор потока атомов  $Q_0$ .  
1 -  $T=3000$  К; 2 -  $T=2750$  К; 3 -  $T=2500$  К

можно создать за счет ионизации атомов вспомогательного вещества или материала ионизатора.

Спад эффективности при уменьшении  $j_u^+$  предложено устранить напуском в ионизатор вспомогательного газа под давлением, при котором  $\lambda_i \ll 2z_0$  и образующиеся ионы термализуются при столкновении с атомами газа, а эффективность, равная

$$\zeta_u = \beta / [\beta + (1-\beta)e^{-eU/kT} + \bar{S}_i + \alpha_p j_u^+ (V/S) 2\pi M / kTe], \quad (4)$$

растет с уменьшением  $j_u^+$  и при  $j_u^+ \approx 10^{-7}$  А/см<sup>2</sup> и  $\beta > 10^{-3}$  будет  $\zeta_u \approx 0,9$ .

Все рассмотренные выше источники ионов неэффективны при ионизации элементов с большим потенциалом ионизации ( $V_i \approx 6,5$  В) и газов. Для устранения этих недостатков предложен принципиаль-

но новый источник (рис.1з). Ток электронов термоэмиссии, движущихся от корпуса 1, образует в объеме формирующего электрода 2 область виртуального катода с потенциалом, близким к потенциалу корпуса 1, и размерами, определяемыми законом степени "3/2" для тока электронов в вакууме. Атомы пробы, ионизируемые на внутренней поверхности электрода 2 и ударом летящих между ним и виртуальным катодом электронов, попадают в область этого катода и здесь термализуются при столкновении с атомами напускаемого в ионизатор газа. Давление его такое, что  $\lambda_i \ll 2z_0$ . Разность потенциалов между электродом 2 и корпусом 1 (см. рис.1з)  $U_c$  меньше потенциала ионизации атомов газа, поэтому плазма содержит преимущественно ионы пробы. Они покидают ионизатор в основном через выходное отверстие под действием поля электрода 4.

Если расстояние от формирующего электрода до стенок корпуса 1  $\Delta z_c \ll z_0$ , а плотность тока электронов  $j_e$  на электрод 2 ограничена пространственным зарядом, то эффективность определяется соотношением (4) при замене в нем  $U$  на  $U_c$  и  $\beta$  на  $\beta_0 = (1 - q_c)\beta + \beta_i$ , где  $\beta_i$  - вероятность ионизации атомов электронами при их движении между электродом 2 и виртуальным катодом,  $q_c$  - осевая прозрачность электрода 2. Производительность источника ограничивается величиной  $j_{u,max}^+ = j_e / 2\sqrt{M/m}$ . Для ионизатора с  $z_0 = 2$  мм,  $z_k = 0,5$  мм,  $\bar{l} = 2$ ,  $q_c = 0,1$  и  $U_c = 20$  В и элементов с  $\beta \approx 10^{-3}$  будет  $\zeta_u \approx 0,7$ . При  $q_c = 0,9$  и  $\Delta z_c = 0,05$  мм для любых элементов (в том числе и газов)  $\zeta_u = 0,5 + 0,7$  и  $j_{u,max}^+ = 10^{-2}$  А/см<sup>2</sup>.

Высокая эффективность и малая селективность при ионизации различных элементов делают источник перспективным и для элементного анализа, а сравнительно большая производительность - для электромагнитного разделения изотопов.

Из рассмотренных типов источников в качестве рабочего был выбран плазменный с ионизацией в частично замкнутой полости (рис.1ж). Он наиболее прост и обладает достаточно большой де-

сятки процентов) эффективность ионизации ТУЭ и РЗЭ.

В третьей главе описывается разработанный для масс-спектрометра МВ3301 ионный источник (рис.4,5). При его создании и исследовании решен ряд специфических задач: обеспечение стабильности и ограничение общего тока ионного луча; уменьшение электрических напряжений питания, тепловыделений и размеров ионизатора; согласование параметров пучка ионов с ионно-оптической системой прибора; изучение фона и др.

Ионизатор и испаритель выполнены из тантала, обладающего сравнительно высокими температурой плавления и работой выхода электронов, а также легко поддающегося обработке. Кроме того, вследствие специфических геттерных свойств тантала, в условиях работы источника может автоматически поддерживаться режим работы, близкий к указанным выше оптимальным. Размеры ионизатора доведены до минимума, ограниченного простотой изготовления и эксплуатации, и в соответствии с теорией выбрана площадь выходного отверстия ( $S_0 = 3 \cdot 10^{-4}$ ).

Нагрев ионизатора и испарителя осуществляется электронной бомбардировкой, напряжение питания которой стабилизировано. Катоды нагрева выполнены из вольфрамовой проволоки  $\phi 0,8$  мм. Для снижения напряжения бомбардировки и равномерного прогрева ионизатора витки катодов расположены вдоль всей нагреваемой поверхности и, по возможности, ближе к ней. Температура ионизатора в рабочих условиях составляла  $\approx 2700$  К. Дальнейшее ее увеличение ведет к его деформации. Ионизатор и испаритель крепятся на штоке, который может извлекаться через шлюз без нарушения вакуума в камере прибора.

С целью устранения паразитных ионных токов ( $\sim 10^{-6}$  А) с нагретых деталей источника и облегчения его эксплуатации в ионно-оптическую систему введен фильтрующий электрод 5 (рис.5). Устранение рассогласования параметров пучка ионов и ионно-оптической

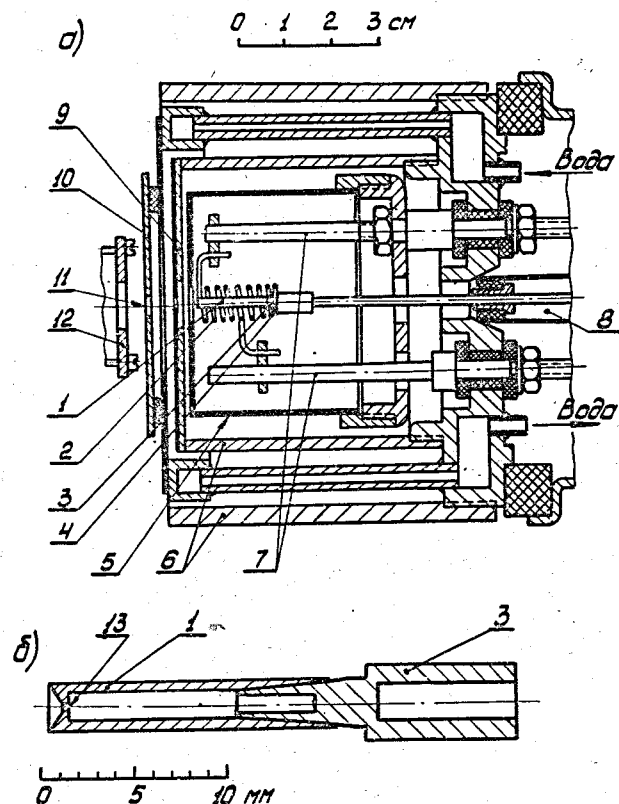


Рис. 4. Ионный источник.

1 - ионизатор; 2 - катод нагрева ионизатора; 3 - испаритель; 4 - катод нагрева испарителя; 5 - первый тепловой экран и отражатель электронов из молибдена; 6 - стальные тепловые экраны; 7 - держатели катодов из молибдена; 8 - шток; 9 - молибденовый вытягивающий электрод; 10 - стальной фильтрующий электрод с сеткой II из вольфрама; 12 - первое кольцо ионной оптики; 13 - выходное отверстие ионизатора.



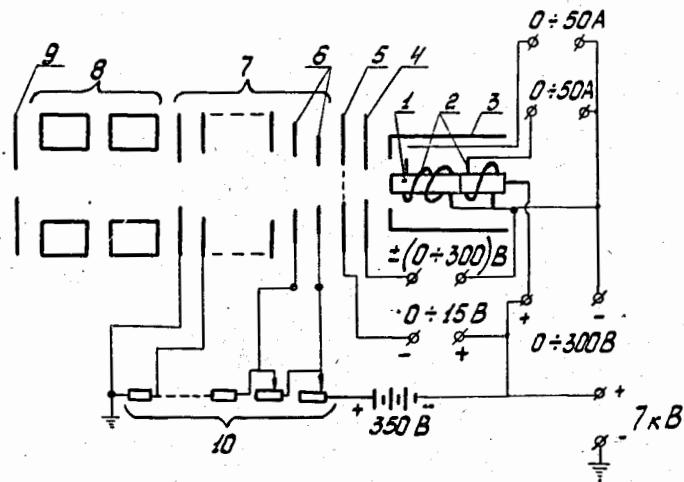


Рис. 5. Схема электрического питания ионного источника.

1 - испаритель с ионизатором; 2 - катоды; 3 - первый экран; 4 - вытягивающий электрод; 5 - фильтрующий электрод; 6 - первые кольца системы ускорения ионов; 7; 8 - уплет квадрупольных линз; 9 - выходная щель; 10 - делители

системы при небольшом нарушении геометрии ионизатора (сдвиг его, деформации при разогреве) осуществляется также за счет этого электрода: после него ионы обладают низкой энергией, а геометрия системы кольца ионной оптики - фильтрующий электрод остается неизменной. Указанный электрод и изображенная на рис.5 схема питания позволили сформировать поступающий в анализатор пучок ионов нужных параметров путем подбора потенциалов на электродах оптики без проведения моделирования траекторий ионов.

В четвертой главе приведены результаты испытания и применения источника для исследования ТУЭ и РЭЭ. Испытания производились с использованием проб неодима и урана. Разрешение, измеренное на

уровне 5% от интенсивности линий масс-спектра, составило  $\approx 1500$ , а фон рассеянных ионов от интенсивной линии изотопа на соседней массе  $\sim 10^{-5}$ . Указанные характеристики прибора мало отличаются от получаемых с обычным трехленточным источником ионов при тех же условиях работы, а экспрессность измерений с новым источником существенно возрастает.

Внесенную в испаритель пробу можно испарить до полного исчезновения соответствующих ей линий в спектре масс. Появляющиеся при работе с не бывшими в употреблении ионизатором и испарителем фоновые линии (положение их в спектре соответствует РЭЭ, торию и урану-238) также могут быть удалены прогревом испарителя.

Эффективность разработанного узла определялась из сравнения коэффициента использования пробы (КИП) при работе с данным и трехленточным источником с ренийвым ионизатором. КИП определялся как отношение числа ионов изотопа, зарегистрированных приемником ионов, к числу атомов этого изотопа в пробе. Измерения показали, что КИП урана с исследуемым источником в  $\sim 80$  раз выше, чем с трехленточным, а эффективность (с учетом данных по ионизации в трехленточном источнике)  $\eta \approx 0,4$  и не должна быть меньше для ТУЭ и РЭЭ.

С целью нахождения закономерностей испарения пробы этот процесс теоретически изучен для сферического ионизатора в случае трех моделей, при которых проба концентрируется в виде: 1) полусфера с плотностью частиц  $\rho$ ; 2) пленки постоянной толщины  $h$ ; 3) моносекулярного слоя на части ионизатора с площадью  $S_n$ . Соответственно для потока молекул пробы из ионизатора получено ( $\chi_c$  и  $\chi_n$  - коэффициенты, зависящие от вида элемента пробы и температуры ее испарения):

$$1) q_s = \chi_c N^{2/3} \delta_s [S_c + (3N\sqrt{2\pi}/\rho)^{2/3}] / [S_n + (3N\sqrt{2\pi}/\rho)^{2/3}]$$

где  $N = N(t)$  - число молекул в пробе в момент времени  $t$  ;

$$2) q_{\beta} = \chi_n N \bar{s}_{\beta} (1 + N/ph S_c) / (\bar{s}_{\beta} + N/ph S_c);$$

3)  $q_{\beta} = N \bar{s}_{\beta} \sum_{i=0}^{\infty} (1 - \bar{s}_n - \bar{s}_{\beta}) / \tau_n$ , где  $\tau_n$  - среднее время между столкновениями молекулы со стенками части ионизатора площадью  $S_n$ .

Проведен анализ решений уравнения  $dN/dt = -q_{\beta}$  и сравнение их с экспериментально полученными зависимостями тока ионов от величины загруженной пробы и времени ее испарения (рис.6).

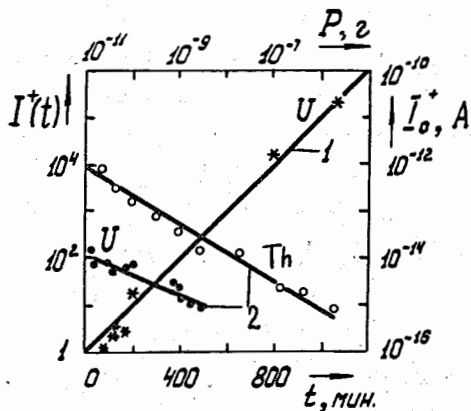


Рис. 6. Зависимость интенсивности тока ионов:

- 1)  $I_0^+$  в начальный момент испарения от количества пробы  $P$ ;
- 2)  $I^+(t)$  (в относительных единицах) от времени испарения  $t$ .

-- теория, o, o, \* -- эксперимент

Найденные закономерности соответствуют теоретически рассмотренным моделям 2 (при  $N/ph S_c \ll \bar{s}_{\beta}$ ) или 3. Закон испарения при загрузках до  $\sim 10^{-5}$  г далек от режима ячейки Кнудсена, и не обнаружено фракционирования изотопов в пределах ошибки измерений. Загруженная в виде соли азотной кислоты проба урана испаряется преимущественно в виде ионов и атомов металла.

В результате показано, что ток ионов  $i$ -го элемента на приемник ионов при неизменной мощности нагрева ионизатора и испарителя изменяется по закону

$$I_i^+(t) = e \gamma_n \gamma_{iu} \chi_i N_{oi} \exp(-\chi_i t), \quad (5)$$

где  $\gamma_n$  - коэффициент пропускания прибора;  $\chi_i$  - постоянная, зависящая от вида элемента и температуры испарителя;  $N_{oi}$  - число атомов  $i$ -го элемента в пробе;  $\gamma_{iu}$  - эффективность его ионизации. Из (5) видно, что при  $t=0$   $I_{oi}^+ = \gamma_n \gamma_{iu} N_{oi}$ , где  $\kappa_i = e \gamma_{iu} \chi_i$ . Изменение  $\gamma_n$  можно учитывать введением в пробу внутреннего стандарта, а ионный источник использовать для экспрессного определения относительного и абсолютного числа атомов  $i$ -го элемента в пробе. Так для элементов  $Nd, La, Ce, Pz$  были измерены относительные коэффициенты ( $\kappa_i / \kappa_{Nd}$ ). Они равны 1;  $(1, I \pm 0,3)$ ;  $(0,9 \pm 0,3)$ ;  $(0,9 \pm 0,2)$  соответственно.

Внесенные в испаритель РЗЭ и ТУЭ испаряются по мере повышения его температуры в следующей последовательности:  $Cs, Eu, Sm, Ba, La, Ce, Pz, Nd, Cf, Bk, Am, Pu, Cm, Gd, Np, U$ .

С использованием созданного источника были проведены необходимые для ядерно-физических исследований анализы  $U, Pu, Am, Cm, Cf$  при изотопных отношениях  $\sim 10^{-6}, 10^{-5}, 10^{-3}, 10^{-2}$  со статистическими ошибками  $\sim 13, 3, 2, 1\%$  соответственно. При этом минимальное количество изотопа в пробе составляло  $(10^{-11} + 10^{-12})$  г.

Показана возможность проведения в один прием изотопного анализа смеси ТУЭ и РЗЭ при большом солевом составе пробы, что невозможно на трехленточном источнике. Это важно при исследовании ядерных характеристик ограниченного количества изотопов, избавляет от трудоемкой операции химического разделения элементов и увеличивает производительность работы прибора. Так была разработана методика изотопного анализа  $Cm, Am, Nd, Cs$  в смеси, выделенной из ядерного топлива. Проба содержала  $\sim 0,1$  мкг смеси, сотые доли ее составлял кюри при отношении его изотопов  $< 3 \cdot 10^{-3}$ .

Определены периоды полураспада изотопов кюри при количествах пробы, недостаточных для работы с трехленточным источником.

Найденные различными авторами периоды полураспада  $T_{\alpha}$  ( $\alpha$ -распад) изотопов  $^{243}\text{Cm}$ ,  $^{246}\text{Cm}$ ,  $^{248}\text{Cm}$  плохо согласуются друг с другом. Для измерения  $T_{\alpha}$  кюрия-245 из его смеси с  $^{244}\text{Cm}$  через 30 + 60 дней выделялись дочерние ядра плутония. По измеренным изотопным отношениям  $[^{240}\text{Pu}/^{244}\text{Pu}]$  и  $[^{244}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}]$  и известному периоду полураспада  $^{244}\text{Cm}$  можно рассчитать его значение для  $^{245}\text{Cm}$ :

$$T_{\alpha}^{245\text{Cm}} = K_{\pm} T_{\alpha}^{244\text{Cm}} \left[ \frac{^{240}\text{Pu}/^{244}\text{Pu}}{^{244}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}} \right].$$

Здесь поправка  $K_{\pm}$  учитывает распад изотопов во времени. Было проведено 5 выделений и 14 определений  $T_{\alpha}^{245\text{Cm}}$  на количествах пробы  $\sim 10^{-9}$  г и получено  $T_{\alpha}^{245\text{Cm}} = (8,35 \pm 0,14) 10^3$  лет (доверительная вероятность 95%). При определении  $T_{\alpha}$  для  $^{246}\text{Cm}$  и  $^{248}\text{Cm}$  использовалась их смесь с  $^{244}\text{Cm}$ , выдержанная в течение  $\sim 1,9$  года. Выделенного плутония было достаточно для проверки чистоты пробы от  $^{244}\text{Cm}$  и определения периодов полураспада при отношениях  $[^{244}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}] \sim 10^{-5}$  (количество пробы  $\sim 10^{-6}$  г). После расчетов получено  $T_{\alpha}^{246\text{Cm}} = (4,9 \pm 0,13) 10^3$  лет и  $T_{\alpha}^{248\text{Cm}} = (4,1 \pm 0,3) 10^5$  лет.

#### Основные выводы и результаты работы:

1. Разработана теория процессов образования, вывода ионов и поведения плазмы в поверхностных ионизаторах, с помощью которой описана работа известных и ряда предложенных в диссертации источников ионов.

2. В результате теоретического анализа показано:

а) высокая эффективность ( $\eta_{\alpha}$ ) ионизации ТУЭ в известном трубчатом ионизаторе достижима при недопустимо большом ( $\sim 100$  эВ) разбросе ионов по энергиям;

б) наиболее оптимальным ( $\eta_{\alpha} \sim$  десятки процентов) из трубчатых ионизаторов является предложенный автором ионизатор с эквипотенциальным коническим электродом, а из ионизаторов с частично

замкнутой полостью – ионизатор с фокусирующим электродом ( $\eta_{\alpha} \approx 70\%$ ), также предложенный автором;

в) оптимальному режиму работы плазменного источника ионов с поверхностной ионизацией в частично замкнутой полости соответствует определенная ( $\sim 10^{-3}$  А/см<sup>2</sup>) плотность тока выходящих из него ионов, а максимальная эффективность ( $\approx 90\%$ ) наблюдается в предложенном автором ионизаторе с напуском газа;

г) предложенный автором источник ионов с поверхностно-объемной ионизацией обладает высокой эффективностью (десятки процентов) ионизации атомов практически любых элементов.

3. Проведено экспериментальное исследование впервые разработанного автором для масс-спектрометра плазменного источника ионов с поверхностной ионизацией в частично замкнутой полости. В результате исследования показано:

а) характеристики ионного источника отвечают требованиям масс-спектрометрии, а порог чувствительности при масс-спектрометрических исследованиях ТУЭ снижается примерно на два порядка;

б) данный ионный источник позволяет проводить в один прием изотопный анализ нанограммовых количеств неразделенной смеси ТУЭ и РЗЭ при большом солевом составе пробы;

в) применение ионного источника подобной конструкции значительно сокращает время подготовки прибора к измерениям, что существенно повышает его производительность.

4. Впервые теоретически и экспериментально изучен процесс испарения пробы из источника ионов данного типа, на основании чего предложена новая экспрессная методика элементного анализа микроколичеств ТУЭ и РЗЭ.

5. Разработана методика проведения в один прием изотопного анализа смеси нанограммовых количеств кюрия (содержание в смеси  $< 1\%$ ) с америцием и РЗЭ, выделенными из ядерного топлива.

6. Для определения ядерно-физических характеристик ТУЭ проведены анализы урана, плутония, америция, кюрия, калифорния при изотопных отношениях  $\sim 10^{-6}$ ,  $10^{-5}$ ,  $10^{-3}$ ,  $10^{-2}$  со статистическими ошибками 13, 3, 2, 1% соответственно и при минимальном количестве нуклида в пробе ( $10^{-11} + 10^{-12}$ ) г, что рекомендует новый источник ионов для проведения прецизионных измерений при наличии микроколичеств ТУЭ и РЗЭ.

7. Проведены требующие предельно высокой чувствительности измерения изотопных отношений дочерних ядер распада кюрия и определены периоды полураспада долгоживущих нуклидов  $^{245}\text{Cm}$ ,  $^{246}\text{Cm}$ ,  $^{248}\text{Cm}$ .

Основные результаты диссертации опубликованы в работах:

1. Калыгин В.В., Прокопьев В.М. Теоретическое исследование цилиндрического поверхностного ионизатора. - Димитровград, 1972. - 23с. (Препринт/НИИАР: П-141).

2. Калыгин В.В., Прокопьев В.М. Расчет цилиндрического поверхностного ионизатора на БЭСМ-4. - Димитровград, 1972. - 18с. (Препринт/НИИАР: П-142).

3. А.с. 397984 (СССР). Источник ионов с поверхностной ионизацией / В.В.Калыгин, В.М.Прокопьев. - Заявл. 29.05.72, № 1789716/26-25; Оpubл. в Б.И., 1973, № 37, с.202.

4. Калыгин В.В., Прокопьев В.М. К вопросу об эффективности поверхностного трубчатого ионизатора. - ЖТФ, 1975, т.45, № 6, с.1284-1287.

5. Калыгин В.В. Теоретическое исследование плазменного поверхностного ионизатора. - Димитровград, 1975. - 18с. (Препринт НИИАР: П-261).

6. А.с. 536541 (СССР). Источник ионов / В.В.Калыгин. - Заявл. 22.05.75, № 2136663/25; Оpubл. в Б.И., 1976, № 43, с.143.

7. Калыгин В.В., Прокопьев В.М. Исследование вывода ионов из трубчатого поверхностного ионизатора. - ЖТФ, 1978, т.48, № 10, с.2117-2119.

8. А.с. 619049 (СССР). Источник ионов / В.В.Калыгин. - Заявл. 08.10.76, № 2411834/18-25; Оpubл. в Б.И., 1979, № 34, с.257.

9. Ионный источник для микроколичественного изотопного анализа трансурановых элементов / В.В.Калыгин, В.Я.Габескирия, В.И.Райко и др. - ПТЭ, 1980, № 4, с.171-173.

10. Калыгин В.В., Габескирия В.Я. Исследование испарения пробы из ионного источника с поверхностной ионизацией в частично замкнутой полости. - Радиохимия, 1980, № 4, с.550-553.

Калыгин Владимир Викторович

Высокоэффективный источник ионов для масс-спектрометрического исследования редкоземельных и трансурановых элементов

---

Подписано к печати 29.12.81. ЗМО4448. Формат 60x90 <sup>1</sup>/<sub>16</sub>, Уч.-изд.л. ~1. Тираж 150 экз. Заказ 2041. 1981г.

---

Отпечатано на ротапринтере НИИАР, г.Димитровград