

Разработана азотно-кислотная технология переработки апатита с извлечением фосфора в виде нитратно-фосфатных удобрений, стронция в виде карбоната, редкоземельных элементов в виде концентрата, кремнефторида натрия и мела как средства для агломерации почв. Технология комплексной переработки апатитового концентрата была внедрена на Кирово-Чепецком химическом комбинате в 1985 г. с извлечением 98,5% фосфора, 35% стронция при 99%-ной утилизации азотной кислоты.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Zefirov A.P., Skorovarov J.I., Nevsky B.V. e.a. Processing of clayish-pyrite ores containing uranium, phosphorus and rare earths. — In: Proc. Intern. Conf. the Recovery of Uranium. Vienna: IAEA, 1971, p. 417—425.
2. Zefirov A.P., Ivanov G.F., Smirnov I.P. e.a. Technological studies the extraction of uranium and other valuable components from uranium-containing bituminous shales. — Ibid., p. 425—435.
3. Ласкорин Б.Н., Скороваров Д.И., Смирнов И.П. и др. Добыча и переработка урановых руд в СССР. — Атомная энергия, 1983, т. 54, вып. 4, с. 286—292.
4. Skorovarov J.I., Laskorin B.N., Smirnov I.P. e.a. Processing of low-grade uranium ores in the USSR. — In: Proc. Intern. Conf. the Recovery of Uranium. Vienna: IAEA, 1976, p. 141—153.
5. Смирнов И.П. Автоклавные процессы в металлургии цветных металлов. — Цветные металлы, 1988, № 12, с. 34—35.
6. Смирнов И.П., Пирковский С.А., Смирнов К.М. и др. Современные направления в разработке технологии комплексного использования уран-ванадиевого и традиционного (техногенного) сырья. — В сб.: Стратегия использования и развития минерально-сырьевой базы редких металлов в России в XXI веке. Тезисы докладов Межд. конф., Москва, 5—9 октября, 1998, с. 356.
7. Skorovarov J.I., Shatalov V.V., Smirnov I.P. e.a. All-Russian Research Institut of Chemical Technology in processing uranium minerals development and industrial implementation in CIS countries. — In: Proc. Intern. Conf. of Uranium Extraction. Oct. 22—25, 1996. Beijing, China, IAEA, p. 25—34.
8. Смирнов И.П., Мальчевская Л.А. Комплексная переработка уран-молибденовых руд. — В сб.: Информационные материалы АО «Атомредметзолото». Реалии и перспективы уникального горно-обогатительного комплекса Минатома России. 1996.
9. Смирнов И.П. Применение автоклавных процессов в гидрометаллургии. — Конверсия в машиностроении, 1998, № 2, с. 44—46.
10. Шаталов В.В., Скороваров Д.И., Смирнов И.П. Развитие научных разработок и создание передовой технологии в гидрометаллургии урана. — Атомная энергия, 1999, т. 86, вып. 5, с. 331—338.

Поступила в Редакцию 22.06.01

УДК 621.384.8

ИССЛЕДОВАНИЯ РАССЕЯНИЯ ИОНОВ UF_5^+ НА МОЛЕКУЛАХ N_2

Латыпов З.З., Галль Л.Н., Санунов П.С.

(Институт аналитического приборостроения РАН)

Для вычисления изотопической чувствительности масс-спектрометров, определяемой рассеянием ионов основного пучка на молекулах остаточного газа и стенках камеры анализатора, необходимо знать эффективное сечение упругого столкновения некоторых атомных и молекулярных частиц. К настоящему времени экспериментальные сечения упругого столкновения ионов UF_5^+ с молекулами азота и атомами железа, которые необходимы для определения чувствительности масс-спектрометров, предназначенных для исследования количественного состава соединений урана, неизвестны. Их можно оценить, построив усредненные по равновероятным ориентациям потенциалы взаимодействия рассматриваемых молекулярных частиц, которые позволяют найти классическую функцию отклонения сталкивающихся частиц и, следовательно, дифференциальное эффективное сечение в заданном диапазоне угла.

Используем для описания анизотропного взаимодействия молекулярных систем многоцентровое представление, основанное на аддитивных межатомных потенциалах. Предположение об аддитивности межатомных потенциалов эквивалентно предположению о равенстве полного поперечного импульса $\Delta p_{\perp}$, определяющего угол отклонения, сумме импульсов, полученных в процессе взаимодействия каждым из атомов.

Как показано в работе [1], для описания ориентаций сталкивающихся частиц удобно использовать плоскость $хоу$ системы с осью z вдоль вектора относительной скорости v . Относительно этой плоскости положение осесимметричной двухатомной молекулы азота определяют два угла: полярный ψ ($0-\pi$) и азимутальный χ ($0-2\pi$). В целях удобства рассмотрения выберем ориентацию «правильного шестигранника»

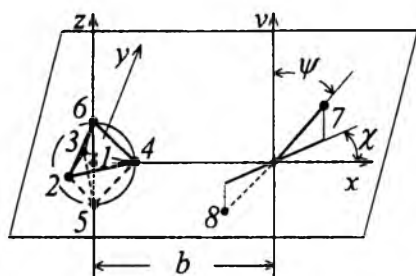


Рис. 1. Система координат и параметры столкновения ионов UF_5^+ с молекулами азота

UF_5^+ , в вершинах которого расположены атомы фтора таким образом, что три атома фтора и атом урана находятся на этой плоскости, как показано на рис. 1. Перенумеруем атомы: № 1 — атом урана, № 2—6 — атомы фтора, № 7, 8 — атомы азота. Положения проекций атомов UF_5^+ будут определяться азимутальными углами χ_i и проекциями длины связей $U-F$ на плоскость $хоу$. Положение проекций атомов азота определяются углами χ_j и длиной связи $N-N$ в молекуле азота. В табл. 1 приведены углы, определяющие первую ориентацию сталкивающихся частиц.

Для малых углов рассеяния знание проекций молекул на плоскость $хоу$ (рис. 2) позволяет найти расстояние b_{ij} наибольшего сближения атомов урана, фтора, азота (межатомные прицельные параметры) по углам φ_n , χ_n , длине связи атомов урана и фтора $r_2 = 0,1994$ нм, азота $2r_1 = 0,1094$ нм и межмолекулярному прицельно-му расстоянию b :

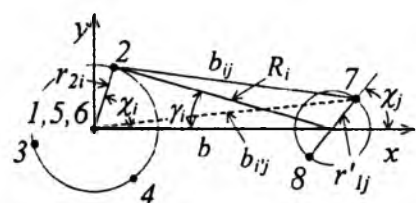


Рис. 2. Схема для вычисления расстояния наибольшего сближения сталкивающихся атомов

Таблица 1. Координаты атомов для ориентации молекул $k = 1$

Номер атома	χ_i	ψ_i
1	0	0
4	0	90°
6	0	0
5	0	180°
2	120°	90°
3	240°	90°
7	χ_j	ψ_j
8	χ_j	ψ_j

нахождения R_i по уравнению (2). Для атомов $i = 1, 5, 6$ с координатами $\chi_i = 0$, $\psi_i = 0$ величина b_{ij} равна $b_{i'j}$:

$$b_{ij} = r_{1j} \left(1 + 2 \frac{R_i \cos(\gamma_i + \chi_j)}{r_{1j}} + \frac{R_i^2}{r_{1j}^2} \right)^{1/2}, \quad (1)$$

где

$$R_i = r_{2i} \left(1 - 2 \frac{b}{r_{2i}} \cos \chi_i + \frac{b^2}{r_{2i}^2} \right)^{1/2};$$

$$r_{2i} = r_2 |\sin \psi_i|;$$

$$r_{1j} = r_1 |\sin \psi_j|. \quad (2)$$

Здесь $i = 2, 3, 4$; $j = 7, 8$; χ_j — азимутальный угол, определяющий положение атомов азота. Координаты атомов урана и фтора определяют угол χ_i для

$$b_{i'j} = b \left(1 + 2 \frac{r_{1j}}{b} \cos \chi_j + \frac{r_{1j}^2}{b^2} \right)^{1/2}. \quad (3)$$

Т а б л и ц а 2. Координаты атомов для ориентации молекул $k = 2-5$

Номер атома	χ_i	ψ_i
$k=2$		
1	0	0
4	90°	90°
6	0	0
5	0	180°
2	210°	90°
3	330°	90°
$k=3$		
1	0	0
4	180°	90°
6	0	0
5	0	180°
2	300°	90°
3	420°	90°
$k=4$		
1	0	0
4	0	90°
6	270°	90°
5	90°	90°
2	180°	30°
3	180°	150°
$k=5$		
1	0	0
4	0	0
6	0	90°
5	180°	90°
2	90°	60°
3	270°	60°

Угол γ_i для вычисления по уравнению (1) находим по формуле

$$\cos \gamma_i = \frac{1}{2} \left(\frac{b}{R_i} + \frac{R_i}{b} - \frac{r_{2i}^2}{bR_i} \right).$$

Молекулярный ион UF_5^+ «близок» к сферической симметрии, поскольку вокруг атома урана расположены на одинаковом расстоянии пять атомов фтора, поэтому полученные результаты по функциям отклонения будем усреднять по ограниченному числу выбранных ориентаций этого иона, например, пяти ($k = 1, 2, 3, 4, 5$ — номера ориентации). Вторая, третья, четвертая и пятая ориентации получаются поворотом молекулярного иона по отношению к первой ориентации (см. рис. 1) вокруг оси z на 90° и 180°, вокруг оси x на 90° и вокруг оси y на 90° соответственно. В табл. 2 приведены координаты проекций атомов молекулярного иона на плоскости $хо$ для 2, 3, 4, 5-й ориентаций. Отметим еще раз, что вычисление величины b_{ij} по уравнению (3) проводится для атомов с координатами $x_i = 0$ и $y_i = 0$ (для второй и третьей ориентаций это номера атомов 1, 5, 6, для четвертой ориентации — атом номер 1, пятой — атомы с номерами 1, 4).

Отклонение для рассеяния ионов UF_5^+ на молекулах азота при фиксированной ориентации N_2 рассчитаем по выражению (7) из работы [1]. Тогда применительно к нашему случаю для функции отклонения при фиксированной ориентации молекулы азота будем иметь

$$\theta_k(b, \psi_j, \chi_j) = \frac{1}{E} \left[\sum_i b_{ij}^2 P_{ij}^2 + \sum_{i'} b_{i'j}^2 P_{i'j}^2 + \sum_{i \neq i' \neq j'} \sum (x_{ij} x_{i'j'} P_{ij} P_{i'j'} + y_{ij} y_{i'j'} P_{ij} P_{i'j'}) \right]^{1/2}, \quad (4)$$

где $x_{ij} = |R_i \cos \gamma_i + r_{1j} \cos \chi_j|$, $y_{ij} = |R_i \sin \gamma_i + r_{1j} \sin \chi_j|$.

В этой формуле b_{ij} и $b_{i'j}$ определены по формулам (1) и (3), $P(b_{ij}, b_{i'j})$ — интегралом [1] с использованием b_{ij} и $b_{i'j}$ в нижнем пределе:

$$\int_{b_{ij}}^{\infty} \frac{dV_{ij, i'j}}{dr} \frac{dr}{\sqrt{r^2 - b_{ij}^2}} = P(b_{ij}). \quad (5)$$

В выражении (5) функция $V_{ij, i'j}$ — модифицированный потенциал Фирсова

$$V(r)_{ij, i'j} = \frac{Z_{i,i'} Z_j e^2}{r} \tilde{\chi}(r),$$

где $Z_{i,i'}$, Z_j — заряд ядер атомов, функция экранирования имеет вид

$$\tilde{\chi}(r) = \left[a \exp\left(-\frac{\alpha}{A} r\right) + \tilde{b} \exp\left(-\frac{\beta}{A} r\right) \right]^2.$$

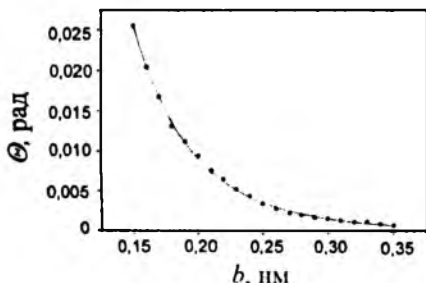
Здесь $a = 0,7111$, $\tilde{b} = 0,2889$, $\alpha = 0,1750$, $\beta = 1,6625$, $A = 0,8853a_0/(Z_i^{1/2} + Z_j^{1/2})^{2/3}$, a_0 — радиус первой боровской орбиты.

Для получения конечного результата для угла рассеяния $\theta(b)$ необходимо усреднить углы, полученные по ориентациям двухатомной молекулы (по уравнению (4)), т.е. по углам ψ_j и χ_j :

$$\theta_k(b) = \frac{1}{4\pi E} \left[\int_0^\pi \sin\psi_7 d\psi_7 \int_0^{2\pi} \Phi(b, \psi_7, \chi_7) d\chi_7 + \int_0^\pi \sin\psi_8 d\psi_8 \int_0^{2\pi} \Phi(b, \psi_8, \chi_8) d\chi_8 \right],$$

а также по пяти ориентациям молекулярного иона $\theta(b) = \frac{1}{5} \sum_{k=1}^5 \theta_k(b)$. Формула потен-

циала (5) используется для вычислений на компьютере классической функции отклонения $\theta(b)$ при разной энергии. Максимальный и минимальный прицельный параметр определяется областью изменения угла рассеяния θ , важной при исследовании эффектов рассеяния в масс-спектрометрах. Эта область определяется углами $0,017 < \theta < 0,35$ рад [2]. Кинетическая энергия ионов в нашем случае находится в области $2 < E < 10$ кэВ. Заряды ядер атомов рассматриваемой системы равны $Z(U) = 92$, $Z(F) = 9$, $Z(N) = 7$. Для дальнейшего использования результатов необходимо получить аналитическую зависимость $\theta(b)$. Аппроксимировать кривые удобно, например, функцией $\theta(b) = 1/E \exp(-P_1 b)(P_2 - P_3 b + P_4 b^2)$, где подобранные константы $P_1 = 2,0 \pm 0,3$, $P_2 = 3,0 \pm 0,5$, $P_3 = 0,34 \pm 0,02$, $P_4 = 0,11$.



Р и с. 3. Классическая функция отклонения $\theta(b)$ ионов UF_5^+ на молекулах N_2 при энергии столкновения 5 кэВ

Рассчитанные функции $\theta(b)$ для частиц $UF_5^+ - N_2$ при энергии ионов 5 кэВ приведены на рис. 3. Учитывая зависимость $\theta(b) \sim 1/E$, легко перейти к другой энергии иона. По зависимости [3] дифференциального сечения упругого рассеяния $\sigma(b)$ от параметра удара $2\pi\sigma(\theta)\sin\theta d\theta = -2\pi b db$ найдено полное сечение в диапазоне угла рассеяния $0,0004 - 0,025$ рад. В этом диапазоне угла выполняется справедливость классического описания столкновений ионов UF_5^+ с молекулами азота. Например, для энергии $E = 5$ кэВ эта величина равна $3,1 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2$.

Описанный метод расчета рассеяния ионов UF_5^+ на молекулах N_2 может быть применен для расчета рассеяния ионов на атомах железа. Эта проблема также важна [2] для определения изотопической чувствительности, так как открывается возможность учета эффектов отражения ионов от стенок камеры анализатора и кромок коллимирующих диафрагм. Для этого следует межъядерное расстояние $2r_1$ положить равным нулю в выражениях (1), (3) и выбрать ядерный заряд атома равным $Z(Fe) = 26$.

Восстановление усредненного по равновероятным ориентациям потенциала взаимодействия двух молекул $V(r)$ по полученной зависимости $\theta(b)$ проведено с помощью формулы [3], выведенной в рамках классической механики. В результате найден искомым потенциал в виде $V(r) = 6,28 \exp(-31,1r)$ (потенциал определен в кэВ, расстояние — нм). Здесь r определяется выражением $r = b(1 - V(r)/E)^{-1/2}$. Диапазон расстояний, в котором определяется потенциал взаимодействия, однозначно связан с интервалом исследованных углов и составляет $0,15 < r < 0,35$ нм.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Леонас В.Б. Исследования короткодействующих межмолекулярных сил. — Успехи физ. наук, 1972, т. 107, вып. 1, с. 29—56.
2. Александров М.Л., Плисс Н.С. Исследования влияния рассеяния и отражения ионов на изотопическую чувствительность статических масс-спектрометров методом статистического моделирования. — В сб.: Приборы для научных исследований и автоматизации эксперимента, 1982, с. 20—32.
3. Фирсов О.Б. Определение сил, действующих между атомами, при помощи дифференциального сечения упругого рассеяния. — ЖЭТФ, 1953, т. 24, вып. 3, с. 279—283.

Поступила в Редакцию 6.04.01

УДК 621.039, 539.1.074

ИНТЕРПРЕТАЦИЯ СИГНАЛОВ ПОРОГОВЫХ КАМЕР ДЕЛЕНИЯ

Кацук Ю.А., Фрунзе В.В. (ГНЦ РФ — ТРИНИТИ)

Пороговые детекторы применяют для измерения энергетического распределения нейтронов в ядерном реакторе [1, 2]. При этом для пороговых активационных фольг или камер деления (^{238}U , ^{237}Np , ^{232}Th и др.) используют упрощенное представление энергетической зависимости сечения реакций в виде одноступенчатой функции [3]

$$\sigma = \begin{cases} \sigma_{\text{эф}}, & E \geq E_{\text{эф}}, \\ 0, & E < E_{\text{эф}}, \end{cases}$$

где $\sigma_{\text{эф}}$, $E_{\text{эф}}$ — эффективное сечение и эффективная энергия порога ядерной реакции соответственно, определяемые по уравнению

$$\int_E^{\infty} \Phi(E) \sigma(E) dE = \sigma_{\text{эф}} \int_{E_{\text{эф}}}^{\infty} \Phi(E) dE, \quad (1)$$

где $\Phi(E)$ — исследуемый дифференциальный спектр нейтронов; E — истинный порог ядерной реакции. Для определения $\sigma_{\text{эф}}$ по формуле (1) обычно используют спектр нейтронов деления $F(E)$, который близок к измеряемому спектру $\Phi(E)$. Анализ вклада отдельных групп нейтронов [3] в сигнал камеры деления с различными радиаторами при воздействии на них спектра деления позволяет определить основную энергетическую группу, вносящую наиболее значительный вклад в сигнал детектора. Так, при воздействии нейтронов спектра деления на ^{238}U весомый вклад (42,7%) в скорость деления вносит группа нейтронов 1,4—2,5 МэВ. Доля сигнала группы 0,8—1,4 МэВ мала и составляет 1,3%. Поэтому в качестве эффективной пороговой энергии можно выбрать $E_{\text{эф}} = 1,4$ МэВ для камеры деления с радиатором ^{238}U . Причем поскольку природный уран, кроме ^{238}U (его доля 99,3%), содержит $\sim 0,7\%$ ^{235}U , при обработке результатов вычитается вклад от беспороговой реакции деления ^{235}U [1]. Располагая интегральными потоками, найденными по формуле (1) для камер деления с разными радиаторами, например, с ^{232}Th , ^{238}U и ^{237}Np , можно определить потоки нейтронов $\Phi(E)\Delta E$ в энергетических группах, границы которых определены эффективной энергией этих элементов. Для спектра деления эффективная пороговая энергия ^{232}Th , ^{237}Np и ^{238}U равна 1,9, 0,7 и 1,6 МэВ [1] соответственно. Поэтому спектр быстрых нейтронов в ядерном реакторе, определенный по сигналам этих камер, может быть представлен потоками нейтронов в трех энергетических группах 0,7—1,6, 1,6—1,9 и 1,9—15 МэВ.

Аналогичный подход может быть предпринят в случае применения пороговых камер деления для регистрации быстрых термоядерных нейтронов. Располагая значением