

PEACEFUL USES OF ATOMIC ENERGY

Proceedings of the Third International Conference
Geneva, 31 August—9 September 1964

VOLUME 15



UNITED NATIONS

PROCEEDINGS OF THE THIRD INTERNATIONAL CONFERENCE
ON THE PEACEFUL USES OF ATOMIC ENERGY

Volume 15

SPECIAL ASPECTS OF NUCLEAR ENERGY AND ISOTOPE APPLICATIONS

ACTES DE LA TROISIÈME CONFÉRENCE INTERNATIONALE
SUR L'UTILISATION DE L'ÉNERGIE ATOMIQUE À DES FINS PACIFIQUES

Volume 15

ASPECTS PARTICULIERS DE L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE ET APPLICATIONS
DES RADIOÉLÉMENTS

ТРУДЫ ТРЕТЬЕЙ МЕЖДУНАРОДНОЙ КОНФЕРЕНЦИИ
ПО ИСПОЛЬЗОВАНИЮ АТОМНОЙ ЭНЕРГИИ В МИРНЫХ ЦЕЛЯХ

Том 15

СПЕЦИАЛЬНЫЕ АСПЕКТЫ
ПРИМЕНЕНИЯ ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГИИ И ИЗОТОПОВ

ACTAS DE LA TERCERA CONFERENCIA INTERNACIONAL
SOBRE LA UTILIZACIÓN DE LA ENERGÍA ATÓMICA CON FINES PACÍFICAS

Volumen 15

ASPECTOS ESPECIALES DE LA ENERGÍA NUCLEAR
Y EMPLEO DE LOS RADIOELEMENTOS

The designations employed and the presentation of the material in this publication do not imply the expression of any opinion whatsoever on the part of the Secretariat of the United Nations concerning the legal status of any country or territory or of its authorities, or concerning the delimitation of its frontiers.

Les désignations utilisées dans cette publication et la présentation des données qui y figurent n'impliquent de la part du Secrétariat de l'Organisation des Nations Unies aucune prise de position quant au statut juridique de tel ou tel pays ou territoire, ou de ses autorités, ni quant au tracé de ses frontières.

Употребляемые здесь обозначения и оформление материала не должны рассматриваться как выражение какого бы то ни было мнения со стороны Секретариата Организации Объединенных Наций относительно правового статуса той или иной страны или территории или ее властей, или относительно делимитации ее границ.

Las denominaciones empleadas en esta publicación y la forma en que aparecen presentados los datos que contiene no implican, de parte de la Secretaría de las Naciones Unidas, juicio alguno sobre la condición jurídica de ninguno de los países o territorios citados o de sus autoridades, ni respecto de la delimitación de sus fronteras.

A/CONF.28/1, Vol. 15

UNITED NATIONS PUBLICATION

Sales No.: 65. IX. 15

Price: \$U.S. 12.50
(or equivalent in other currencies)

PRINTED IN SWITZERLAND

**Proceedings of
the Third International Conference
on the Peaceful Uses of Atomic Energy**

**Held in Geneva
31 August–9 September 1964**

**Volume 15
Special Aspects of Nuclear Energy
and Isotope Applications**

MULTILINGUAL EDITION
ÉDITION MULTILINGUE
МНОГОЯЗЫЧНОЕ ИЗДАНИЕ
EDICIÓN PLURILINGÜE



**UNITED NATIONS
New York
1965**

EXPLANATORY NOTE

The Proceedings of the Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy comprise a single, multilingual publication of sixteen volumes. This form was prescribed by the General Assembly of the United Nations in approving the Conference budget.

Papers accepted for consideration at the Conference are accordingly printed herein only in the original language of submission, each being followed by its abstract in the other three languages of the Conference.*

The budgetary arrangements for the Conference required also that Governments provide abstracts and papers in two of the Conference languages. One of the three abstracts following each paper is, therefore, in a translation provided by the Government concerned. The abstracts were translated into the other two languages either by the Division of Language Services, International Atomic Energy Agency (IAEA) in Vienna, or, with its assistance, through the intermediary of the national atomic energy authorities in London, Paris, Moscow and Madrid.

The Foreword by the Secretary-General of the United Nations, the Preface by the Director General of IAEA, and this Explanatory Note, together with the records of discussion at each of the six scientific general sessions and thirty-six technical sessions of the Conference, are published in all four languages. All other material, which is largely of a formal nature and is confined to Volumes 1 and 16, is published in the language of submission or delivery, followed in the case of French, Russian and Spanish originals by the English translation.

Governments whose national tongue is not one of the four Conference languages were consulted as to their preference for the language in which their papers should appear in these Proceedings.

The Table of Contents in each volume gives the titles of papers in the original language, or language of choice, followed in the case of French, Russian and Spanish titles by the English translation.

Starting from the 992 abstracts submitted by Governments, specialized agencies and IAEA, the Scientific Secretariat, working under the guidance

* The languages of the Conference were English, French, Russian and Spanish.

of the United Nations Scientific Advisory Committee, finally chose 747 papers for inclusion in the Programme of the Conference; of these, 358 were selected for oral presentation at the 42 working sessions.

In arranging the programme, the Scientific Secretariat aimed at achieving a balanced schedule, providing for the oral presentation of as many papers as possible at each session while still leaving adequate time for discussion of the material presented. Two afternoons were left entirely free, to enable informal groups to discuss matters arising out of discussions at the formal sessions of the Conference. No records were taken of such informal meetings.

Wherever possible, the author, or authors, of papers were consulted during the Conference by members of the Scientific Secretariat, who acted as secretaries of session, or by the team of editors made available for the purpose by IAEA,** to ensure maximum accuracy.

The records of discussion at the various sessions, based on notes taken in the meetings by IAEA records officers,** and checked where necessary against the sound recordings made of all sessions, were prepared by the Division of Language Services of IAEA in English, and subsequently translated into French, Russian and Spanish through the intermediary of the atomic energy authorities in the three countries concerned (see third paragraph of the present note).

The editing of the English, French and Spanish papers was carried out at the United Nations Office at Geneva under United Nations supervision by a team of editors, whose services, also, were made available by the atomic energy authorities of their respective countries, with some help from outside consultants. The editing of the Russian papers was done in Moscow in similar circumstances. The following served as editors: Mr. A. de Calmès, Dr. C. E. Granados, Mr. D. H. Hill, Mr. V. F. Kalinin, Cand. Tech. Sc., Dr. R. Lapage, Mr. E. T. Marles, Dr. J. D. C. Mole, Mr. C. Ségot, Mr. J. J. Stobbs, Mr. C. R. Symons and Mr. J. Williamson.

The task of printing this large collection of scientific information has been shared by printers in

** The names of the scientific secretaries, editors and records officers will be found in the list of the Conference Secretariat in Annex I, Volume 1, of this series.

Belgium, Canada, France, Switzerland, the Union of Soviet Socialist Republics and the United Kingdom.

Full titles of the sixteen volumes of these Proceedings, together with the sessions covered by each volume, are as follows:

Volume No.		Sessions included
1	Progress in Atomic Energy.....	A, B, 1.6, C, H
2	Reactor Physics	3.1
3	Reactor Studies and Performance	3.2, 3.3
4	Reactor Control	3.4, 3.5
5	Nuclear Reactors — I. Gas-cooled and Water-cooled Reactors	1.1, 1.2, 1.3
6	Nuclear Reactors — II. Fast Reactors and Advanced Concepts.....	1.4, 1.5, 1.7
7	Research and Testing Reactors.....	D, 1.9, 1.8
8	Reactor Engineering and Equipment	1.10, 1.11, 3.7
9	Reactor Materials	2.8, 2.9, 2.4
10	Nuclear Fuels — I. Fabrication and Reprocessing	2.3, 2.6, 2.7
11	Nuclear Fuels — II. Types and Economics	2.5, 2.1, 2.2
12	Nuclear Fuels — III. Raw Materials	2.11, 2.12, 2.10
13	Nuclear Safety	3.9, 3.8 3.6
14	Environmental Aspects of Atomic Energy and Waste Management	3.10, 3.11
15	Special Aspects of Nuclear Energy and Isotope Applications	E, 4.1, F, G, 4.2
16	List of Papers and Indexes	

NOTE EXPLICATIVE

Les Actes de la troisième Conférence internationale sur l'utilisation de l'énergie atomique à des fins pacifiques sont publiés ici sous la forme d'une édition unique, multilingue, en seize volumes. Cette présentation a été décidée par l'Assemblée générale lorsqu'elle a approuvé le budget de la Conférence.

En conséquence, les mémoires qui ont été acceptés pour la Conférence sont reproduits ici dans la langue originale dans laquelle ils ont été soumis et sont suivis d'un résumé dans les trois autres langues de la Conférence*.

Aux termes des dispositions budgétaires prises en vue de la Conférence, les gouvernements devaient fournir les résumés et les mémoires dans deux des langues de la Conférence. Ainsi, sur les trois résumés qui suivent chaque mémoire, un est une traduction fournie par le gouvernement intéressé. La traduction des résumés dans les deux autres langues a été faite soit par la Division des services linguistiques de l'Agence internationale de l'énergie atomique (AIEA), à Vienne, soit avec son concours, par les soins des organismes nationaux compétents en matière d'énergie atomique à Londres, Paris, Moscou et Madrid.

L'avant-propos du Secrétaire général de l'Organisation des Nations Unies, la préface du Directeur général de l'AIEA et la présente note explicative, ainsi que les comptes rendus de chacune des six séances scientifiques générales et des trente-six séances techniques de la Conférence, sont publiés dans les quatre langues. Tous les autres textes, qui pour la plupart sont d'un caractère non technique et figurent dans les volumes 1 et 16, sont publiés dans la langue dans laquelle ils ont été présentés par écrit ou oralement et sont suivis, lorsque cette langue est l'espagnol, le français ou le russe, d'une traduction en anglais.

Les gouvernements des pays dont la langue officielle n'est pas l'une des quatre langues utilisées à la Conférence ont été consultés pour savoir dans quelle langue ils préféreraient voir paraître leurs mémoires.

La table des matières de chaque volume donne les titres des mémoires dans la langue originale ou dans la langue choisie; ces indications sont suivies,

pour les titres en espagnol, en français et en russe, de la traduction en anglais.

Sur les 992 résumés présentés par les gouvernements, les institutions spécialisées et l'AIEA, le Secrétariat scientifique, travaillant sous la direction du Comité consultatif scientifique des Nations Unies, en a finalement retenu 747 pour les inscrire au programme de la Conférence; sur ce nombre, 358 ont été présentés oralement aux 42 séances de travail.

En établissant le programme de la Conférence, le Secrétariat scientifique a cherché à réaliser un équilibre: il s'est efforcé de ménager un temps suffisant pour la présentation du plus grand nombre possible de mémoires tout en laissant du temps pour leur discussion. Deux après-midi avaient été laissés entièrement libres afin de permettre aux participants d'organiser des réunions non officielles et de discuter en petits groupes des questions qui se posaient à la suite des séances officielles de la Conférence. Ces réunions n'ont pas fait l'objet de comptes rendus.

Toutes les fois que cela a été possible, l'auteur ou les auteurs des mémoires ont été consultés pendant la Conférence par les membres du Secrétariat scientifique, qui ont assuré le secrétariat des séances, ou par l'équipe d'«éditeurs» que l'AIEA** avait mis à cet effet à la disposition de la Conférence, afin d'assurer l'exactitude la plus grande.

Les comptes rendus des discussions aux réunions, établis d'après les notes prises en séance par les rédacteurs de comptes rendus de l'AIEA** et comparés toutes les fois qu'il le fallait avec les enregistrements sonores, ont été rédigés en anglais par la Division des services linguistiques de l'AIEA, puis traduits en espagnol, en français et en russe par les soins des organismes compétents en matière d'énergie atomique des trois pays intéressés (voir le troisième alinéa de la présente note).

Les mémoires rédigés en anglais, en espagnol et en français ont été mis au point pour l'impression à l'Office européen des Nations Unies à Genève, sous le contrôle de l'ONU, par une équipe de rédac-

* Les langues de la Conférence étaient l'anglais, l'espagnol, le français et le russe.

** On trouvera les noms des secrétaires scientifiques, des «éditeurs» et des rédacteurs de comptes rendus dans la liste des membres du secrétariat de la Conférence à l'annexe 1 du volume 1.

teurs mis à la disposition de la Conférence par les organismes compétents en matière d'énergie atomiques des pays intéressés, avec l'aide de quelques consultants extérieurs. La mise au point définitive des mémoires rédigés en russe a été faite à Moscou dans les mêmes conditions. Voici les noms des rédacteurs qui ont assuré la mise au point des mémoires: M. A. de Calmès, M. C. E. Granados, M. D. H. Hill, M. V. F. Kalinin, M^{lle} R. Lapage, M. E. T. Marles, M^{lle} J. D. C. Mole, M. C. Ségot,

M. J. J. Stobbs, M. C. R. Symons et M. J. Williamson.

Des entreprises de Belgique, du Canada, de France, du Royaume-Uni, de Suisse et de l'Union des Républiques socialistes soviétiques se sont partagé la tâche que représentait l'impression de cette masse importante de documents scientifiques.

Les titres complets des seize volumes des Actes de la Conférence, ainsi que les numéros des séances sur lesquelles porte chaque volume, figurent ci-après:

<i>Numéro du volume</i>		<i>Séances</i>
1	Progrès accomplis dans le domaine atomique	A, B, 1.6, C, H
2	Physique des réacteurs	3.1
3	Etude des réseaux et performance des réacteurs	3.2, 3.3
4	Contrôle des réacteurs.....	3.4, 3.5
5	Réacteurs nucléaires — I. Réacteurs refroidis par un gaz et réacteurs refroidis à l'eau	1.1, 1.2, 1.3
6	Réacteurs nucléaires — II. Réacteurs à neutrons rapides et réacteurs d'avant-garde	1.4, 1.5, 1.7
7	Réacteurs de recherche et réacteurs d'essai de matériaux.....	D, 1.9, 1.8
8	Technologie et équipement des réacteurs	1.10, 1.11, 3.7
9	Matériaux pour réacteurs	2.8, 2.9, 2.4
10	Combustibles nucléaires — I. Fabrication et retraitement	2.3, 2.6, 2.7
11	Combustibles nucléaires — II. Caractéristiques et aspects économiques	2.5, 2.1, 2.2
12	Combustibles nucléaires — III. Matières premières	2.11, 2.12, 2.10
13	Sûreté nucléaire	3.9, 3.8, 3.6
14	Influence sur le milieu de l'emploi de l'énergie nucléaire. Traitement et élimination des déchets	3.10, 3.11
15	Aspects particuliers de l'énergie nucléaire et applications des radioéléments..	E, 4.1, F, G, 4.2
16	Liste des mémoires et index	

ПОЯСНИТЕЛЬНАЯ ЗАПИСКА

Труды третьей Международной конференции по использованию атомной энергии в мирных целях представляют собой единое многоязычное издание из шестнадцати томов. Такая форма была предусмотрена Генеральной Ассамблеей Организации Объединенных Наций при одобрении ею бюджета Конференции.

Принятые к рассмотрению Конференцией доклады соответственно опубликованы здесь лишь на языке оригинала; при этом каждый доклад сопровождается аннотацией на других трех языках Конференции*.

Бюджетные постановления в отношении проведения Конференции также предусматривали, что правительства представят аннотации и доклады на двух языках Конференции. Поэтому одна из трех аннотаций, сопровождающих каждый доклад, является переводом, представленным соответствующим правительством. Аннотации были переведены на другие два языка либо Отделом переводов Международного агентства по атомной энергии (МАГАТЭ) в Вене, либо с его помощью при сотрудничестве национальных органов, ведающих вопросами атомной энергии, в Лондоне, Париже, Москве и Мадриде.

Введение и предисловие Генерального Секретаря Организации Объединенных Наций и Генерального директора МАГАТЭ, соответственно, и настоящая пояснительная записка, наряду с протоколами каждого из шести научных пленарных заседаний и тридцати шести секционных заседаний Конференции, публикуются на всех четырех языках. Все другие материалы, которые по своему характеру в основном относятся к числу официальных и содержатся в томах 1 и 16, публикуются на языке оригинала; и когда речь идет о французских, русских и испанских оригиналах, то к ним приложен английский перевод.

С правительствами стран, язык которых не относится к числу четырех языков Конфе-

ренции, были проведены консультации по поводу того, на каком языке было бы желательнее, по их мнению, опубликовать в настоящих трудах представленные ими доклады.

В содержании каждого тома указаны заглавия докладов на языке оригинала либо на другом избранном языке, и в том случае, когда речь идет о французских, русских и испанских заглавиях, их сопровождает английский перевод.

Из 992 аннотаций, представленных правительствами, специализированными учреждениями, а также МАГАТЭ, Ученый секретариат, работая под руководством Научного консультативного комитета Организации Объединенных Наций, в итоге отобрал 747 докладов для включения их в программу Конференции; из них 358 были отобраны для представления в устной форме на 42 рабочих заседаниях.

При составлении программы Ученый секретариат ставил целью добиться сбалансированного расписания, которое дало бы возможность представить в устной форме максимальное количество докладов на каждом заседании при обеспечении достаточного времени для проведения дискуссии по поводу представленного материала. В двух случаях имеющееся во второй половине дня время оставили нераспределенным, с тем чтобы дать возможность неофициальным группам обсудить вопросы, возникшие в ходе дискуссии на официальных заседаниях Конференции. На таких неофициальных заседаниях протоколы не составлялись.

По мере возможности, с автором или авторами докладов консультировались в ходе Конференции члены Ученого секретариата, которые выполняли функции секретарей заседаний, либо такие консультации проводились группой редакторов, которые были выделены МАГАТЭ** для этой цели, с тем чтобы обеспечить максимальную точность.

** Фамилии ученых секретарей, редакторов и протоколпистов приведены в перечне сотрудников секретариата Конференции в приложении 1-ом к тому 1-му настоящей серии.

* Языками Конференции являются: английский, французский, русский и испанский.

Протоколы дискуссии на различных заседаниях, составленные на основе записей, сделанных в ходе заседаний протоколистами МАГАТЭ*, и проверенные, по мере необходимости, путем сравнения со звуковой записью, которая велась на всех заседаниях, были подготовлены Отделом переводов МАГАТЭ на английском языке и впоследствии переведены на французский, русский и испанский языки при сотрудничестве национальных органов, ведающих вопросами атомной энергии, в трех заинтересованных странах (смотри третий абзац пояснительной записки).

Работа по редактированию документов на английском, французском и испанском языках была проведена в Европейском отделении Организации Объединенных Наций, в Женеве, под руководством Организации Объединенных Наций группой редакторов,

* Фамилии ученых секретарей, редакторов и протоколистов приведены в перечне сотрудников секретариата Конференция в приложениях 1-ом к тому 1-му настоящей серии.

услуги которых были также предоставлены по линии органов, ведающих вопросами атомной энергии в соответствующих странах, с использованием в некоторой степени помощи приглашенных со стороны консультантов. Русские документы редактировались в Москве в таких же условиях. Нижеследующие лица осуществляли работу в качестве редакторов: д-р К. Э. Гранадос, кандидат технических наук В. Ф. Калинин, г-н А. де Кальмэс, д-р Р. Лепейдж, г-н Э. Т. Марлз, д-р Дж. Д. К. Моул, г-н Ч. Р. Саймонс, г-н Дж. Дж. Стобз, г-н Ш. Сэго, г-н Дж. Уильямсон, г-н Д. Х. Хилл.

В выполнении задачи по печатанию этой обширной научной информации принимали участие типографии в Бельгии, Канаде, Соединенном Королевстве, Союзе Советских Социалистических Республик, Франции и Швейцарии.

Ниже приводятся полные заглавия шестнадцати томов настоящих Трудов, а также указывается, какие сессии охватываются каждым томом:

Номер Тема	Заседания, включенные в том
1 Прогресс в работах по атомной энергии	А, В, 1.6, С, Н
2 Физика реакторов	3.1
3 Изучение реакторов и их характеристики	3.2, 3.3
4 Регулирование реакторов	3.4, 3.5
5 Ядерные реакторы — I. Реакторы с водяным и газовым охлаждением	1.1, 1.2, 1.3
6 Ядерные реакторы — II. Реакторы на быстрых нейтронах и усовершенствованные реакторы	1.4, 1.5, 1.7
7 Исследовательские и испытательные реакторы	D, 1.9, 1.8
8 Технология и оборудование реакторов	1.10, 1.11. 3.7
9 Реакторные материалы	2.8, 2.9, 2.4
10 Ядерное топливо — I. Изготовление и переработка	2.3, 2.6, 2.7
11 Ядерное топливо — II. Типы и экономика	2.5, 2.1, 2.2
12 Ядерное топливо — III. Сырьевые материалы	2.11, 2.12, 2.10
13 Ядерная безопасность	3.9, 3.8, 3.6
14 Исследование окружающей среды и удаление радиоактивных отходов	3.10, 3.11
15 Специальные аспекты применения ядерной энергии и изотопов	E, 4.1, F, G, 4.2
16 Список докладов и указатели	

NOTA EXPLICATIVA

Las Actas de la tercera Conferencia Internacional sobre la Utilización de la Energía Atómica con Fines Pacíficos están constituidas por una publicación única y plurilingüe compuesta de dieciséis volúmenes, en conformidad con lo dispuesto por la Asamblea General de las Naciones Unidas al aprobar el presupuesto de la Conferencia.

Por consiguiente, las memorias aceptadas para ser examinadas en la Conferencia sólo figuran impresas en el idioma original en que se presentaron, y cada una de ellas va seguida de un resumen de la misma en los otros tres idiomas de la Conferencia*.

En los arreglos presupuestarios para la Conferencia se dispuso también que los gobiernos tenían asimismo que presentar resúmenes y memorias en dos de los idiomas de la Conferencia. En consecuencia, uno de los tres resúmenes que siguen a cada memoria es una traducción facilitada por el gobierno interesado. Los resúmenes fueron traducidos a los otros dos idiomas, ya por la División de Idiomas del Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) de Viena, o, con su asistencia, por conducto de las autoridades nacionales de energía atómica de Londres, París, Moscú y Madrid.

La introducción del Secretario General de las Naciones Unidas, el prefacio del Director General del OIEA y la presente nota explicativa, junto con las actas de los debates celebrados en cada una de las seis sesiones científicas generales y las treinta y seis sesiones técnicas de la Conferencia, se publican en los cuatro idiomas. El resto del material, que reviste en su mayoría un carácter oficial y está contenido exclusivamente en los volúmenes 1 y 16, se publica en el idioma en que fue presentado o entregado, seguido para los originales en español, francés y ruso, de la traducción en inglés.

Se consultó a los gobiernos cuyo idioma nacional no es uno de los cuatro idiomas de la Conferencia para saber en cuál de ellos preferían que se publicaran sus memorias en estas Actas.

El índice de cada volumen contiene los títulos de las memorias en el idioma original, o en el idioma elegido, seguidos, cuando se trata de títulos en español, francés y ruso, de la traducción en inglés.

De los 992 resúmenes presentados por gobiernos, organismos especializados y el OIEA, la Secretaría

Científica, bajo la dirección del Comité Científico Consultivo de las Naciones Unidas, escogió por último 747 memorias que debían ser incluidas en el programa de la Conferencia; de éstas, 358 fueron seleccionadas para ser presentadas oralmente en las 42 sesiones de trabajo.

Al preparar el programa de actividades, la Secretaría Científica trató de conseguir un justo equilibrio, y así se previó la presentación oral del mayor número posible de memorias en cada sesión, pero dejando todavía tiempo suficiente para examinar la información presentada. Se dejaron dos tardes totalmente libres, a fin de que los grupos oficiosos pudieran examinar las cuestiones que surgieran en las sesiones oficiales de la Conferencia. No se levantó acta de tales reuniones.

Siempre que fue posible, el autor, o los autores, de las memorias fueron consultados en el curso de la Conferencia por miembros de la Secretaría Científica, que actuaron de secretarios de sesión, o por un grupo de editores facilitado a dicho efecto por el OIEA**, a fin de asegurar la máxima exactitud.

Las actas de los debates celebrados en las diversas sesiones, basadas en notas tomadas en las reuniones por redactores de actas del OIEA**, y verificadas siempre que fue necesario mediante las grabaciones efectuadas en todas las sesiones, fueron preparadas por la División de Idiomas del Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) en inglés, y traducidas después al español, el francés y el ruso por conducto de las autoridades de energía atómica de los tres países interesados (véase el tercer párrafo de la presente nota).

La preparación para la publicación del texto de los documentos en español, francés e inglés se efectuó en la Oficina de Ginebra de las Naciones Unidas, bajo la fiscalización de las Naciones Unidas, por un equipo de editores cuyos servicios fueron también proporcionados por las autoridades de energía atómica de sus respectivos países, con alguna ayuda de consultores del exterior. La preparación para la publicación de los documentos en ruso se efectuó en Moscú en circunstancias análogas. Actuaron de editores las personas siguientes: Sr. A. de Calmès, Dr. C. E. Granados, Sr. D. H. Hill,

** Los nombres de los secretarios científicos, editores y redactores de actas figuran en la lista de la Secretaría de la Conferencia, en el anexo 1, volumen 1, de esta serie.

* Los idiomas de la Conferencia fueron el español, el francés, el inglés y el ruso.

Sr. V. F. Kalinin, Dra. R. Lapage, Sr. E. T. Marles, Dra. J. D. C. Mole, Sr. C. Ségot, Sr. J. J. Stobbs, Sr. C. R. Symons y Sr. J. Williamson.

En la impresión de esta gran recopilación de información científica han participado impresores

de Bélgica, el Canadá, Francia, el Reino Unido, Suiza y la Unión de Repúblicas Socialistas Soviéticas.

Los títulos completos de los dieciséis volúmenes de estas Actas, junto con las sesiones comprendidas en cada volumen, son los siguientes:

<i>Número del volumen</i>		<i>Sesiones</i>
1	Progresos realizados en el dominio atómico	A, B, 1.6, C, H
2	Física de los reactores.....	3.1
3	Estudios sobre reticulados. Funcionamiento de reactores	3.2, 3.3
4	Control de los reactores.....	3.4, 3.5
5	Reactores nucleares—I. Reactores refrigerados por gas y por agua.....	1.1, 1.2, 1.3
6	Reactores nucleares—II. Reactores rápidos y conceptos más avanzados.....	1.4, 1.5, 1.7
7	Reactores de investigación y de ensayo	D, 1.9, 1.8
8	Tecnología y equipo de los reactores	1.10, 1.11, 3.7
9	Materiales de los reactores	2.8, 2.9, 2.4
10	Combustibles nucleares—I. Fabricación y tratamiento	2.3, 2.6, 2.7
11	Combustibles nucleares—II. Características y estudios económicos.....	2.5, 2.1, 2.2
12	Combustibles nucleares—III. Primeras materias	2.11, 2.12, 2.10
13	Seguridad nuclear	3.9, 3.8, 3.6
14	Influencia del empleo de la energía nuclear sobre el ambiente. Evacuación de residuos	3.10, 3.11
15	Aspectos especiales de la energía nuclear y empleo de los radioelementos....	E, 4.1, F, G, 4.2
16	Lista de documentos e índices	

TABLE OF CONTENTS

Volume 15

Session E: Controlled nuclear fusion		Page
P/195	Snell <i>et al.</i>	Controlled fusion research in the United States of America ... 3
P/297	Арцимович	Исследования по проблеме управляемого ядерного синтеза и физике высокотемпературной плазмы в СССР ... 17
	<i>Artsimovich</i>	<i>Controlled thermonuclear fusion and high-temperature plasma physics research in the USSR</i>
P/881	Watson-Munro	Progress in controlled fusion and plasma physics in countries in the rest of the world—outside Europe, North America and the USSR 28
P/882	Schlüter	Controlled nuclear fusion research in Western Europe 35
Record of session E		42
Compte rendu de la séance E		50
Протокол заседания E		59
Acta de la sesión E		68
Session 4.1: Direct conversion of heat to electricity		
<i>Magnetohydrodynamics</i>		
P/45	Ricateau	Etudes préliminaires sur les convertisseurs magnétohydrodynamiques fonctionnant hors d'équilibre thermodynamique 81
		<i>Preliminary study of MHD converters operating in thermodynamic non-equilibrium</i>
P/133	Lindley	Nuclear magnetoplasma dynamic energy conversion 90
P/693	Dzung	Thermal problems of gas-cooled reactors for magnetohydrodynamic power generation 98
<i>Thermionic methods</i>		
P/44	Devin <i>et al.</i>	Conversion directe de la chaleur en électricité dans les piles ... 104
		<i>Direct conversion of heat into electricity in reactors</i>
P/132	Dunn, Adam	Fission-heated thermionic diodes 114
P/219	Salmi <i>et al.</i>	Thermionic diodes for direct-conversion reactors 123
P/317	Бондаренко <i>et al.</i>	Теоретические и экспериментальные исследования, связанные с разработкой термоэлектронных реакторов-преобразователей 131
	<i>Bondarenko et al.</i>	<i>Theoretical and experimental studies relating to the development of thermionic reactor-converters</i>

		<i>Page</i>
P/873	Миллионщиков <i>et al.</i> ... <i>Millionshchikov et al.</i>	146
	Высокотемпературный реактор-преобразователь «Ромашка» <i>The high-temperature direct conversion reactor "Romashka"</i>	146
 <i>Thermoelectric methods</i>		
P/217	Morse, Harvey	155
P/218	Dieckamp <i>et al.</i>	164
P/318	Воронин <i>et al.</i>	176
	<i>Voronin et al.</i>	176
	Isotopic power sources coupled with thermoelectric converters . Reactor direct-conversion units Термоэлектрические генераторы с изотопным источником тепла <i>Radioisotope-fuelled thermoelectric generators</i>	155 164 176 176
	Record of session 4.1	185
	Compte rendu de la séance 4.1	188
	Протокол заседания 4.1	191
	Acta de la sesión 4.1	194
 Session F: Applications of isotopes and radiation sources in the physical sciences		
P/196	Aebersold	201
P/298	Грузин	215
	<i>Gruzin</i>	215
P/875	Payne <i>et al.</i>	226
	Advances in radioisotope production and utilization in science and industry Применение изотопов и источников излучения в исследо- ваниях в области физических и химических наук <i>Use of isotopes and radiation sources in physical and chemical research</i>	201 215 226
	The role of radioisotope techniques in hydrology	226
	Record of session F	239
	Compte rendu de la séance F	241
	Протокол заседания F	244
	Acta de la sesión F	247
 Session G: Applications of isotopes and radiation sources in the life sciences		
P/874	Chagas	253
P/876	Broeshart <i>et al.</i>	264
P/880	Belcher <i>et al.</i>	275
	Les traceurs en biologie <i>Tracers in biology</i>	253
	Advances in the use of isotopes and radiation sources in agri- culture and food science Advances in the use of isotopes and radiation sources in medicine	264 275
	Record of session G	286
	Compte rendu de la séance G	290
	Протокол заседания G	294
	Acta de la sesión G	298

Session 4.2: Miscellaneous applications of atomic energy

Chemical applications

P/112	Minc <i>et al.</i>	Continuous methods of tracing chemical changes in fluids under gamma-irradiation	305
P/113	Jeżowska-Trzebiatowska, Kaleciński	Radiation chemistry in alkaline solutions	314
P/292	Manowitz <i>et al.</i>	The development of chemonuclear processes	322
P/542	Herre <i>et al.</i>	The use of power reactors as large-scale radiation sources for radiation-chemical production	332

Applications in industry, engineering and physics

P/92	Neel	Une nouvelle structure ordonnée, créée par irradiation aux neutrons <i>A new ordered structure created by neutron irradiation</i>	339
P/114	Tavares <i>et al.</i>	Pipeline wear in iron ore transportation	341
P/198	Machurek <i>et al.</i>	Current status and future prospects for commercial radiation processing	347
P/291	Johnson, Higgins	Engineering applications of nuclear explosives: project PLOW-SHARE	356
P/389	Полак	Радиационно-термический крекинг (РТК) нефти, нефтепродуктов и углеводородных газов	369
	Polak	<i>Radiation-thermal cracking of crude oil stocks and hydrocarbon gases</i>	
P/497	del Val <i>et al.</i>	Algunas aplicaciones de los elementos radiactivos como trazadores en obras públicas	379
		<i>Some applications of radioactive tracers in civil engineering</i>	
P/583	Селинов Selinov	Новые изотопы и систематика нуклидов	389
		<i>New isotopes and the systematics of nuclides</i>	
P/830	Colombo <i>et al.</i>	Contribution to the understanding of the natural evolution of petroleum: radiation effects on crude oils	402
P/854	Grimanis <i>et al.</i>	Determination of trace elements in the Greek lakes by neutron-activation analysis	412
P/862	Cless-Bernert <i>et al.</i>	Two radioactive sources used in an unconventional way	420
P/879	Наджаков	О научно-исследовательской деятельности по использованию атомной энергии в мирных целях в Народной Республике Болгарии (Обзорный доклад)	425
	Nadzhakov	<i>General review of scientific work on the peaceful uses of atomic energy in the People's Republic of Bulgaria</i>	

Methods and instrumentation

P/197	Guinn	Advance in neutron activation analysis	433
P/457	Abdel-Rassoul <i>et al.</i>	Separation and purification of certain radioisotopes for medical use	445
P/458	Ghanem	New developments in the accelerated isotopic labelling of organic compounds	452
P/825	Amiel	Neutron counting in activation-analysis	462

		<i>Page</i>
P/828	Platzek, Meyer	Choice of most suitable radiation characteristics for any given gauging problem 474
P/829	El-Shamy <i>et al.</i>	Determination of certain trace impurities in pure lead and aluminium by neutron-activation analysis 484
P/855	Mlinko, Szarvas	Gas-phase methods operating at atmospheric pressure for the analysis of soft beta-emitting isotopes 492
<i>Applications in the life sciences</i>		
P/841	Abdel-Rassoul <i>et al.</i>	Biological disposition of anti-bilharzial antimony drugs: estimation of antimony in body fluids and parasites by activation analysis 501
P/850	Malavolta <i>et al.</i>	The effect of liming on the availability of phosphate in "cerrado" soils of Brazil 507
P/853	Metz, Wyndham	Radioisotope studies of adaptation to residence at high altitudes and to heat stress 511
P/856	Kent	The effect of tritiated thymidine and gamma-irradiation on the mortality of <i>Drosophila melanogaster</i> larvae 518
	Record of session 4.2	523
	Compte rendu de la séance 4.2	526
	Протокол заседания 4.2	529
	Acta de la sesión 4.2	532

Session E

CONTROLLED NUCLEAR FUSION

LIST OF PAPERS

		<i>Page</i>
P/195	Controlled fusion research in the United States of America..... A. H. Snell <i>et al.</i>	3
P/297	Исследования по проблеме управляемого ядерного синтеза и физике высокотемпературной плазмы в СССР	17
	<i>Controlled thermonuclear fusion and high-temperature plasma physics research in the USSR</i>	<i>I. A. Artsimovich</i>
P/881	Progress in controlled fusion and plasma physics in countries in the rest of the world- outside Europe, North America and the USSR	28
P/882	Controlled nuclear fusion research in Western Europe	35

Controlled fusion research in the United States of America

By A. H. Snell, * L. Spitzer, ** J. L. Tuck *** and C. M. Van Atta ****

PART I. RESEARCH
AT THE UNIVERSITY OF CALIFORNIA
LAWRENCE RADIATION LABORATORY *****

Magnetic mirror program

Two techniques for the production of hot plasmas in mirror machines have been developed at the Lawrence Radiation Laboratory. In two of the three mirror experiments under way the method of plasma injection, followed by adiabatic (slow) magnetic compression is used. In the third, the method of neutral atom injection is used.

The smaller of the two plasma injection facilities is Table Top, shown in Fig. 1. This facility is used for the study of plasma instabilities and their stabilization at relatively low plasma density. Advanced vacuum techniques are used, including ionic pumps and liquid nitrogen cooled vacuum chamber walls, so that impurity effects play a minor role in the experiments, permitting long confinement and observation times.

The second plasma injection mirror machine is 2X, an enlarged version of the older Toy Top [1]. A view of this facility is shown in Fig. 2. Like the older Toy Top, the new facility is designed to permit the injection, heating and confinement of a plasma of substantial density (10^{13} to 10^{14} particles/cm³) and high temperature (4 kilovolts or higher) [2]. Unlike the older Toy Top, where vacuum and impurity problems limited the confinement time, 2X utilizes advanced vacuum techniques, which should permit the study of plasma confinement for longer times.

The third facility in the mirror program is ALICE [3, 4, 5] which utilizes the technique of energetic neutral atom injection to form a steady-state hot plasma. An overall view of ALICE is shown in Fig. 3.

The Mirror program is oriented toward elucidating the nature of the plasma instabilities which may occur in a mirror machine, and testing methods for suppressing them. One recognizes two general classes of

instabilities: (a) gross or "hydromagnetic" instabilities [6], and (b) wave-particle or local instabilities which may arise from inherent anisotropies of the confined plasma [7-9]. Examples of both of these classes of instabilities have been observed in the experiments. In recent years two promising methods of controlling gross instabilities have been suggested, and both are under active study at LRL. The two methods are, respectively, the "finite-orbit" stabilization effect [10] and the use of so-called "minimum-B" mirror confining fields [11, 12]. Of the two principles, the "minimum-B" idea is the more powerful and direct, but involves greater technical difficulty. One form of "minimum-B" field, which involved the use of 6 longitudinal stabilizing bars in addition to the usual circular mirror coils, was first tested by Ioffe in the USSR [13]. A similar 6-bar (hexapole) system has been tested in Table Top by Perkins and Barr [15], who also found strong stabilizing effects, even though the plasma had very different characteristics from that studied by Ioffe, possessing a substantial electrostatic potential, traceable to the high electron temperature (10 to 20 keV) of the plasma. In subsequent tests, quadrupole (4-bar) systems have been studied. Whereas stabilization of gross instabilities is also observed, residual instabilities occur under special conditions. Although these instabilities have not yet been identified, it is known that they mainly give rise to end losses, rather than transverse losses, and it is therefore presumed that they are some type of wave-particle instability.

When simple mirror fields are used, gross unstable motion of the plasma as a whole, corresponding to low order "hydromagnetic" fluting, has been observed in all three experiments [2, 15, 16], in general agreement with simple theory. However in both Table Top and Toy Top special conditions have been found where these instabilities are largely suppressed [13, 17, 18]. Present evidence is that this stabilization probably arises from a combination of finite-orbit effects (theoretically particularly effective against high-order modes) and "end conduction" along the lines of force between the confined plasma and the region external to the mirrors. There is evidence (from Toy Top) that this end conduction depends on the presence of background plasma produced in the course of the plasma

* Oak Ridge National Laboratory.
** Princeton Plasma Physics Laboratory.
*** Los Alamos Scientific Laboratory.
**** Lawrence Radiation Laboratory.
***** Supported by the US Atomic Energy Commission.

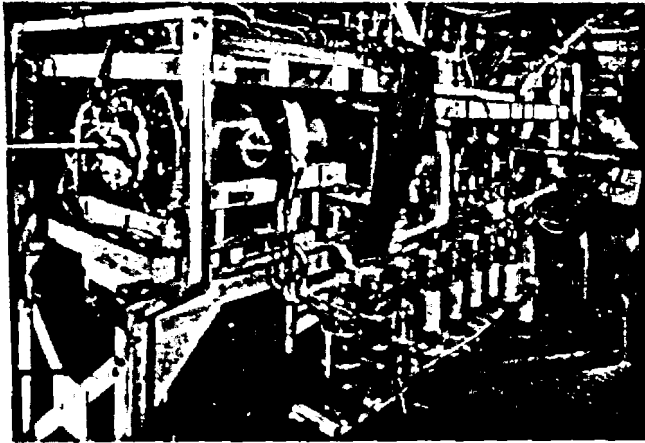


Figure 1. Overall view of the Table Top installation

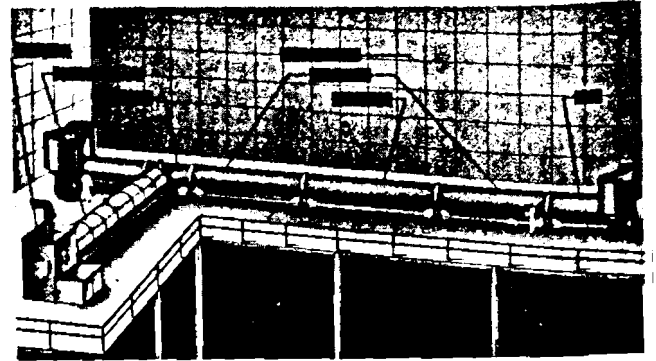


Figure 4. Conceptual design of the Astron facility

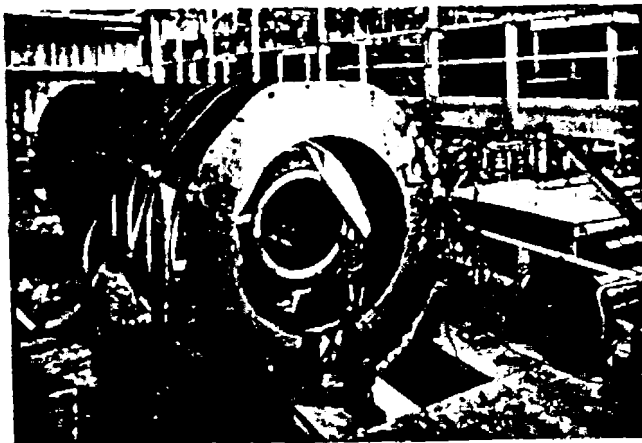


Figure 2. Overall view of the 2X installation

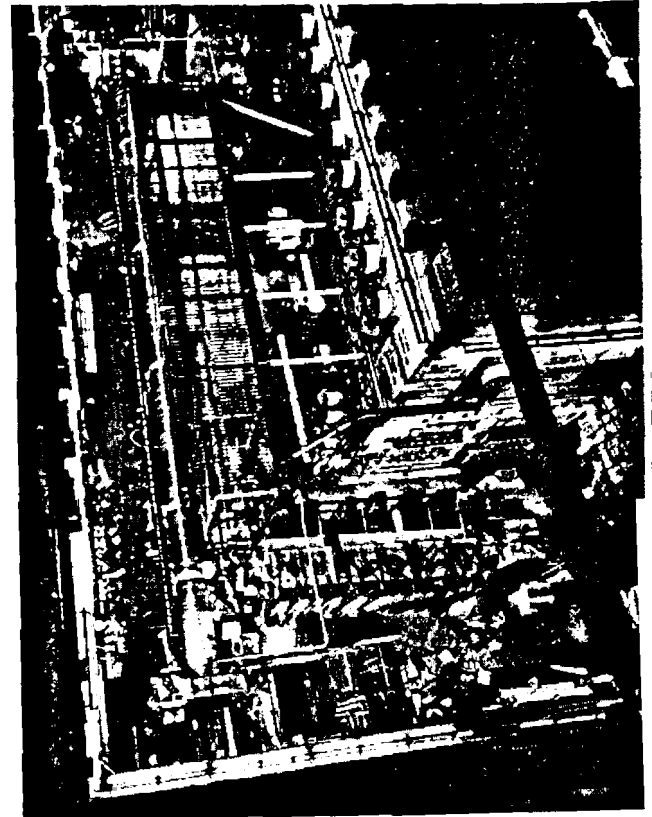


Figure 5. Overhead view of the Astron experimental facility



Figure 3. Overall view of the Alice experiment

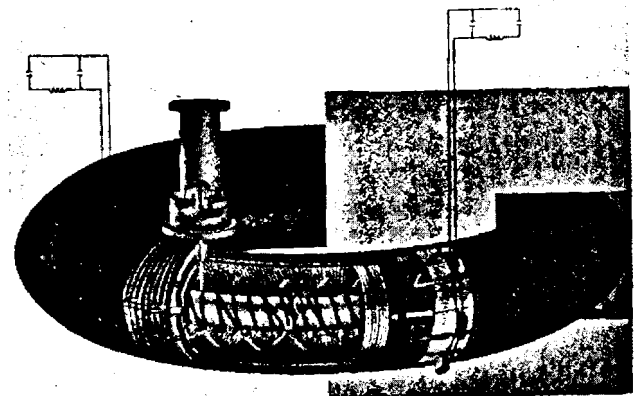


Figure 6. Schematic of the Levitron

injection and heating. Whether end conduction stabilization can be maintained as the plasma temperature and purity are increased is not clear.

In the ALICE experiment a very hot (20 keV) and very pure plasma has been produced, and long confinement times (of order 1 second) have been measured. The density thus far achieved is however low, being of order 10^8 particles/cm³, lying at the lower limit of densities where plasma effects are important. Co-operative oscillations and losses have been observed, and tentative identification of these oscillations with predictions from plasma theory have been made.

Minimum-B fields are also under study for ALICE, particularly the new axially symmetric minimum-B mirror fields discovered by Furth [19] and by Andreoletti [20].

Astron program

In the Astron [21], production and confinement of a hot plasma will be effected by high-energy electrons. The electrons are to be injected into a magnetic field in such a manner "that they will lose energy and be trapped in helical orbits forming a layer of rotating electrons", the "E-layer".

This E-layer is intended to perform two functions:

- (a) The combination of the self-field of the rotating electrons with the field of the external coils is to convert the initially open-ended field pattern to one of closed lines of force by reversing the field at the axis; the resulting closed field configuration, assuming that the E-layer is stable, would be capable of confining an isotropic plasma;
- (b) The energetic electrons are to lose energy by coulomb collisions, thus heating the trapped plasma.

The crucial question is the stability of the E-layer. The facility which has been constructed was designed specifically to investigate this question and, if possible, to build up the E-layer to the point of field reversal. As shown in Fig. 4, this facility consists of a high-current, high-energy electron accelerator and a trapping chamber. The accelerator is a linear induction type of machine [22] with the following beam parameters:

Electron energy . . .	4.1 MeV
Beam current . . .	160 A
Pulse length . . .	0.25 μ s
Repetition rate . . .	5 to 60 pps

The trapping chamber is a cylindrical vacuum tank 3 feet in diameter and about 90 feet in length. External coils over the length of the chamber and internal coils mounted on cantilever supports from both ends of the chamber permit the establishment of a wide range of initial field configurations. Electrons are injected tangentially at a small pitch angle forming a short cylinder

of tightly bunched rotating electrons. The electron bunch moves from the relatively high-field region at the point of injection toward the low-field region near the middle of the chamber past an array of resistors, in which currents are to be induced. If this process proceeds as intended, the electrons will lose energy and be trapped in the central section of the chamber. A view of the present installation is shown in Fig. 5.

Present experiments with this equipment consist of studying the energy loss and trapping of single bunches of electrons. When this process is understood, the injection pulse rate will be increased and attempts made to build up the E-layer.

Toroidal confinement program

The Levitron experiment, shown in Fig. 6, is designed to determine the effectiveness of shear stabilization for toroidal plasma confinement. In this hard-core configuration, current flowing along a rigid center conductor permits a helical magnetic field that has extremely high shear throughout [23]. Unlike the conventional "stabilized pinch," the standard hard-core pinch is therefore predicted by the infinite-conductivity hydromagnetic theory to have a wide margin of stability.

In experiments with linear hard-core pinches, anomalous gross instabilities have, however, been found for sufficiently large plasma current [23]. This result has been explained successfully in terms of finite-conductivity hydromagnetic theory (tearing mode) [24, 25].

Gross finite-conductivity instabilities are ruled out in the Levitron due to the smallness of the plasma current relative to the hard-core current. A small-scale instability has, however, been found in the Levitron. Though the magnetic field perturbations involved are only of order 10^{-3} relative to the confining field of 5-10 kilogauss, the resultant puncturing of flux surfaces permits hot electrons to reach the wall, and limits the electron temperature to about 100 eV at densities of 10^{12} — 10^{13} cm⁻³.

The observed flutelike structure and the phase velocity ($\sim 10^6$ cm/s) of the instability are indicative of a number of theoretical modes, among them either of two small-scale finite resistivity modes [24]: one due to the directed plasma current (rippling mode) and one inherent in the principle of shear stabilization (resistive-finite pressure).

By heating the Levitron plasma with rf current (5 megacycles) instead of unidirectional plasma current along the magnetic field, a plasma of comparable density and temperature can be produced, and the previous small-scale instability disappears.

This experiment indicates that the unfavorable containment typically found in toroidal shear-stabilized configurations may be due to the directed

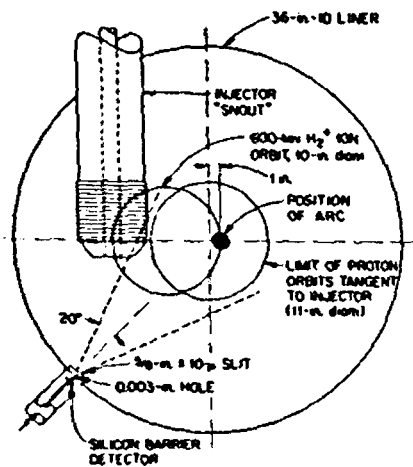


Figure 7. Cross section of DCX-2

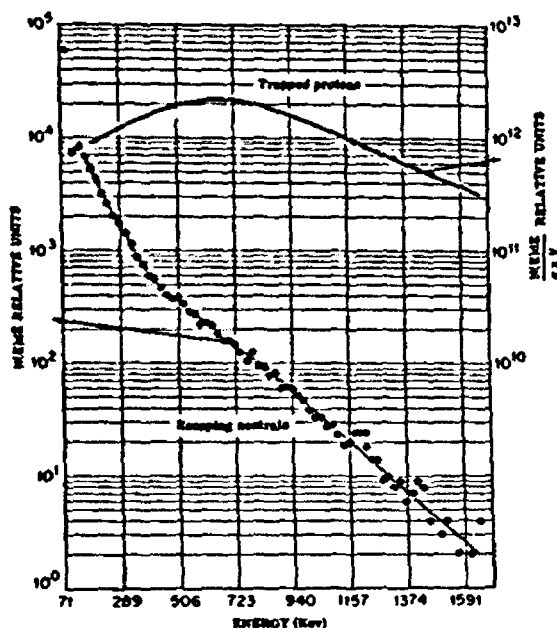


Figure 8. Energy distribution of particles in DCX-2

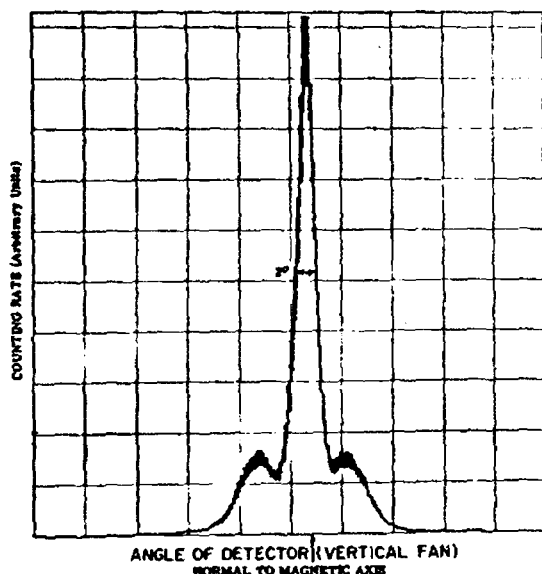


Figure 9. Directional distribution of fast neutrals emerging from the DCX-2

heating currents that are typically used, rather than due to an inherent weakness of shear stabilization. A Levitron designed specifically for rf heating of plasma confined in vacuum magnetic field is under construction, and will be used to test for residual instabilities.

As an alternative to shear stabilization, it has been shown [26] that a toroidal device composed of multipole-stabilized mirror machines, joined end-to-end, can be made stable by the $\int dl/B$ criterion.

PART II. RESEARCH AT THE OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY *

DCX-1

This molecular-ion injection, single pass experiment [27] has been extended to trapping by Lorentz dissociation of H_2^+ at about 3×10^{-9} mm Hg [28]. The most important observation is that the number of trapped particles reaches a limit of about 10^{13} , because the plasma expands radially and longitudinally until losses to the radial wall ensue. ** The central density saturates at about $10^8 H^+ cm^{-3}$.

Signals at the H^+ cyclotron frequency and its harmonics indicate that azimuthal clustering of the protons takes place. There are longitudinal currents at unrelated frequencies. Electron cyclotron heating (a few watts) at the midplane can suppress the longitudinal currents, but accentuates the azimuthal clustering. It reduces the plasma potential from 300-400 volts to 10-12 volts.

The volume expansion appears to be due to internal electrostatic effects (microinstabilities) rather than flutes (hydromagnetic instabilities).

DCX-2

We describe recent results in which 40 mA of H_2^+ are injected at 600 keV through a magnetically-compensated channel into a horizontal magnetic field of 12 kG that is uniform for a length of about 130 cm, bounded at the ends by mirror coils, producing a field of 36 kG [29]. The channel is inclined 7.5° to the vertical, and 40-50% of the H_2^+ ions are dissociated as they make multiple passes through a 25-ampere vacuum Li arc. A cross section of the apparatus appears in Fig. 7.

Silicon-barrier detectors are used to measure the directions and energy spectra of charge-exchanged neutrals that emerge from the plasma (operating pressure about 10^{-7} torr). Dissociation neutrals can be

* Supported by the US Atomic Energy Commission.

** The experimental possibility still exists that some of the apparent "loss" is due to energy degradation below 150 keV, where the transmission of the foils of the detectors used to measure the efflux of charge-exchanged neutrals is reduced.

geometrically excluded, and charge exchange in the lithium arc can be separately observed. As shown in Fig. 8 a wide spread in the energy of the trapped protons is observed; a notable feature is that because of depletion of the low-energy end by charge exchange, the proton energy distribution shows a mean value of several times the trapping energy. The lower curve in this figure is the measured spectrum of charge-exchanged neutral atoms from DCX-2 as measured with a silicon-barrier detector and a multichannel pulse height analyser.

The upper curve shows the derived energy distribution of the trapped protons. For these results, collimation was narrow ($\pm 0.2^\circ$) vertically and wide ($\pm 20^\circ$) horizontally, and the results are a composite obtained from a sweep over the plasma.

The density of the trapped protons is sensitive to small changes in the currents in the magnet coils. When these are empirically adjusted for maximum density in the midplane, the directional distribution of emerging neutrals is as shown in Fig. 9. Here the collimation was narrow ($\pm 0.2^\circ$) horizontally but wide ($\pm 20^\circ$) vertically. The collimator was swung horizontally through the abscissa angles. The central peak is caused by particles that leave the plasma in a plane normal to the axis of DCX-2. The side peaks are caused by particles that have preserved their original injection slant as they leave and re-approach the injection end of the confinement volume.

The foregoing observations indicate that plasma effects induce an energy spread of the protons that appears in azimuthal motion; there is little longitudinal motion.

Directional and energy integrations of the efflux of neutral particles yield 10^{15} as the total number of trapped protons. The volume is 80 litres, whence the mean density is about $10^{10} \text{ H}^+ \text{ cm}^{-3}$.

Charge-exchange loss accounts for the ion input, within an uncertainty factor of about 2. The decay curve after beam turnoff is complex, because the rate of charge exchange is affected by energy spread and degradation, and perhaps by a simultaneous reduction of background gas pressure by plasma pumping. The curve shows a sharp drop during the first 30 msec, followed by a long tail with $1/e$ decay period of 0.1 to 0.3 s. Integration of the charge-exchange current after beam turnoff yields a mean density of $2 \times 10^{10} \text{ H}^+ \text{ cm}^{-3}$, which is an underestimate because particles emerging from the lithium arc would not have reached this detector.

The proton cyclotron radio-frequency line is broad during injection, but after beam turnoff it suddenly sharpens, and slowly increases in frequency by about 50 kc. Interpreting this as a diamagnetic shift, one obtains $\beta = 0.005$, which is consistent with densities of about 10^{10} cm^{-3} energies corresponding to Fig. 8. The plasma shows no slow rotation.

Electron cyclotron heating

Electron cyclotron heating experiments, started at 2.4 gigacycles and 850 gauss [30] have been continued at 10.6 gigacycles and 3790 gauss in a 5-litre volume, and later at 10.6 gigacycles in a 50-litre volume with 50 kW of microwave power. A stable, steady-state operating regime is found when the ambient pressure is 10^{-5} torr (D_2). Neutron generation from the (e,D) reaction has been observed [31], and the attenuation of entering thermal H_2^0 has been measured [32]. Bremsstrahlung spectra from the large-volume plasma indicate an electron density of $5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, and an electron temperature of 120 keV, whence $\beta = 0.4$ for the part of the plasma in the 2000-gauss region of the mirror field. This is corroborated at $\beta = 0.3$ by a measure of the flux change through a surrounding loop as the plasma decays (period: 0.1 s) following cessation of heating. * X-ray pinhole photographs show the plasma to be "solid." Experiments are continuing toward higher frequencies and higher fields, and toward ion heating by cyclotron resonance or by fast neutral injection.

Electron beam-plasma interaction

Burnout and perhaps simultaneous ion heating have been obtained in electron-beam interaction with plasma.

PART III. RESEARCH AT THE LOS ALAMOS SCIENTIFIC LABORATORY **

We select for presentation from the above program the Mach-Zehnder interferometer observation on the relatively dense thermonuclear plasmas developed in the Scylla IV θ -pinch [33]. This device differs from earlier Scyllas mainly in having a longer (1 m) coil, used with and without mirrors, and an effective initial magnetic biasing and preionizing system designed to minimize the collection of impurities from the aluminum oxide walls. This is achieved by a brief damped oscillatory axial field for ionization superimposed on a slowly rising bias field.

Previous extensive measurements on the Scylla plasmas have shown [33-42] that these θ -pinch plasmas have the following characteristic values: density, $6 \times 10^{16} \text{ ion/cm}^3$; electron temperature, 400-1200 eV according to impurity level; mean ion energies, 2-3.8 keV (corresponding to temperatures in Maxwellized distributions of 1.3 to 2.6 keV); and β close to unity. Neutron yields range from 5×10^6 per pulse (Scylla I) to 2×10^9 per pulse (Scylla IV) with mean neutron rates of 2 to $6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$. During the 2-3 μs neutron emitting lifetime of the fireball, an ion characteristically makes several hundred reflections

* β is defined as the ratio of plasma pressure to magnetic energy density.

** Supported by the US Atomic Energy Commission.

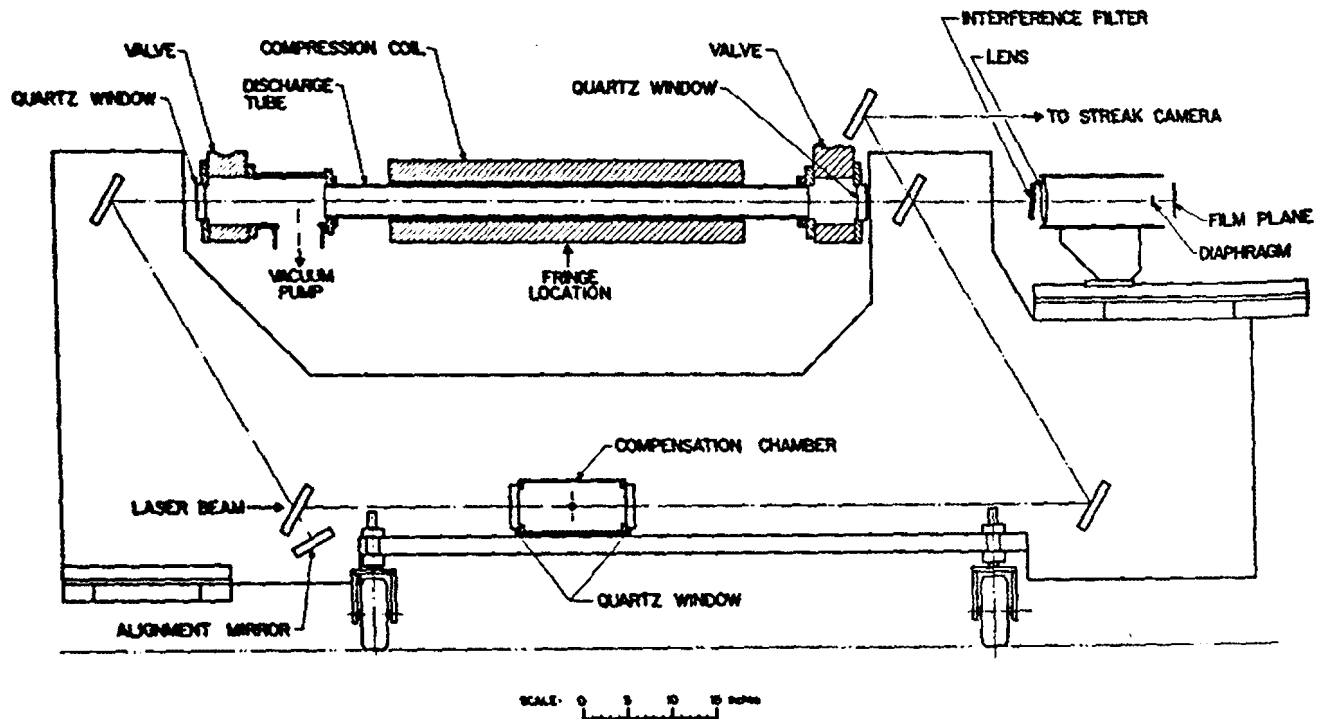


Figure 10. Diagram of the Mach-Zehnder interferometer

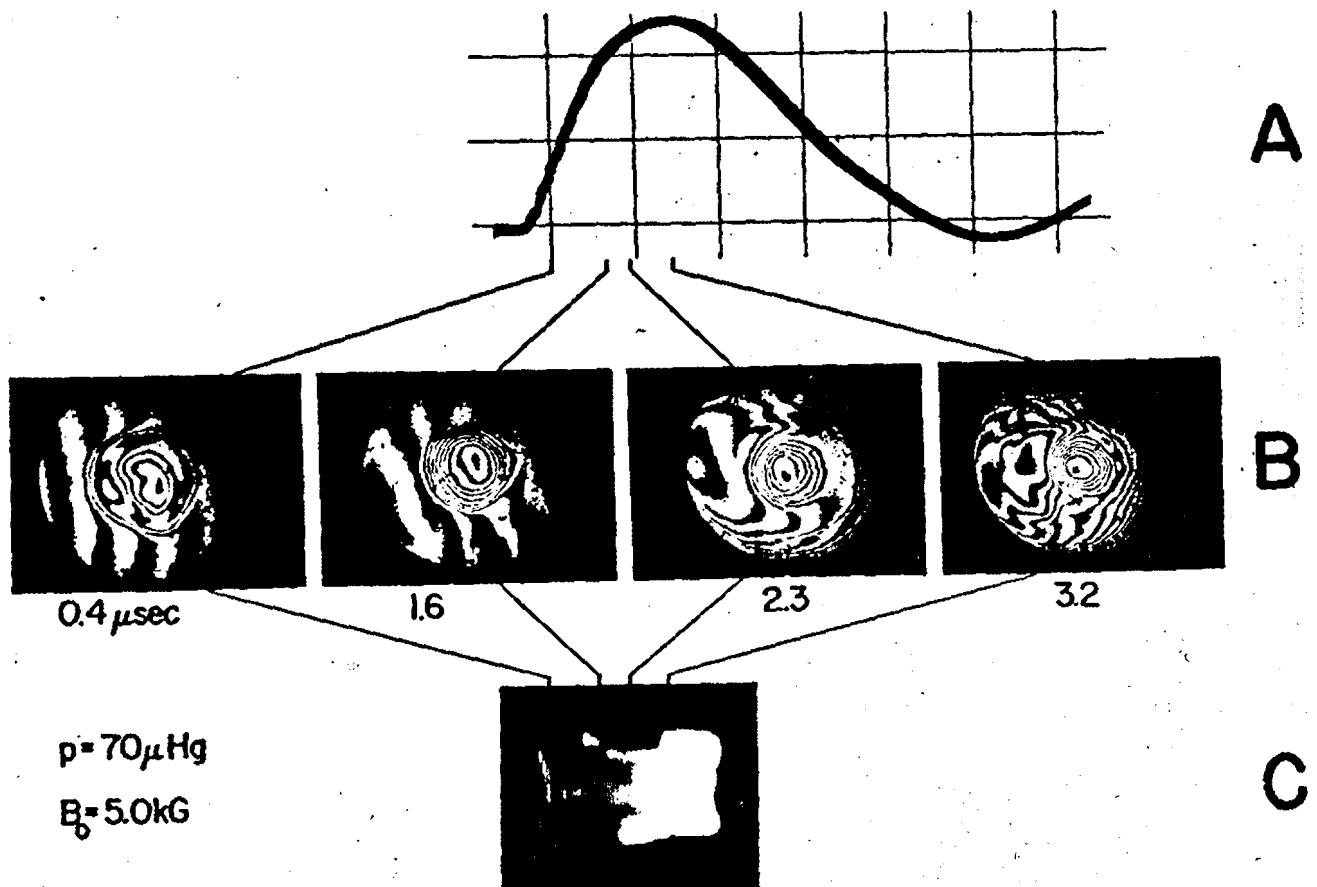


Figure 11. Time sequence of interferograms

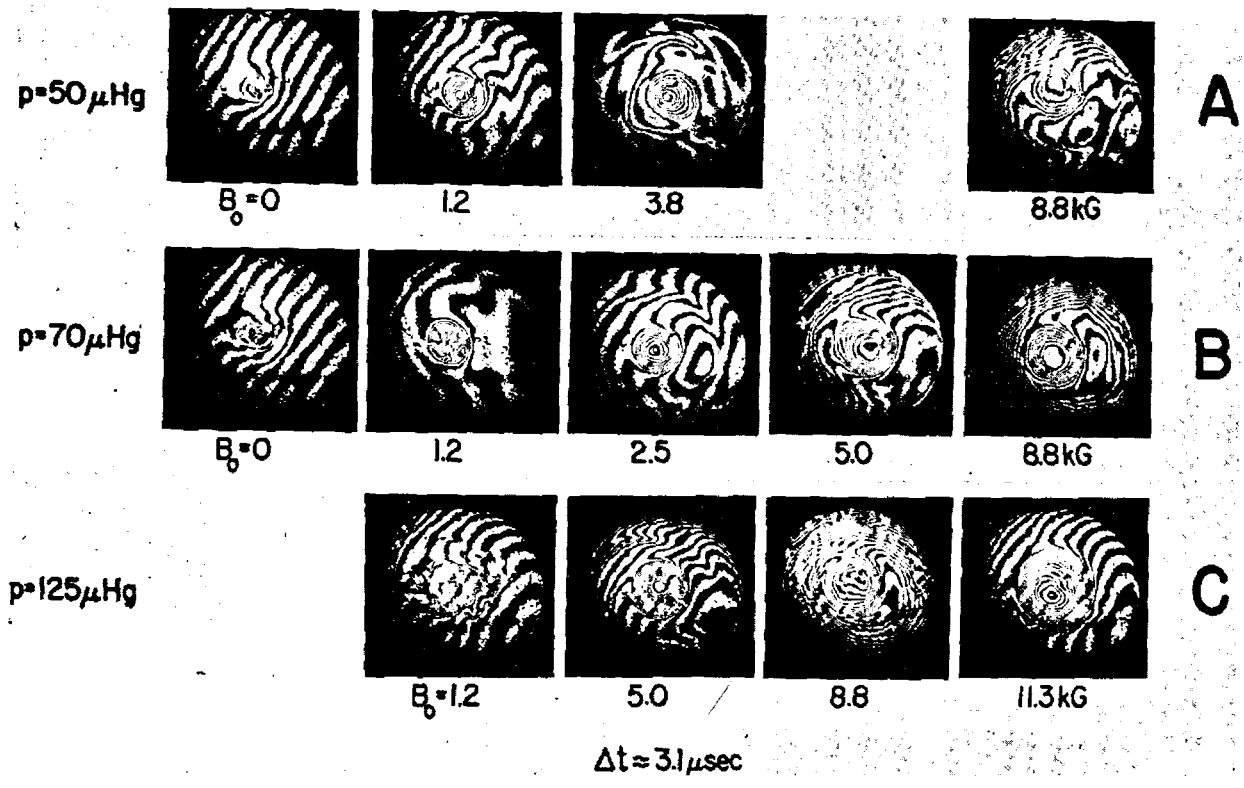


Figure 12. Interferograms obtained near peak compression

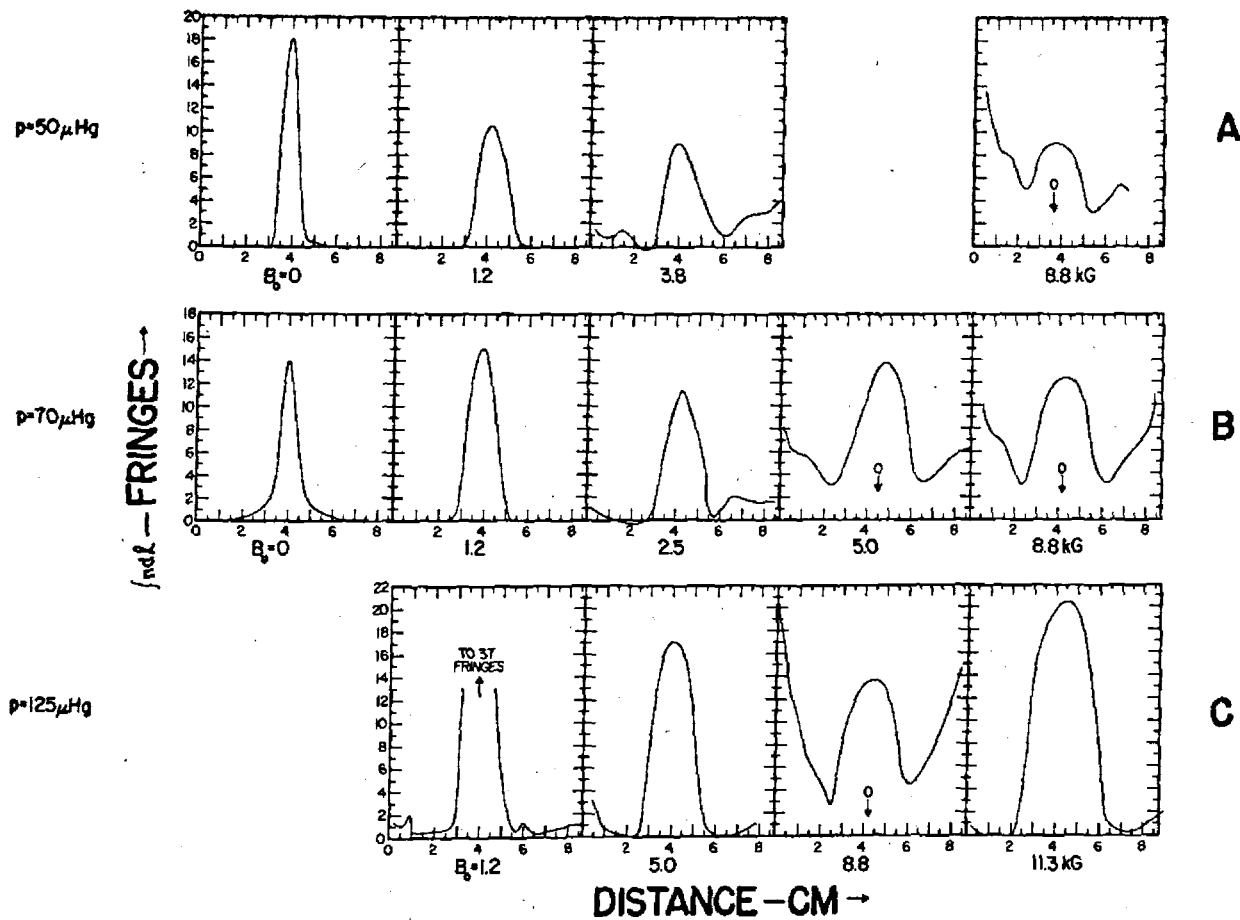


Figure 13. Measured fringe shifts from Figure 12

from the magnetic wall in the radial direction and an average of one to two ion-ion collisions. It can thus be classed as a confined, strongly-thermonuclear-reacting plasma but not necessarily Maxwellized. The particle losses from the ends must arise from deflection into the axial direction on reflection at the walls and ion-ion scattering.

Some other θ -pinch devices exhibit persistent trapped magnetic fields and hollow plasma rings at full compression. The Scylla IV plasma does not exhibit these properties, possibly because of the unusually high θ -electric fields and rapidity of compression (higher temperatures and less resistive instability). These Scylla plasmas do not emit hard X-rays during the high temperature phase. Until very recently, Scylla θ -pinches were invariably operated with a reversed initial magnetic bias field. This reversed field is considered to be a source of extra heating by the following process. An internal magnetic field reversed in sign with respect to an external magnetic field has potential energy in an unstable configuration. This snaps into a rapidly fluctuating tangled ball of string configuration, the initial potential energy being on the average divided equally between configurational and kinetic energy. The tangling rapidly increases to a point which becomes indistinguishable from random motion. The compression by the external field, after oscillations and shocks have damped out, proceeds to a state of pressure balance.

The Mach-Zehnder interferometer, shown in Fig. 10, uses a ruby laser in the giant pulse mode to exhibit the phase changes in a light beam traversing the plasma axially. Some resulting interferograms are shown in Fig. 11, identified with their appropriate points on the magnetic field cycle shown in curve A, and with the corresponding times on an axial streak photograph denoted by C. There is a vertical bar on the streak photograph produced by fogging from a laser pulse at $\sim 3 \mu\text{s}$. The initial reversed magnetic bias field was 5 kG and the initial deuterium filling pressure 70 μHg . In Fig. 12 are shown the effects of differing values of B_0 , the reversed bias field, and p , the initial pressure, all taken at maximum compression, 3.1 μs after the start of compression. Note the well defined flute instability in the lower left-hand picture, and in general the fringe shifts at the walls produced by incoming impurities. One fringe shift corresponds to 3.2×10^{17} electron cm^{-2} in the line of sight. Figure 13 plots the fringe shifts of Fig. 12 as a function of radius. Examination of the fringe pattern [43] confirms that these plasmas have no minimum fringe shift on the axis and cannot therefore be hollow ring-shaped.

At zero B_0 , the plasma is seen to become extremely dense. To determine the electron density, the plasma length must be measured. This was determined by neutron counter telescopes looking in the radial direction at points along the axis. The dense plasma fireball

for zero B_0 turns out to be cigar-shaped with a maximum length of 70 cm, a volume of 160 cm^3 , and with a peak electron density $6 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$, in excellent agreement with earlier determinations from the absolute bremsstrahlung intensity. Knowing the ion density, the external magnetic field (90 kG), and the electron temperature from differential absorption in the soft X-ray region, we can estimate the mean ion energy from the pressure balance equation, since we believe that the magnetic field in the plasma is zero.

Such a determination yielded a value of 3.7 keV/ion, corresponding to a temperature of 2.4 keV for a Maxwellized system. The observed peak neutron yield is in agreement with a monoenergetic distribution of this energy. This conclusion is interesting in that any other particle distribution having the same electron temperature and retaining pressure balance would produce a discordant and larger neutron yield including the case of a cold plasma with a high non-Maxwellian tail. For zero B_0 the neutron yield is small, $\sim 10^7$ per discharge, and quite consistent with a constant plasma pressure at the very high density shown by the interferometer.

It was found recently that keeping the bias field at zero, a new regime of operation was possible at as low as 10^{-3} torr. This mode of operation is like that reported for the rather similar GE θ -pinch [14]. The neutron yield/ cm^3 is considerably larger than at high pressure, so the ion temperature must be higher, apparently in the 5-10 keV region.

PART IV. RESEARCH AT THE PRINCETON PLASMA PHYSICS LABORATORY *

The Model C stellarator at Princeton University was built to give physical information on the confinement and heating of a plasma in a closed toroidal system, with a strong magnetic field produced by currents in external coils. Up until very recently this device has been used to examine the properties of a gas heated by means of an electric current parallel to the magnetic field, a technique known as "ohmic heating." While the maximum temperatures achievable with ohmic heating are only about a million degrees, this technique is an important means for preheating the plasma before ion heating is applied.

Much of the effort during the past year has gone into the purification of the plasma by means of a divertor, which was installed early in 1963. This device, which is shown in Fig. 14, takes the lines of force near the periphery of the vacuum tube and bends them out and away from the discharge, so that particles diffusing outwards strike the wall in a separate chamber, far from the discharge. Impurities released by wall bombardment do not readily return into the

* Supported by the US Atomic Energy Commission

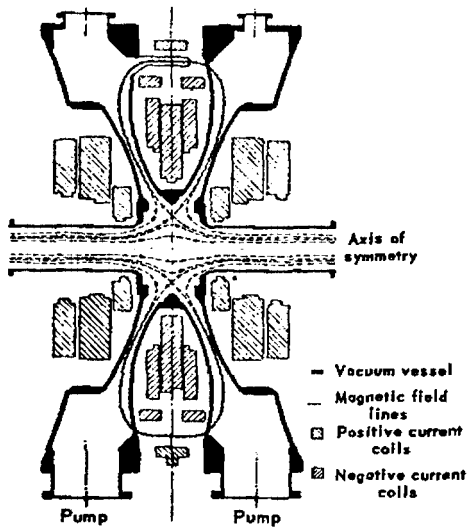


Figure 14. Cross section of the divertor

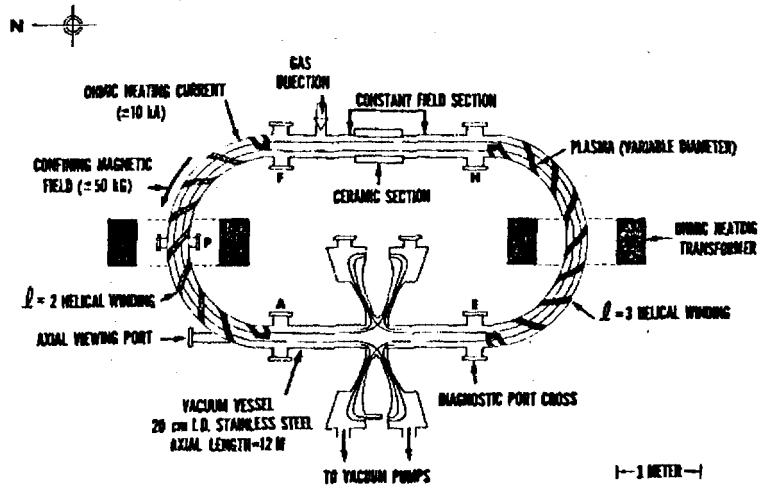


Figure 15. Simplified schematic of the Model C stellarator (as of November 1963)

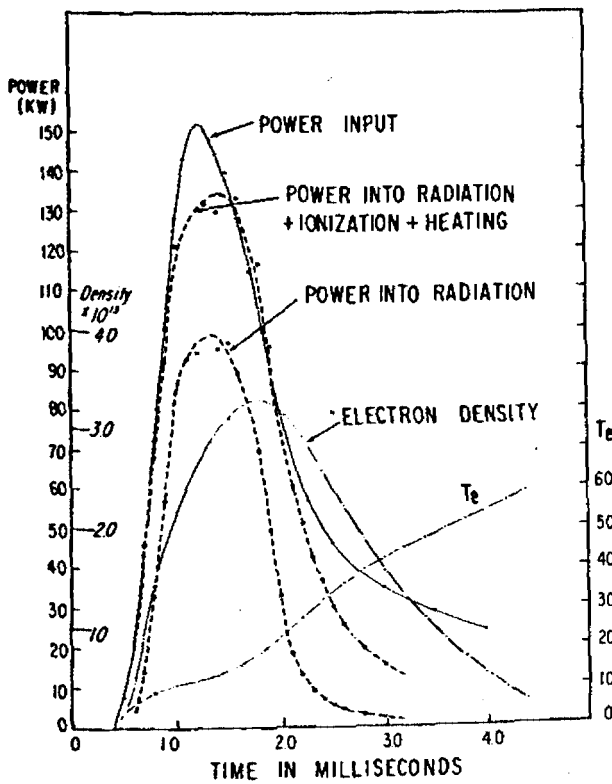


Figure 16. Power balance measurements in helium

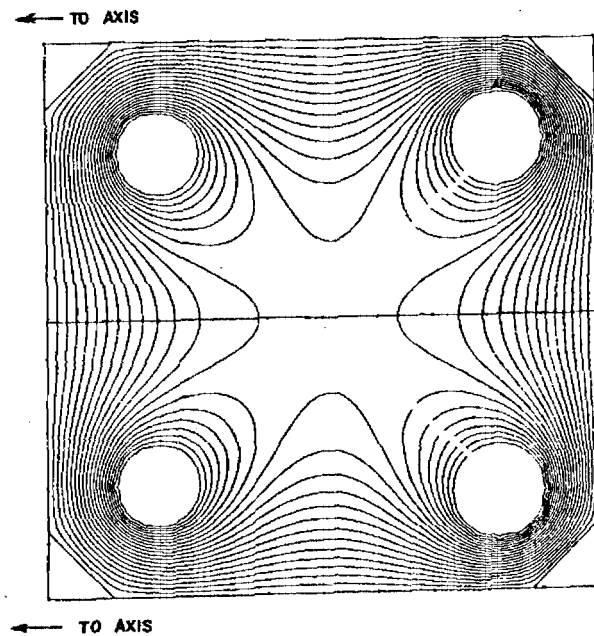


Figure 17. Cross section of toroidal octopole

main discharge. The dotted lines in the figure represent lines of force; it will be seen that the lines in an outer scrape-off region are diverted away from the main tube. Figure 15 shows the layout of the C stellarator with the divertor added. The diameter of the vacuum tube is 20 cm; the axial length is 12 m. The massive confining field coils which encircle the plasma are not shown.

A detailed program of measurements with a calibrated ultraviolet spectrometer shows that the divertor has successfully reduced the fraction of oxygen atoms, the main impurity in the discharge, by about two orders of magnitude. With a ring-shaped limiter installed instead of the divertor, the oxygen abundance was about 4%. With the divertor in place, the relative oxygen abundance is now 0.05%, a reduction by a factor 80. Radiation by impurities is now an entirely negligible source of energy dissipation in an ohmically heated gas in the C stellarator.

These same measurements yield values for the different rates at which power is consumed by the plasma, i.e., the power required for radiation of the working gas, for ionization, and for heating. The results for a helium plasma are shown in Fig. 16, where the different powers in kilowatts are plotted against time during the ohmic heating discharge in milliseconds. This particular discharge was obtained with a confining field of 35 kG and an ohmic heating current of 3000 A. The uppermost solid line represents the sum of all these powers, which agrees very closely with the dashed line representing the electrical power input, equal to the plasma current times the voltage. Evidently the main flow of energy in the plasma seems to be well understood.

One by-product of this investigation is the accurate measurement of plasma temperature. Six different methods have been used, based on electrical resistivity, on ratios of line intensities, on the rate of ionization, on emission line widths, on diamagnetic signals and on the sound velocity as measured from the frequency of standing waves. The temperatures obtained by these methods are generally in agreement to within 20% and confirm temperatures in the general range from 10 to 80 electron volts.

The systematic loss of plasma from the discharge, shown by the plot of electron density in Fig. 16, is still unexplained. Measurements at currents above 2 000 amperes indicate that the loss rate becomes more rapid as the current increases, in agreement with some theoretical expectations based on turbulent diffusion produced by the heating current. At low currents, on the other hand, the loss rate seems to reach a minimum value, independent of current, but varying roughly as $B^{1/2}/T^{3/4}$ where B is the magnetic field strength and T is the temperature. In this low-current regime the density profile is nearly flat, within the plasma column, with a steep gradient in the scrape-off layer

that goes into the divertor. The temperatures are relatively low in this regime, typically less than 10 volts, and the short mean free path may impede the attainment of equilibrium in the curving sections of the stellarator.

In addition to the steady loss of plasma, a variety of catastrophic effects appear under certain conditions. These violent phenomena appear explicable in terms of rather simple processes, such as hydromagnetic instabilities, two-stream instabilities, and limitations associated with sheath currents. Since these events can be avoided, they do not appear to be of great practical importance.

The pure plasma of Model C seems a favorable environment for ion heating, for which two separate techniques have long been planned. Equipment for ion cyclotron resonance heating is now installed. On a mirror device at Princeton, under less favorable conditions, such equipment has produced ion temperatures as great as 1 000 eV. Equipment for magnetic pumping, which heats the gas more gently, although less efficiently, should be ready for installation sometime in 1965. Recent theoretical computations indicate that the e-folding time for the temperature with this equipment should be about half a millisecond, as compared with an observed particle confinement time of 3 ms, and a plasma cooling time of 2 ms. These two heating techniques should make it possible to extend the Model C program to temperatures approaching the thermonuclear regime.

PART V. RESEARCH AT OTHER CENTERS

In addition to research at the four main centers, active programs in controlled fusion are under way at a wide variety of laboratories in the United States. In the present brief summary only a few of these programs, not necessarily the most significant, can be mentioned.

Studies of θ -pinches are under way at the Naval Research Laboratory, at General Electric and at Johns Hopkins University. The group at the Naval Research Laboratory uses relatively strong fields, between 50 and 100 kilogauss, rising in 15 μ s. Recent improvements in the vacuum system have reduced the impurity level to a fraction of a percent; the electron temperatures, determined from the observed bremsstrahlung spectrum, now range up to one kV at densities of typically 5×10^{16} per cm^3 . The former drift of the plasma has been eliminated by improved field homogeneity. Rotational instability is frequently present, but under some conditions, especially at initial pressures exceeding 0.05 torr, this disturbance is not apparent and confinement lasts as long as the confining field. Application of a quadrupole field seems in some cases to impair rather than improve the confinement.

The GE program is characterized by an initial pressure of about 0.01 torr, substantially lower than in similar devices elsewhere. Preionization with a large ohmic heating current is followed by pulsing an axial field of some 50 kilogauss in about 7 μ s. In contrast to work at higher pressures, a substantial neutron yield is found in the first half cycle, with no bias field. The observed ratio of D-D and D-³He reactions indicates that the energy of the deuterons which produce fusion is about 10 keV. The plasma appears to be grossly stable. At Johns Hopkins the rise time is very short, about 0.5 μ s, while the initial pressure is between 0.02 and 2 torr. Flute instabilities seem to develop when the magnetic field exceeds 20 kilogauss. Evidently further work is required to delineate the precise boundary between stability and instability in a θ -pinch.

At General Atomic * and at Wisconsin University ** research is under way on plasma injection into a toroidal geometry that is believed to be theoretically stable for hydromagnetic perturbations. This geometry is shown in Fig. 17, which depicts the cross section of the plasma confining region. The four rods, which are circles centered on the axis of symmetry of the toroid, carry substantial induced currents, all in the same direction, and are suspended from the wall. The magnetic field lines are those of an octopole and lie in the plane of the figure. The stability results from the general tendency of the magnetic field to increase outwards. Ionized gas is injected from a plasma gun. Research at G.A. has so far been on a linear device of this type; the plasma injected from a coaxial gun with ion energies of about a kV appears to penetrate the confining region across the magnetic field on the other side. Apparently the plasma reaches the ends of the device without touching the side wall. Measurements on a toroidal device at Wisconsin show that the injected 100 eV plasma seems to fill the entire device, with a density between 10^{10} and 10^{12} per cm^3 , during the several ms of field duration. Evidently injection appears to be successful; more detailed diagnostics are required to test plasma stability in this geometry.

An extensive program of theoretical research on plasma instabilities and related phenomena is also under way at General Atomic. Conditions have been found for the general instability of a confined plasma, the so-called "universal instability". The calculations indicate that this instability can in some cases be eliminated by the same methods that eliminate hydro-magnetic instabilities; that is, by favorable field curvature and shear. The stabilizing effects of finite Larmor radius and viscosity on resistive instabilities have also been analyzed.

A variety of small-scale experiments in basic plasma physics is being carried out in many university laboratories, as well as in the major controlled fusion centers. Beam-plasma interactions, for example, are being extensively studied at the Massachusetts Institute of Technology, Stanford University, and Johns Hopkins University. Interactions between microwave radiation and plasmas, including both emission and scattering, are being studied particularly at M.I.T. Caesium plasmas are being used not only for these studies but also for experiments on instabilities and plasma transport properties. While these studies are not all directly related to the controlled fusion effort, the basic information which they yield should facilitate the intelligent use of plasmas in applied fields of many types.

REFERENCES

1. Coengsen, F. H., *et al.*, Phys. Fluids, 2, 350 (1959).
2. Coengsen, F. H., *et al.*, Nucl. Fusion, 1962, Suppl., Pt. I, p. 125.
3. Post, R. F., Proc. of Fourth Internat. Conf. on Ionization Phenomena in Gases, Vol. II, 298 (N-Holland Publ. Co., Amsterdam, 1960).
4. Damm, C. C. *et al.*, Nucl. Fusion, 1, 280 (1961).
5. Futch, A. H., Jr., *et al.*, Phys. Fluids, 5, 1277 (1962).
6. Rosenbluth, M. N., and Longmire, C. L., Ann. Phys., 1, 120 (1957).
7. Rosenbluth, M. N., and Wilson, K., "Dispersion Relations for Infinite Plasmas" (1957), unpublished.
8. Vedenov, A. A., *et al.*, Usp. Fiz. Nauk, 73, 701 (1961).
9. Post, R. F., Nucl. Fusion, 1962, Suppl., Pt. I, p. 99 (Surveys lit. and discusses specific problem in mirror machine).
10. Rosenbluth, M. N., *et al.*, Nuclear Fusion, 1962, Suppl., Pt. I, p. 143.
11. Berkowitz, J., *et al.*, Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, P/1538, Vol. 31, p. 171, United Nations (1958).
12. Artsimovich, L. A., Nucl. Fusion, 1962, Suppl., Pt. I, p. 15.
13. Baiborodov, Yu T., *et al.*, At. Energ., 14, 443 (1963).
14. Perkins, W. A., and Barr, W. L., Bull. Am. Phys. Soc., 9, 328 (1964).
15. Perkins, W. A., and Post, R. F., Phys. Fluids, 6, 1537 (1963).
16. Damm, C. C., *et al.*, Phys. Rev. Letters, 10, 323 (1963).
17. Post, R. F., *et al.*, Phys. Rev. Letters, 4, 166 (1960).
18. Coengsen, F. H., *et al.*, Semiann. Rep. July-December, 1962, UCRL-10607, 1963, p. 5 (unpublished).
19. Furth, H. P., Phys. Rev. Letters, 11, 308 (1963).
20. Andreoletti, J., Compt. Rend., 257, 1235 (1963).
21. Christofilos, N. C., Nucl. Fusion, 1962, Suppl., Pt. I, p. 159.
22. Christofilos, N. C., *et al.*, Lawrence Rad. Lab. (Livermore) Rept. UCRL-7408, Aug. 1963 (unpublished).
23. Colgate, S. A., and Furth, H. P., Phys. Fluids, 3, 982 (1960).
24. Furth, H. P., *et al.*, Phys. Fluids, 6, 459 (1963).
25. Rebut, P. H., and Torossian, A., J. Nucl. Energy, Pt. C, 5, 133 (1963).
26. Furth, H. P., and Rosenbluth, M. N., "Closed Magnetic Vacuum Configurations with Periodic Multipole Stabilization", Phys. Fluids, in press.

* Supported in a joint program with the Texas Atomic Energy Research Foundation, composed of ten private electric utility companies in Texas.

** Supported by the US Atomic Energy Commission.

27. Dunlap, J. L., *et al.*, Nucl. Fusion, 1962, Suppl., Pt. I, p. 233.
 28. Postma, H., *et al.*, Nucl. Fusion, 3, 128 (1963).
 29. Bell, P. R., *et al.*, Nucl. Fusion, 1962, Suppl., Pt. I, p. 251.
 30. Becker, M. C., *et al.*, Nucl. Fusion, 1962, Suppl., Pt. I, p. 345.
 31. Dandl, R. A., *et al.*, Phys. Rev. Letters, 10, 87 (1963).
 32. Kerr, R. J., Nucl. Fusion, 3, 197 (1963).
 33. Jahoda, F. C., *et al.*, "Plasma Expts. with a 570-Kilojoule Theta-Pinch", J. Appl. Phys. (in press).
 34. Boyer, K., *et al.*, Phys. Rev., 119, 831 (1960).
 35. Little, E. M., *et al.*, Phys. Fluids, 4, 711 (1961).
 36. Nagle, D. E., *et al.*, Phys. Rev., 119, 857 (1960).
 37. Jahoda, F. C., *et al.*, Phys. Rev., 119, 843 (1960).
 38. Jahoda, F. C., *et al.*, Proc. of Fifth Internat. Conf. on Ionization Phenomena in Gases, II, 1987 (N-Holland Publ. Co., Amsterdam, 1962).
 39. Sawyer, G. A., *et al.*, Phys. Rev., 131, 1891 (1963).
 40. Quinn, K. B., Progress in Nucl. Energy, Vol. 2, p. 150, Series XI (Pergamon Press, London, 1963).
 41. Jahoda, F. C., and Sawyer, G. A., Phys. Fluids, 6, 1195 (1963).
 42. Jahoda, F. C., *et al.*, Los Alamos Sci. Lab. Rep. LA-3004, Dec. 1963.
 43. Jahoda, F. C., *et al.*, Phys. Rev., 131, 24 (1963).
 44. Goldman, L. M., *et al.*, Phys. Rev. Letters, 9 (1962).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АБХОТАЦІЯ—RESUMEN

A/195 États-Unis d'Amérique

Recherches sur la fusion contrôlée aux États-Unis

par A. H. Snell et al.

Les auteurs décrivent les principales expériences en cours ou projetées aux États-Unis pour étudier le confinement et le chauffage des plasmas.

Dans le cadre du programme comportant l'utilisation de miroirs magnétiques, on obtient des plasmas chauds:

a) Par injection de plasma suivie d'une compression magnétique (2X);

b) Par piégeage d'ions provenant d'un faisceau d'atomes neutres (ALICE);

c) Par piégeage d'ions atomiques au moyen de la dissociation de Lorentz de H_2^+ (DCX-1);

d) Par dissociation de H_2^+ dans un arc au lithium (DCX-2).

Le mémoire rend compte des résultats de la stabilisation par contrôle de la gamme et de la distribution spatiale des températures et des densités du plasma (stabilisation sur orbites finies) et par utilisation de champs complexes ayant une région fermée à « B minimal » semblable à celle de Ioffe.

Les auteurs étudient également d'autres configurations magnétiques qui utilisent des champs magnétiques à « B minimal ».

Ils présentent des résultats obtenus récemment dans le cadre de l'expérience de compression magnétique rapide (Scylla IV) et décrivent une manière possible d'aborder l'étape suivante.

Le dispositif Astron, composé d'un accélérateur d'électrons à forte intensité (160 A à 4,1 MeV) et d'une chambre de piégeage à champ magnétique axial, est achevé. Le mémoire rend compte des résultats d'expériences de piégeage des électrons sur des orbites qui se

déplacent suivant un mouvement rotatif et oscillant, de façon à former une couche cylindrique.

Les auteurs exposent des résultats récents obtenus avec un dispositif toroidal à champs magnétiques pulsés (Levitron) avec chauffage cyclotronique des ions visant à discriminer entre les modes d'instabilité; ils décrivent aussi des résultats théoriques pour une configuration toroidale stable $\int dI/B$, à structure multipôle périodique.

Le programme de recherches du stellarator modèle C, comportant un chauffage ohmique et divers types de chauffage ionique, est exposé. Il ressort de certaines observations que cette méthode permet de produire un plasma pur de 50 eV et que l'on peut presque atteindre un équilibre mécanique et thermique. Les auteurs discutent l'utilisation du dérivateur, ainsi que les résultats d'études sur l'énergie radiante mesurée, les énergies requises pour l'ionisation et le chauffage, et sur le bilan énergétique.

Le mémoire décrit des expériences sur des plasmas d'électrons chauds au cours desquelles un état stable a été maintenu, le rapport β — pression du plasma/pression du champ magnétique — étant égal à 0,3.

Il décrit également des recherches complémentaires sur le rendement de canons hydromagnétiques à grande vitesse et sur le comportement de l'arc au deutérium sous vide.

Les auteurs traitent, enfin, des programmes de recherches sur la fusion contrôlée qui sont en cours dans des laboratoires industriels, notamment à General Dynamics et à General Electric, et exposent les derniers résultats obtenus au Laboratoire de la recherche navale dans le domaine de la compression magnétique rapide. Ils donnent un aperçu des recherches sur les plasmas qui sont en cours à l'Institut de technologie du Massachusetts, à l'Université de Stanford, à l'Université de New York et à l'Université de Californie, à San Diego.

A/195 США

Исследования управляемых термоядерных реакций в США

A. X. Снелл et al.

В докладе описаны главные эксперименты, проводимые в США, по изучению удержания и нагревания плазмы, а также планы, намеченные в этой области на будущее.

При изучении геометрии с магнитными пробками горячая плазма создается одним из следующих способов:

- а) инжекция плазмы с последующим магнитным сжатием (2X);
- б) захват ионов из пучка нейтральных атомов («Алиса»);
- в) захват атомарных ионов методом Лоренца разложения H_2^{++} (DCX-1);
- д) диссоциация H_2^{++} литиевой дуге (DCX-2).

Описаны результаты стабилизации плазмы за счет регулирования размеров и пространственного распределения температуры и плотности плазмы (конечная стабилизация орбиты), а также применения комплексных полей, имеющих замкнутую область «Минимум В», похожую на область, описанную Иоффе.

Описаны и другие магнитные конфигурации, в которых используется конфигурация «Минимум В». Такими полями являются магнитные поля в форме собранного пучка или спирали.

В статье приведены недавно полученные экспериментальные результаты быстрого магнитного сжатия плазмы («Сцилла IV») и планы дальнейшего развития этой программы.

Окончено строительство установки «Астрон», состоящей из сильноточного электронного ускорителя (160 а при 4,1 Мэв) и ловушки с осевым магнитным полем. Обсуждаются экспериментальные результаты по улавливанию электронов во вращающихся и колебательных орбитах для образования цилиндрического слоя.

Описаны недавние результаты, полученные на тороидальной установке («Левитрон») с нульсирующими срезанными магнитными полями, в которой используется ионный циклотронный нагрев для дискриминации неустойчивых форм. Также описаны теоретические результаты по устойчивой тороидальной конфигурации $\int dl/B$ и с периодической мультипольной структурой.

Обсуждается исследовательская программа по стелларатору (модель «С») с омическим и другими типами ионного нагрева. Наблюдения показывают, что этим методом можно получить чистую плазму с энергией 50 эв и что условия, близкие к механическому и тепловому равновесию, могут быть достигнуты. Обсуждаются применение дивертора и результаты измерения выделяющейся энергии — энергии, необходимой для ионизации и нагрева, а также энергетический баланс.

Описаны эксперименты с горячей плазмой, в которой устойчивое состояние достигается при отношении давления плазмы к давлению магнитного поля $\beta = 0,3$.

Описаны также вспомогательные исследования характеристик высокоскоростных гидромагнитных пучков и режим работы дейтериевой вакуумной дуги.

Обсуждаются программы по управляемым термоядерным реакциям в промышленных лабораториях, включая лаборатории фирм «Дженерал дайнемикс» и «Дженерал электрик», а также последние результаты по быстрому магнитному сжатию плазмы, полученные в Научно-исследовательской лаборатории военно-морского флота. В докладе приведен краткий обзор исследований в области физики плазмы при Массачусетском технологическом институте, Станфордском и Нью-Йоркском университетах и Калифорнийском университете в Сан-Диего.

A/195 Estados Unidos de América

La investigación sobre fusión controlada en los Estados Unidos

por A. H. Snell et al.

Se describen los experimentos más importantes actualmente en marcha en los Estados Unidos para estudiar el confinamiento y calentamiento del plasma así como los planes para el futuro.

En el programa de espejos magnéticos se producen plasmas calientes por:

- а) Inyección de plasma seguida de una compresión magnética (2X);
- б) Captura de iones de un haz de átomos neutros (ALICE);
- в) Captura de iones atómicos por medio de una disociación de Lorentz del H_2^+ (DCX-1);
- д) Disociación del H_2^+ en un arco de litio (DXC-2).

Se comunican los resultados sobre la estabilización mediante el control de la escala y de la distribución espacial de temperaturas y densidades del plasma (estabilización de órbitas finitas) y mediante el empleo de campos complejos que tienen una región cerrada de «B mínimo» semejante a la de Ioffe.

Se discuten otras configuraciones magnéticas que emplean campos magnéticos de «B mínimo» tales como la cúspide biselada y el helixión.

Se presentan los resultados recientes del experimento de compresión magnética rápida (Scylla IV) y se describe un posible proyecto de realización de la etapa siguiente.

Se ha terminado la instalación Astron que consta de un acelerador de electrones para altas corrientes

(160 A a 4,1 MeV) y de una cámara de captura con un campo magnético axial. Se discuten los resultados de los experimentos de captura de electrones en órbitas rotatorias y oscilantes para formar una capa cilíndrica.

Se describen los últimos resultados acerca de un dispositivo toroidal con campos magnéticos cizallados pulsados (Levitron) que emplea el calentamiento de iones ciclotrón para discriminar los modos de inestabilidades. También se describen los resultados teóricos de una configuración toroidal estable de $\int dl/B$ con estructura multipolar periódica.

Se discute el programa de investigación del stellarator modelo C empleando calentamiento óhmico y varios tipos de calentamiento de iones. Las observaciones indican que por medio de esta técnica puede producirse un plasma puro de 50 eV y que puede obtenerse una buena aproximación al equilibrio mecánico y térmico. Se discuten el empleo de un desviador y los resultados sobre la energía radiada medida, energías

requeridas para la ionización y calentamiento y estudios del balance energético.

Se describen experimentos de plasmas calientes de electrones en los cuales se ha mantenido un estado estacionario con una relación β de la presión del plasma a la presión del campo magnético igual a 0,3.

También se describen investigaciones complementarias sobre el rendimiento de cañones hidromagnéticos de alta velocidad y sobre el comportamiento del arco de deuterio en el vacío.

Se discuten los programas en marcha sobre fusión controlada en laboratorios industriales, incluyendo los de la General Dynamics y los de la General Electric, así como los últimos resultados obtenidos en el Naval Research Laboratory sobre compresión magnética rápida. Se presenta un breve resumen de las investigaciones sobre plasma en el Massachusetts Institute of Technology, en la Universidad de Stanford, en la Universidad de Nueva York y en la Universidad de California en San Diego.

Исследования по проблеме управляемого ядерного синтеза и физике высокотемпературной плазмы в СССР

Л. А. Арцимович

Конечной целью исследований, связанных с проблемой управляемого ядерного синтеза, является разработка методов, позволяющих использовать дейтерий и тритий в качестве новых видов ядерного горючего для энергетических целей. Необходимым условием для того, чтобы в дейтерии или его смеси с тритием протекали интенсивные ядерные реакции, является чрезвычайно высокая температура вещества. Она должна быть порядка сотен миллионов градусов. В этом температурном диапазоне ядерное горючее будет представлять собой полностью ионизированную плазму. Кроме очень высокой температуры плазма должна иметь также достаточно большую концентрацию, так как выход ядерных реакций пропорционален квадрату концентрации.

Уже при самом зарождении идеи об управляемом ядерном синтезе было ясно, что главная задача, которую надо решить для достижения цели, заключается в том, чтобы обеспечить очень совершенную термоизоляцию ядерного горючего. Единственной средой, с которой может соприкоснуться горячая плазма, не отдавая мгновенно запасенную в ней тепловую энергию, является высокий вакуум. Однако для того, чтобы изолировать сгусток горячей плазмы в вакуумном пространстве, необходимо противопоставить давлению плазмы на ее границе некоторую уравнивающую силу. Такая сила может быть создана с помощью магнитного поля, если силовые линии этого поля окружают область, занятую плазмой. Магнитное поле выполняет роль эластичной оболочки, давление которой уравнивает газокинетическое давление плазмы.

Следует однако иметь в виду, что магнитная термоизоляция не является совершенно идеальной и даже в очень сильном магнитном поле будет происходить утечка энергии из плазмы. Мерой качества термоизоляции может служить время, в течение которого плазма, помещенная в магнитное поле, сохраняет высокий уровень температуры. Для того чтобы найти это характерное время τ , нужно разделить суммарную тепловую энергию всех частиц, находящихся в плазме, на величину потока

энергии, который переносится в единицу времени быстрыми частицами, ускользающими из плазмы. Параметр τ можно рассматривать также как среднее время жизни быстрой частицы в плазме. Очевидно, что термоядерный реактор с положительным выходом энергии может быть построен только после того, как будут найдены методы, позволяющие удерживать быстрые частицы в плазме в течение достаточно долгого времени. По существу вся довольно длинная история исследований по проблеме управляемого синтеза — это борьба за большое τ .

Исследования по проблеме управляемого ядерного синтеза ведутся в различных странах уже около полутора десятилетий. Впервые результаты исследований по термоядерному синтезу были продемонстрированы международной научной общественности во время Второй Женевской конференции по мирному использованию атомной энергии в 1958 г. Здесь был подведен итог первого этапа исследований, который приходится на те годы, когда работы в разных странах велись совершенно независимо друг от друга. Для этого периода характерным является резкое преобладание теоретических идей над экспериментальными работами. Состояние экспериментальных исследований в это время еще совершенно не соответствовало сложности поставленной задачи. В годы, последовавшие за конференцией, когда на опыте везде пришлось вплотную столкнуться с большими трудностями, постепенно распространилось понимание необходимости поднять экспериментальную технику на более высокий уровень. Появилось также сознание того, что серьезное обсуждение технического аспекта проблемы управляемого синтеза станет возможным только тогда, когда будут заложены экспериментальные основы физики высокотемпературной плазмы.

В этом докладе будет рассказано, как развивались за последние годы исследования по физике высокотемпературной плазмы в Советском Союзе. Эти исследования охватывают большое число разных направлений. Из них важнейшими являются:

1) исследование свойств плазмы в так называемых открытых магнитных ловушках, то есть в таких магнитных системах, внутри которых сгусток плазмы удерживается в области пространства с незамкнутыми силовыми линиями; 2) изучение нагрева плазмы протекающим по ней током в тороидальных системах с очень сильным стабилизирующим полем; 3) изучение поведения плазмы в высокочастотных электромагнитных полях большой напряженности (удержание и нагревание плазмы).

Остановимся прежде всего на исследовании свойств плазмы в магнитных ловушках с открытыми концами. Удержание плазмы в таких устройствах основано на одном законе движения заряженных частиц под действием магнитного поля. Частица, двигающаяся вдоль силовой линии в сторону возрастающего поля,

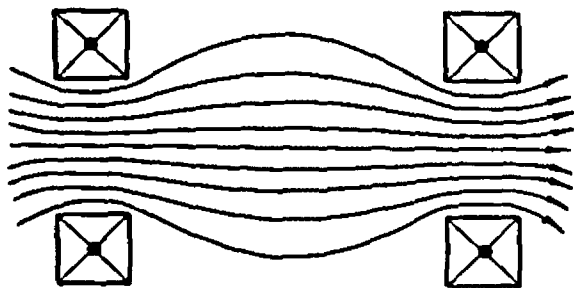


Рис. 1. Геометрия магнитного поля в магнитной ловушке с открытыми концами

испытывает торможение. Если направление ее скорости составляет достаточно большой угол с силовой линией, то, подходя к области с большой напряженностью поля, частица отразится обратно, как от зеркала. Поэтому если магнитное поле усиливается вдоль силовых линий в обе стороны от некоторой средней области, то появляется возможность запереть частицы плазмы в ограниченной части пространства между «магнитными пробками». Простейшей магнитной системой рассматриваемого класса является обычная ловушка с двумя магнитными пробками, схематически изображенная на рис. 1. Магнитное поле такой формы создается с помощью катушек, обтекаемых током в одном и том же направлении. Заметим, что в ловушке с двумя зеркалами напряженность поля H возрастает от центра вдоль силовых линий и вместе с тем убывает в радиальном направлении. Если переменить направление тока в одной из катушек, то получится магнитная ловушка со встречными полями, изображенная на рис. 2. Напряженность поля в такой ловушке возрастает во все стороны от центральной области. В некоторой точке внутри этой области величина H обращается в нуль. В последнее время большой интерес проявляется

к магнитным ловушкам с более сложной структурой поля (поля «гибридного типа»). Об этих магнитных системах мы будем говорить позднее.

Сначала внимание экспериментаторов было обращено на простейший тип ловушек с двумя магнитными пробками. В 1957 г. в Институте атомной энергии (ИАЭ) в Москве была введена в действие первая экспериментальная установка с магнитными пробками, в которой накопление плазмы с высокой температурой ионов осуществляется с помощью метода «ионного магнетрона». Он состоит в том, что из холодной плазменной струи, созданной на оси магнитной системы, ионы высасываются и ускоряются приложением короткого импульса высокого напряжения. После приложения напряжения плазменная струя как бы разбрыз-

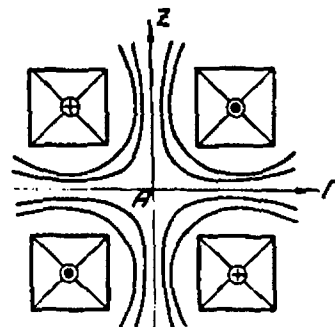


Рис. 2. Геометрия магнитного поля в ловушке со встречной геометрией полей

гивается, и объем между магнитными пробками оказывается заполненным высокотемпературной плазмой с концентрацией $10^9 - 10^{10} \text{ см}^{-3}$. Энергия, оставшаяся у ионов плазмы после снятия высокого напряжения, составляет 1,5—2 кэв, что соответствует температуре порядка $2 \cdot 10^7$ °К. Основной целью экспериментов, проводившихся в течение ряда лет на этой установке, получившей название «ионного магнетрона» (ИМ), являлось исследование свойств плазмы, захваченной в магнитном поле после импульса высокого напряжения. Прежде всего необходимо было определить длительность существования образовавшегося плазменного сгустка, то есть время жизни τ быстрых ионов в ловушке. Для того чтобы найти эту величину, нужно измерить, как изменяется во времени концентрация плазмы (то есть число быстрых ионов в 1 см^3). Рамки данного доклада не позволяют нам описывать методику этих измерений. Поэтому мы перейдем непосредственно к изложению экспериментальных результатов.

Обработка экспериментального материала, накопленного в течение трех лет работы на установке ИМ, позволила сформулировать следующий основной вывод: плазменный сгусток

с начальной концентрацией частиц от $\sim 10^8$ до $\sim 10^{10}$ и средней энергией ионов порядка 1,5 кэв неустойчив и распадается за время, не превышающее несколько сотен микросекунд. Признаки неустойчивости отчетливо выражены на осциллограммах измерительных устройств, используемых для измерения параметров плазмы. Осциллограммы иссечены интенсивными высокочастотными колебаниями.

Эти результаты впервые дали убедительное подтверждение предсказаниям теории о неустойчивости плазмы в полях такой геометрической формы, которая характерна для простых ловушек с магнитными пробками. Теоретический анализ показывает, что вследствие уменьшения напряженности магнитного поля по радиусу на поверхности плазменного сгустка могут развиваться и нарастать деформации, имеющие характер чередующихся язычков и впадин. Такая складчатая структура называется «желобковой» деформацией, а причина, вызывающая ее, конвективной неустойчивостью. В опытах на установке ИМ имеет место именно конвективная неустойчивость. Это следует, в частности, из анализа наблюдаемых колебаний плотности плазмы. В 1958 г., когда опыты на установке ИМ находились в самой начальной стадии, в ИАЭ была окончена постройка большой установки с магнитными пробками. Эта установка, получившая название «Огра», предназначена для исследования возможности образования высокотемпературной плазмы путем внешней инжекции быстрых ионов. Быстрые молекулярные ионы водорода, инжектируемые в ловушку, диссоциируют при столкновении с атомами остаточного газа или частицами созданной в объеме холодной плазмы. В результате диссоциации образуются протоны с радиусом кривизны траектории в магнитном поле, вдвое меньшим, чем у молекулярных ионов. Это необратимое изменение траектории приводит к тому, что атомарные ионы оказываются запертыми между двумя магнитными пробками. На первом этапе опытов; проводившихся на «Огре», изучался простейший метод накопления протонов с энергией 80 кэв путем диссоциации ионов H_2^+ на остаточном газе. Концентрация быстрых протонов, накопленных в камере, зависела от силы инжектируемого тока и ряда других факторов, но всегда была очень невелика. При включенном инжекторе она обычно составляла 10^7 см^{-3} (в объеме порядка 10 м^3).

После того как выяснилась неэффективность первоначального способа накопления плазмы, было решено испытать диссоциацию молекулярных ионов на плотной струе дугового разряда (этот метод был ранее применен на установке ИСХ в США). В Научно-исследовательском вакуумном институте была разработана методика получения интенсивного дугового разряда в парах лития. Длинный шнур дугового разряда, состоящий из полностью

ионизированной холодной плазмы с концентрацией $3 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$, проходит в вакууме вдоль силовых линий по всей длине магнитной ловушки. Этот ионизированный шнур служит эффективным диссоциатором для пронизывающего его пучка молекулярных ионов водорода. Опыты по накоплению быстрых протонов в «Огре» с использованием литиевой дуги были начаты в 1963 г. В согласии с первоначальными предположениями было установлено, что эффективность диссоциации является высокой. С помощью этого метода среднюю концентрацию протонов в «Огре» удалось довести до $\sim 5 \cdot 10^8 \text{ см}^{-3}$. При этом обнаружилось, что плотный шнур литиевой дуги, пронизывающий водородную плазму, выполняет роль стабилизатора плазменных неустойчивостей. Пока горит литиевая дуга, в плазме отсутствуют колебания, характерные для развития желобковых деформаций. Время жизни протонов повышается при этом до 10–15 мсек. Перспектива практического использования этого явления для стабилизации неустойчивости «термоядерной» плазмы представляется сомнительной, так как плотный шнур литиевой дуги, находящийся в горячей плазме, должен отсасывать на себя тепловую энергию быстрых частиц. Однако, с другой точки зрения, стабилизирующее влияние дугового шнура на окружающую его разреженную плазму с быстрыми ионами имеет определенную эвристическую ценность, как указание на то, что поиски новых методов для преодоления неустойчивости плазмы в простейших системах с магнитными пробками не являются безнадежными.

Отрицательные результаты опытов, в которых ставилась задача получения устойчивой высокотемпературной плазмы большой плотности в установках с магнитными пробками, привела уже в 1960 г. некоторых советских физиков к убеждению, что успех может быть достигнут скорее, если перейти к магнитным системам с иной геометрией поля, при которой устраняется главная опасность — неустойчивость конвективного типа. Простейшей магнитной системой, которая теоретически должна удовлетворять указанному условию, является изображенная на рис. 2 система со встречными полями, в которой силовые линии имеют гиперболическую форму. При такой геометрии поля величина напряженности H возрастает по всем направлениям от средней области. Поэтому согласно основным положениям теории следует ожидать, что плазма, запертая в области слабого поля между катушками, будет устойчива, по крайней мере по отношению к желобковым деформациям. К сожалению, теория предсказывает для систем со встречными полями другой существенный дефект. Плазма высокой плотности, запертая в такой ловушке, должна полностью вытеснить магнитное поле из области, окружающей ту точку пространства, где начальная величина H равна нулю. Однако

длительно сохранять плазму в районе нулевого поля нельзя, так как заряженные частицы будут уходить из этой области пространства после нескольких отражений от ее границ. Вследствие этого, по-видимому, трудно надеяться на то, что магнитные ловушки этого класса будут пригодны для длительного удержания плотной высокотемпературной плазмы.

В СССР уже довольно давно высказывалось мнение о том, что хорошая термозоляция высокотемпературной плазмы может быть обеспечена только в магнитных системах с полями гибридного характера, объединяющих свойства простых систем, изображенных на рис. 1 и 2, но при этом лишенных их основных недостатков. В таких магнитных системах напряженность поля должна возрастать от границ плаз-

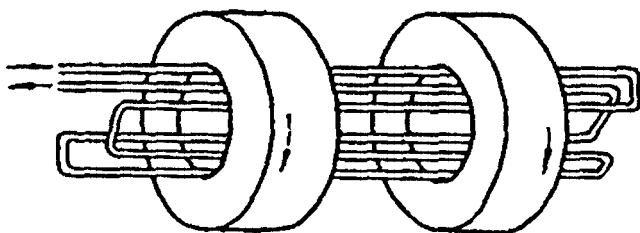


Рис. 3. Схема расположения токонесущих проводников в ловушке с гибридной конфигурацией

мы по всем направлениям наружу. Вместе с тем величина H не должна обращаться в нуль в области, занятой плазмой. Один из естественных способов реализации магнитной системы, удовлетворяющей указанным двум требованиям и поэтому *a priori* обеспечивающей устойчивость плазмы, схематически представлен на рис. 3. Магнитное поле создается с помощью катушек и прямолинейных токопроводов, симметрично расположенных вокруг общей оси катушек. Катушки создают обычное поле с двумя магнитными пробками на оси. По прямолинейным проводникам текут токи чередующегося направления. Они являются источником поля, структура которого изображена на рис. 4. Суперпозиция обоих магнитных полей приводит к тому, что величина результирующего вектора H возрастает во все стороны от центральной области, предназначенной для заполнения плазмой. Впервые опыты с такой гибридной магнитной структурой были поставлены в ИАЭ в 1961 г. Для этой цели была использована установка ИМ, в вакуумную камеру которой были смонтированы 6 продольных токопроводов. Уже в этих первых опытах при не очень совершенном вакууме было установлено, что при включении поля, создаваемого

прямолинейными проводниками, время жизни плазмы возрастает в несколько раз, а высокочастотные колебания на осциллограммах процесса исчезают. Для того чтобы продвинуться дальше, необходимо было значительно улучшить вакуумные условия. С этой целью в 1962 г. была построена новая установка ПР-5, в которой продольные токопроводы располагаются снаружи вакуумного объема (см. рис. 3). Эксперименты на установке ПР-5 были начаты в 1963 г. Первоначально для создания плазмы в этих экспериментах также использовалось магнетронное ускорение ионов. Таким путем можно было получить плазму с концентрацией $10^8 - 10^{10} \text{ см}^{-3}$ и средней энергией ионов около 4 кэв (температура ~ 40 млн. градусов). Основные результаты, полученные в описываемых

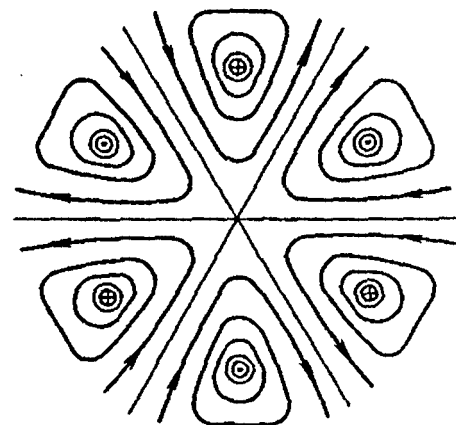


Рис. 4. Геометрия магнитного поля в гибридной ловушке

экспериментах, представлены на рис. 5 и 6. Первый рисунок показывает, как при хорошем вакууме в камере изменяется со временем концентрация плазмы, захваченной в магнитное поле. Для сравнения на том же рисунке приведена осциллограмма распада плазмы, когда выключен ток в прямолинейных проводниках и поле создается только основными катушками. Среднее время жизни в гибридном поле при вакууме порядка $1 \cdot 10^{-8}$ мм составляет ~ 50 мсек. Для обычной ловушки с пробками при той же величине напряженности поля это время не превышает 250 мсек. На рис. 6 можно видеть, как время удержания плазмы в гибридном поле зависит от остаточного давления нейтрального газа P_0 . Мы убеждаемся в том, что величина $\frac{1}{\tau}$ пропорциональна P_0 . Отсюда следует, что единственным процессом, уводящим быстрые ионы из ловушки, является перезарядка их на нейтральных атомах. Указанные данные свидетельствуют о том, что в рассматриваемых условиях плазма находится в состоянии устойчивого равновесия. Об этом говорит и форма осциллограмм, изображающих изменение параметров плазмы. На них полностью отсутствуют высокочастотные

колебания. Значение этих опытов состоит в том, что они впервые доказали возможность длительного устойчивого удержания горячей плазмы с быстрыми ионами в магнитном поле.

Естественно, что наибольший интерес представляет расширение полученной информации в сторону больших концентраций. Согласно теоретическим предсказаниям при высоких концентрациях может проявиться новый вид неустойчивости, связанный с раскачкой колебаний плазмы на частотах, близких к частоте обращения ионов в магнитном поле. Для того чтобы проверить, существует ли эта неустойчивость, нужно поднять уровень концентраций

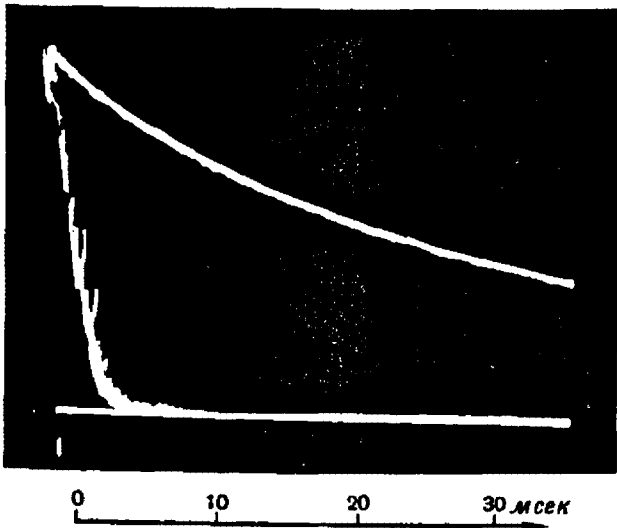


Рис. 5. Осциллограммы распада плазмы на установке ПР-5. Верхняя кривая — при включенном стабилизирующем поле, нижняя — без него

хотя бы на один порядок величины, то есть довести ее до 10^{10} — 10^{11} см⁻³. В настоящее время мы уже располагаем некоторыми результатами экспериментов, проведенных в указанном направлении на установке ПР-5. В новой серии измерений для заполнения ловушки плазмой применялся метод, отличный от того, о котором говорилось выше. В новом методе используется своеобразная электростатическая неустойчивость, которая может возникнуть в шнуре холодной плазмы. При некоторых параметрах разряда, который порождает этот шнур, проходящий по оси магнитной системы, в нем появляются электрические поля высокой частоты, ускоряющие ионы. Среднее значение энергии ионов порядка 1—2 кэВ. В опытах по накоплению высокотемпературной плазмы из неустойчивого плазменного шнура удалось довести среднюю концентрацию частиц до $\sim 3 \cdot 10^{10}$ см⁻³. Это примерно на порядок величины больше, чем та концентрация, которую обычно удавалось получать, применяя магнетронный метод накопления плазмы. Как показали экспе-

рименты, при указанной величине концентрации признаки неустойчивости по-прежнему отсутствуют, хотя следует отметить, что распад плазмы, регистрируемый по потоку нейтральных частиц перезарядки, перестает быть строго экспоненциальным во времени.

Для того чтобы шире использовать возможности, открывающиеся при переходе к гибридным полям, было решено построить еще одну установку с полем такого типа. В ней предполагалось производить накопление плазмы путем ионизации пучка быстрых атомов, инжектируемых извне. Эта установка, получившая название «Огра-II», по конфигурации магнит-

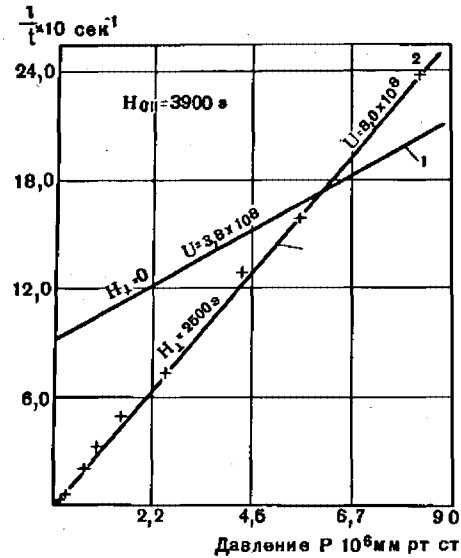


Рис. 6. Зависимость обратного времени жизни плазмы от величины давления нейтрального водорода:

1 — стабилизирующее поле выключено;
2 — стабилизирующее поле включено

ного поля повторяет ПР-5, но значительно превосходит ее по геометрическим размерам и по величине H_0 . Напряженность поля, создаваемого катушками в средней части ловушки, может быть доведена до 15 000 гс при напряженности поля в районе магнитных пробок 23 000 гс. Внутренний диаметр вакуумной камеры равен 70 см. «Огра-II» была закончена сооружением в мае 1964 г. Ее фотография дана на рис. 7.

Традиционным направлением в ИАЭ является исследование омического нагрева плазмы при квазистационарных разрядах в условиях, когда кольцевой плазменный шнур находится в сильном продольном магнитном поле. Напряженность продольного поля, стабилизирующего плазменный шнур, во много раз превышает напряженность поля, создаваемого током в плазме. В этом состоит принципиальное отличие описываемых исследований от опытов, выполняемых с помощью устройств, аналогичных известной установке «Зета». Эксперименты ведутся в течение ряда лет на уста-

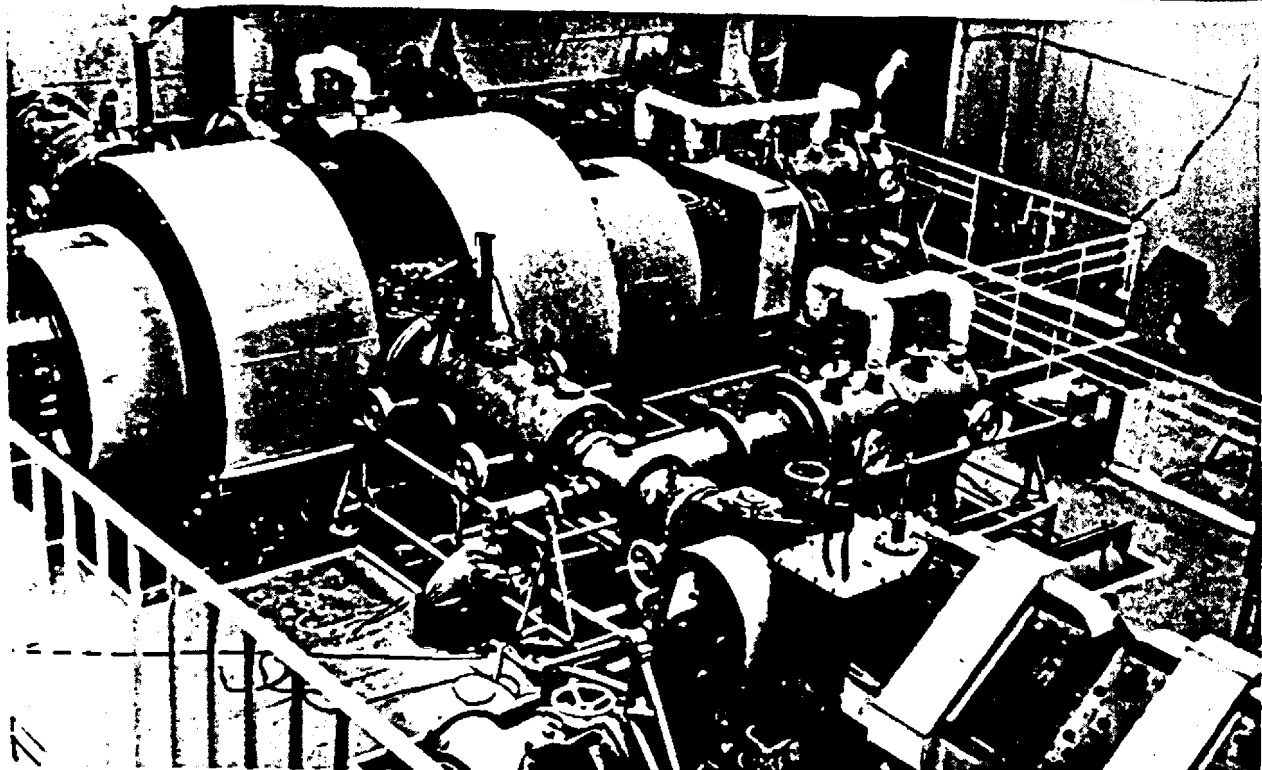


Рис. 7. Общий вид установки «Огра-II»

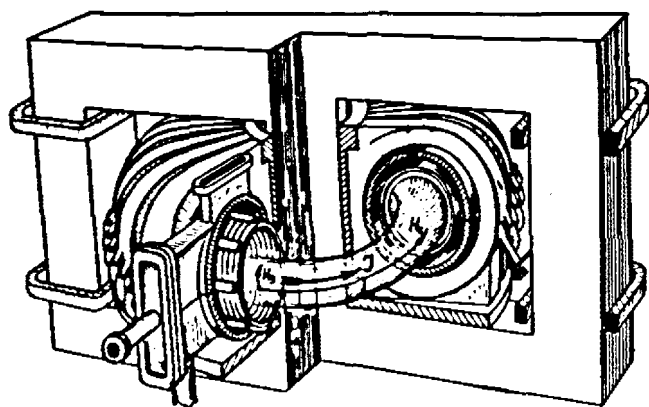


Рис. 8. Схема устройства „Токамак“

новках серии «Токамак» (рис. 8). Торондальная камера, внутри которой образуется плазменный шнур, надета на сердечник железного трансформатора. Напряжение, поддерживающее ток в плазме, создается индуктивным путем. Для обеспечения хороших вакуумных условий камера делается двухслойной. Внутренняя камера (лайнер) делается из тонкой нержавеющей стали. Для ослабления взаимодействия плазмы с поверхностью лайнера в него

вставляется диафрагма, ограничивающая сечение плазменного шнура. Лайнер изолирован от внешней оболочки, которая изготавливается из толстой меди и служит для того, чтобы с помощью токов Фуко удерживать кольцевой плазменный шнур с током в равновесии. К настоящему времени построена уже целая серия установок «Токамак».

Теоретический анализ поведения плазменного шнура показывает, что он может быть

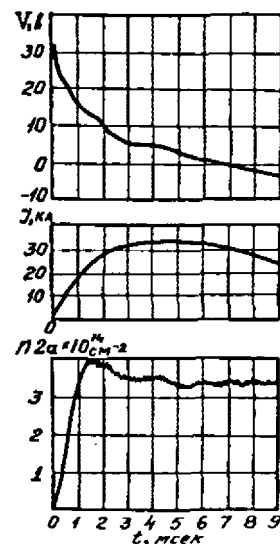


Рис. 9. Осциллограммы напряжения на обходе тора, тока в плазме и сигнала интерферометра (установка Т-3)

подвержен грубой неустойчивости, которая проявляется при неправильном соотношении между магнитным полем тока и продольным стабилизирующим полем. Для устойчивости плазмы необходимо, чтобы отношение напряженности продольного поля H_0 к полю плазменного тока по крайней мере в несколько раз превышало величину R/r , где R — радиус кольца, r — радиус поперечного сечения шнура.

На ранней стадии опытов с первыми моделями установок «Токамак» напряженность продольного поля не превышала несколько килоэрсед, поэтому для обеспечения устойчивости приходилось идти по пути сильного ограничения тока в плазме. Из-за этого ограничивалось количество энергии, выделяющейся в разряде, и плазму нельзя было нагреть до высокой температуры. Однако даже при больших значениях H_0 вначале не удавалось получить гладкие осциллограммы, и во время разряда наблюдалось быстрое спадание концентрации частиц. Это пытались приписывать действию неразгаданных механизмов неустойчивости, создающих очень быструю «аномальную» диффузию плазмы поперек силовых линий магнитного поля. Такая точка зрения господствовала до тех пор, пока не было обращено внимание на то, что явления, приписываемые «аномальной» диффузии, могут объясняться также движениями плазменного витка в камере из-за нарушения его равновесия. Небольшие перемещения витка резко отражаются на свойствах плазмы вследствие ее взаимодействия с диафрагмой. Плазменный виток может перемещаться внутри вакуумной камеры под действием различных причин. Даже относительно очень малая компонента внешнего магнитного поля, перпендикулярная к направлению тока в плазме, может сместить виток на заметное расстояние. Сильное влияние небольших смещений плазменного кольца на процесс разряда было подтверждено на опыте. Поэтому для того, чтобы скомпенсировать влияние факторов, изменяющих условия равновесия плазмы, была применена специальная корреляция магнитного поля. Это привело к значительному изменению картины процесса. На установке «Токамак-3» были получены режимы разряда, характеризующиеся большой длительностью и высокой проводимостью плазмы (рис. 9). Проводимость плазмы растет с величиной H_0 . Она достигает $3 \cdot 10^{16}$ CGSE при $H_0 = 25\,000$ гс и концентрации плазмы $n \approx 10^{13}$ см⁻³. Это значение соответствует электронной температуре плазмы $2 \cdot 10^6$ К.

Заметим, что таким образом удалось получить плазменный виток с проводимостью металла. При таких режимах разряда осциллограммы становятся гладкими и измерения не обнаруживают сильного уменьшения n за тот промежуток времени, пока ток в плазме сохраняет большую величину. Таким образом, можно прийти к выводу, что в кольцевых системах

с большими стабилизирующими полями осуществим нагрев плазмы с сохранением ее устойчивости.

Значительное место среди исследований по физике высокотемпературной плазмы в СССР занимают работы, посвященные изучению взаимодействия плазмы с высокочастотными полями. Они преследуют две главные цели: а) выяснение возможности удержания и стабилизации плазмы с помощью высокочастотных полей; б) создание методов быстрого нагрева плазмы. Разработка различных способов удержания и стабилизации плазмы с помощью высокочастотных полей ведется в ИАЭ и Радиотехническом институте в Москве, в Научно-исследовательском институте электрофизической аппаратуры в Ленинграде и в Физико-техническом институте в Сухуми. Экспериментальные исследования методов создания высокотемпературной плазмы, в которых основная функция удержания возлагается на высокочастотные поля, пока еще не дали положительных результатов. Дальше продвинулись исследования комбинированных систем, где равновесие изолированного плазменного образования осуществляется при помощи постоянных или относительно медленно меняющихся магнитных полей, а высокочастотные поля служат в качестве стабилизирующего фактора. В ИАЭ изучается метод высокочастотной стабилизации плазменного шнура с большим продольным током. Стабилизирующее устройство представляет собой систему стержней, расположенных симметрично вокруг разрядной камеры параллельно плазменному шнуру. По стержням текут токи чередующегося направления, создаваемые с помощью высокочастотного генератора. Благодаря этому возникают высокочастотные поля, которые при достаточной большой амплитуде и частоте могут обеспечить устойчивость плазменного шнура по отношению к наиболее опасным деформациям изгиба. Эксперименты подтверждают наличие стабилизирующего эффекта.

В Сухуми изучался метод динамической стабилизации плазмы, находящейся в ловушке с магнитными пробками. Система стабилизации в этом случае также состоит из стержней, которые расположены симметрично по отношению к оси магнитной ловушки. По ним пропускается высокочастотный ток таким образом, что создается вращающееся магнитное поле. Кроме того, по стержням текут постоянные токи чередующегося направления, вследствие чего появляется также постоянное поле с геометрией, аналогичной вращающемуся. Совместное воздействие переменного и постоянного поля стержней на плазму эквивалентно действию двух полей, вращающихся в противоположных направлениях. Как показывает эксперимент, в такой системе подавляется развитие желобковых деформаций, характерных для ловушек с магнитными пробками. Однако надо

отметить, что в выполненных до сих пор опытах плазма имела очень невысокую температуру. Поэтому трудно оценить перспективы применения указанного способа высокочастотной стабилизации (это относится также и к экспериментам, в которых изучается воздействие высокочастотного поля на плазменный шнур с током).

Исследуется также воздействие на плазму электромагнитных полей СВЧ-диапазона (дециметровые волны). В ИАЭ были поставлены опыты, в которых плазма, находящаяся в постоянном продольном магнитном поле, подвергалась действию СВЧ-поля, создающего дополнительное радиальное давление. По-видимому, в такой системе можно подавить (или сильно ослабить) конвективную неустойчивость плазмы.

Быстро развивается в СССР разработка высокочастотных методов нагревания плазмы. В этой области за последнее время были высказаны плодотворные теоретические идеи. Они успешно реализуются на опыте. Для нагревания плазмы можно использовать различные резонансные явления, при которых происходит ускорение заряженных частиц. Так, например, если на плазму, находящуюся в сильном постоянном магнитном поле, действует переменное электромагнитное поле относительно небольшой амплитуды, частота которого близка к угловой скорости вращения (ларморовской частоте) ионов, то может иметь место резонансное ускорение ионов. В этом заключается так называемый метод циклотронного резонанса, который можно использовать для нагревания ионной компоненты плазмы. Разработка указанного метода в течение ряда лет ведется в Харьковском физико-техническом институте. Достигнутые к настоящему времени результаты следует признать обнадеживающими. С помощью циклотронного резонанса, используя высокочастотные генераторы сравнительно небольшой мощности, удалось нагреть ионную компоненту плазмы, заключенной в ловушке с магнитными пробками, до температуры ~ 15 млн. градусов. При этом концентрация плазмы составляет $\sim 2 \cdot 10^{13}$ см⁻³.

Сравнительно недавно в СССР возникло новое направление в разработке методов нагревания плазмы. В общей форме оно исходит из идеи, что любое упорядоченное движение в плазме, имеющее достаточно большую интенсивность, неустойчиво и должно распадаться на мелкомасштабные колебания, которые быстро передают энергию тепловому движению. Теоретические исследования, выполненные в ИАЭ и Новосибирском институте ядерной физики, конкретизировали эту общую идею, в результате чего был предложен новый метод нагревания плазмы путем воздействия на нее импульсом высокочастотного поля с очень крутым фронтом. Если на сгусток холодной плазмы, находящейся внутри цилиндрической ка-

меры, в которой создано однородное постоянное (или медленно меняющееся) поле H_0 , действует короткий высокочастотный импульс с амплитудой $H_1 \sim H_0$, то возникает сильная ударная волна, распространяющаяся в плазме по радиальным направлениям к оси (направления обоих полей параллельны друг другу). Скачок напряженности магнитного поля в этой волне связан с возникновением азимутального электронного тока. При большой скорости нарастания переменного поля кинетическая энергия направленного азимутального движения электронов достигает большой величины. Такое движение неустойчиво, и поэтому его энергия должна превращаться в тепловую энергию электронной компоненты плазмы. Новый метод нагревания плазмы в импульсных высокочастотных полях получил название «турбулентного» нагрева. Экспериментальные исследования этого метода развиваются в ИАЭ и в Новосибирском институте ядерной физики. В опытах, которые ведутся в ИАЭ, переменное поле с частотой порядка 10 Мгц создается разрядом конденсаторной батареи с очень маленькой собственной индуктивностью на одновитковый контур, охватывающий камеру, предварительно заполняемую холодной плазмой. Напряженность постоянного поля H_0 составляет от 0,5 до 2—3 кэ. Длительность быстро затухающего импульса ВЧ-поля измеряется десятками долями микросекунды.

Измерения показывают, что импульс переменного поля резко повышает энергию электронов плазмы. При концентрации порядка 10^{12} см⁻³ средняя энергия электронов плазмы через несколько микросекунд после того, как переменное поле полностью затухает, достигает 1000—1500 эв. Если напряженность основного поля не остается постоянной, а возрастает, то после импульса происходит сжатие плазмы и дальнейшее повышение энергии электронов. Таким путем удается создавать плазму с температурой электронов порядка 10^8 градусов при концентрации $\sim 10^{13}$ см⁻³. В Новосибирске был разработан метод создания импульсных полей с еще большей скоростью нарастания и более высокой амплитудой. Это позволило осуществить турбулентный нагрев ионной компоненты плазмы. Достигнута энергия ионов ~ 10 кэв. Таким образом, судя по результатам первого этапа разработки, метод турбулентного нагрева является очень перспективным.

Кроме работ по описанным выше основным направлениям в Советском Союзе широким фронтом ведутся экспериментальные исследования по другим разделам физики высокотемпературной плазмы. В данном докладе невозможно описать задачи и результаты этих многочисленных исследований, и мы вынуждены ограничиться кратким перечислением тех вопросов, к которым они относятся. В Харьковском физико-техническом институте, ИАЭ и

Физическом институте АН СССР широко представлены работы по плазменным инжекторам, по взаимодействию плазменных струй с магнитными полями и по методам впуска плазмы в магнитные ловушки. В ЦАЭ, в Сухумском физико-техническом институте и Московском государственном университете продолжается изучение мощных импульсных разрядов очень малой длительности с целью выяснения причин, вызывающих возникновение быстрых частиц в плазме при таких процессах. В Ленинградском и Сухумском физико-технических институтах и в Новосибирском институте ядерной физики ведутся работы по изучению основных законов диффузии плазмы в магнитном поле. В Новосибирском отделении ядерной физики ведутся исследования релятивистской плазмы. Большое внимание уделяется также разработке различных экспериментальных методов для измерения основных параметров, характеризующих поведение плазмы.

В докладе до сих пор говорилось почти исключительно об экспериментальных исследованиях. Это, однако, не означает, что разработке теоретических вопросов физики плазмы в СССР не уделяется должного внимания. В действительности наша экспериментальная программа неразрывно связана с развитием теории. Основные направления экспериментов инициированы теоретическими исследованиями. Каждый значительный результат, полученный на опыте, сразу же становится предметом тщательного теоретического анализа.

Для физики высокотемпературной плазмы в целом большое принципиальное значение имеют теоретические работы, выполненные в нашей стране по проблеме устойчивости. В СССР был впервые исследован ряд механизмов, которые вызывают неустойчивость неоднородной плазмы. Поскольку плазма вблизи границы всегда является неустойчивой, то указанные исследования имеют прямое практическое значение. Важную роль в развитии физических представлений о свойствах плазмы сыграли

также теоретические исследования процессов в турбулентной плазме, то есть в плазме с уже развившейся неустойчивостью. Они позволяют оценить, с какой скоростью в неустойчивой плазме могут идти процессы диффузии и теплопередачи. К сожалению, здесь приходится ограничиться этими общими замечаниями, так как назначение и объем доклада не позволяют нам углубиться в теорию плазмы.

В заключение мы должны вновь вернуться к проблеме управляемого синтеза и попытаться в кратких словах сформулировать ее настоящее состояние и вероятное будущее.

Разработку этой проблемы можно сравнить с трудным подъемом по лестнице с очень высокими ступенями. Высоту каждой такой ступени можно измерить только поднявшись на нее. Ко времени Второй Женевской конференции мы обладали большим запасом идей, но фактически умели создавать плазму с температурой порядка миллионов градусов, существующую всего лишь в течение нескольких микросекунд.

Эта была первая ступень лестницы управляемого синтеза. Устойчивое длительное сохранение плазмы в гибридном магнитном поле, осуществление эффективного омического нагрева в стабилизированных кольцевых системах и успешная разработка нового метода «турбулентного» нагрева плазмы означают подъем на вторую ступень. Следующая (но еще не последняя) ступень будет достигнута тогда, когда удастся создать устойчивую высокотемпературную плазму с такой высокой плотностью, что она сможет служить мощным нейтронным источником, превосходящим по своей экономичности ускорительные устройства. В сущности только на этой стадии слова «управляемый термоядерный синтез» приобретут реальное значение.

Будем надеяться, что к открытию четвертой Женевской конференции подъем на третью ступень термоядерной лестницы будет завершен.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/297 USSR

Controlled thermonuclear fusion and high-temperature plasma physics research in the USSR

by L. A. Artsimovich

The paper deals with the following matters:

(a) The basic problems determining current trends of research:

(i) plasma containment methods guaranteeing its stability;

(ii) effective methods of heating plasma.

(b) Results of theoretical study of the problem of stability; stability in magnetic bottles of the open and closed types with constant fields. Theoretical analysis of radio-frequency field stabilizing effect.

(c) Experimental investigation of adiabatic magnetic bottles of the open type:

(i) analysis of a magnetic mirror system (ion magnetron, OGRA and others);

(ii) systems with hybrid fields ensuring a rise in magnetic field strength in all directions from the area occupied by the plasma (PR-5 and other devices). Relation of containment time to plasma density and temperature.

(d) Experimental investigation of closed magnetic systems:

(i) plasma heating in toroidal systems with a strong stabilizing longitudinal field (ТОКАМАК-type devices);

(ii) development of magnetic traps based on the stellarator principle.

(e) Studies on various new methods of heating plasma:

(i) experiments on turbulent heating by radio-frequency fields;

(ii) experiments on magneto-acoustic and cyclotron resonance.

(f) Research on plasma containment by radio-frequency fields (travelling wave systems, devices based on the concept of dynamic stabilization, etc.).

(g) Some new results of research on plasma heating during fast-pulsing processes with large power release.

(h) Methodological developments.

A/297 URSS

Recherches sur la fusion thermonucléaire contrôlée et sur la physique du plasma à haute température en Union soviétique

par L. A. Artsimovitch

Le mémoire traite des sujets suivants:

a) Principaux problèmes qui déterminent actuellement les tendances de la recherche:

i) Méthodes de confinement du plasma qui visent à assurer la stabilité de celui-ci;

ii) Méthodes efficaces d'échauffement du plasma.

b) Résultats de l'étude théorique du problème de la stabilité: stabilité dans les pièges magnétiques ouverts ou fermés à champs constants. Analyse théorique de l'action stabilisatrice des champs de haute fréquence.

c) Recherches expérimentales sur les pièges magnétiques adiabatiques ouverts:

i) Analyse du système à miroirs magnétiques (magnétron ionique, OGRA, etc.);

ii) Systèmes à champs hybrides assurant un accroissement de l'intensité du champ magnétique dans toutes les directions par rapport à la zone occupée par le plasma (PR-5 et autres). Relation entre le temps de confinement et la densité et la température du plasma.

d) Recherches expérimentales sur les systèmes magnétiques fermés:

i) Echauffement du plasma dans les systèmes toroïdaux à champ longitudinal intense exerçant un effet stabilisateur (dispositifs du type ТОКАМАК);

ii) Mise au point de pièges magnétiques fondés sur le principe du stellarator.

e) Etude de diverses méthodes nouvelles d'échauffement du plasma:

i) Expériences sur l'échauffement turbulent du plasma par des champs de haute fréquence;

ii) Expériences sur la résonance magnéto-acoustique cyclotronique.

f) Recherches sur le confinement du plasma à l'aide de champs de haute fréquence (systèmes à onde mobile, dispositifs fondés sur la notion de stabilisation dynamique, etc.).

g) Quelques résultats nouveaux sur l'échauffement du plasma dans les procédés à impulsions rapides produisant une grande quantité d'énergie.

h) Elaboration méthodique.

A/297 URSS

La fusión termonuclear controlada y las investigaciones de física del plasma de alta temperatura en la URSS

por L. A. Artsimovich

La memoria trata de las siguientes cuestiones:

a) Los problemas fundamentales que determinan las actuales tendencias de la investigación:

i) Métodos de confinamiento del plasma que garanticen su estabilidad;

ii) Métodos efectivos de calentamiento del plasma.

b) Resultados del estudio teórico de la estabilidad: estabilidad en las botellas magnéticas de tipo abierto y cerrado con campos constantes. Análisis teórico de la acción estabilizadora de los campos de alta frecuencia.

c) Estudio experimental de las botellas magnéticas adiabáticas de tipo abierto:

i) Análisis de un sistema con espejos magnéticos (magnétron iónico, OGRA, etc.);

ii) Sistemas con campos híbridos que aseguran el crecimiento de la intensidad del campo magnético en todas direcciones a partir de la región ocupada por el plasma (PR-5 y otros). Relación entre el tiempo de confinamiento del plasma y su densidad y temperatura.

d) Estudio experimental de los sistemas magnéticos cerrados:

i) Calentamiento del plasma en sistemas toroidales en presencia de un intenso campo longitudinal de estabilización (instalaciones de tipo TOKAMAK).

ii) Desarrollo de trampas magnéticas basadas en el principio del « stellarator ».

e) Estudio de varios métodos nuevos de calentamiento del plasma:

i) Experimentos sobre calentamiento turbulento del plasma mediante campos de alta frecuencia.

ii) Experimentos sobre resonancias magnetoacústicas y de ciclotrón.

f) Estudio del confinamiento del plasma mediante campos de alta frecuencia (sistemas con onda progresiva, instalaciones basadas en la idea de la estabilización dinámica, etc.).

g) Algunos nuevos resultados del estudio del calentamiento del plasma en presencia de procesos pulsados rápidos con gran desprendimiento de potencia.

h) Desarrollo de métodos.

Progress in controlled fusion and plasma physics in countries in the rest of the world— outside Europe, North America and the USSR

By C. N. Watson-Munro *

At the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy (Geneva, 1958), several countries in Europe, the United States of America and the Union of Soviet Socialist Republics disclosed the results of their initial large-scale attempts to open the doors to the desired regions of high temperature, contained, hydrogenous plasmas and the glistening vistas of controlled thermonuclear reactions. As we know now these doors have not opened smoothly; while it is true that in terms of the product of the three important parameters of containment time, ion temperature and particle density we have marched forward by several orders of magnitude, it is also true that we have uncovered more problems in elucidating the basic laws governing the behaviour of plasma than were obvious in 1958. It is in this field of assisting to understand these basic laws that "the rest of the world" has made its major contribution.

This policy was a deliberative one, perhaps typified by the Japanese reaction expressed in the Annual Review of the Nagoya Institute of Plasma Physics[1]:

"The members of the nuclear fusion research group, the parent body of the research workers headed by Prof. H. Yukawa of Kyoto University, had a series of heated discussions and concluded that the plan to build a fairly big machine of the more prospective type was somewhat premature and it was essential at this stage of development to conduct more basic and systematic research through co-operation of scientists from different localities and careers."

The same kind of situation has held in Australia, where the Atomic Energy Commission, through the Australian Institute of Nuclear Science and Engineering, has encouraged a collaborative programme of basic plasma physics research in several universities.

In attempting to summarize the activities of the rest of the world, I find it convenient to discuss the problems under the following general headings:

- (a) Basic plasma physics related to the CTR problem;

- (b) Diagnostic techniques;
(c) Containment and stability problems;
(d) Plasma heating.

It is of course appreciated that plasma research does not fall neatly into these sections and there is much overlap.

BASIC PLASMA PHYSICS RELATED TO THE CTR PROBLEM

Activities in this field may be treated under the following sections:

Plasma preparation

Any basic work in plasma physics demands a plasma source, which is preferably free from turbulences and from density and temperature gradients in space and time. Two kinds of sources merit special mention.

The first is the Q. P. machine [1] at the Institute of Plasma Physics, Nagoya University, Japan, which by its nickname expresses the experimenter's hope to have a "quiescent plasma". This source consists of five parts:

- (a) A P.I.G. source of ions of particle densities 10^{11} – 10^{13} cm⁻³, energy 1–10 eV;
(b) A magnetic channel (300 cm in length) where neutral particles are removed preferentially by radial pumping, ions being held by an axial magnetic field of 3 kilogauss, to achieve a high percentage of ionization;
(c) A heating section (200 cm in length) where the ions will be heated by magnetic compression or by ion cyclotron resonance;
(d) A plasma dressing section (150 cm in length) where measurements can be undertaken on the high temperature plasma stream, and
(e) A burial chamber which will prevent back-streaming.

The second kind of source is the SUPPER (Sydney University plasma physics experimental rigs) machines in Australia [2-6] which provide plasmas

* Professor of Plasma Physics, University of Sydney.

of density ranges 10^{13} – 10^{16} cm⁻³, temperatures about 1 eV. These plasmas are produced by the $J \times B$ hydromagnetic ionizing front process pioneered by Wilcox *et al.* [7]; production characteristics are discussed in [2-4]. It will be noted that these cylindrical sources have been produced in volumes of 10.5 cm radius and 170 cm in length in axial magnetic fields of 10 kilogauss and that their spatial temperature and density gradients are relatively small [5]. The plasma decays mainly by three body recombination; the exponential time constant of around 300 microseconds is sufficiently long for most plasma physics experiments.

Waves and oscillations

Japan and Australia have been active in both the experimental and theoretical study of waves in plasmas.

Alfven transverse hydromagnetic waves have been experimentally examined in helium and air at Tohoku University [8, 9] and in hydrogen at Sydney University. At Tohoku University the generation, propagation, reflection and ion cyclotron resonance studies have led to the construction of the AWRA2 machine (200 cm long and 15 cm diameter), designed to examine the resonance of large amplitude Alfven waves [9]. Kato and Taniuti [10] have theoretically examined the dispersion relations for the fast and slow magneto-acoustic waves as well as the Alfven wave in a collisionless plasma.

Ion cyclotron heating

Both the Nagoya Institute of Plasma Physics, who have constructed a 30 kW oscillator [11], and Sydney University, who have copied the 1 MW Berkeley oscillator [11], are interested in ion cyclotron heating experiments. The Sydney oscillator is at a fixed frequency of 9 Mc/s; the Nagoya oscillator has the advantage of being continuously variable over the frequency ranges 1.6–3 Mc/s, 2.5–4.8 Mc/s and 4.0–7 Mc/s.

May and Tendys [12] have examined theoretically the attenuation of an ion cyclotron wave in the neighbourhood of its resonance and defined the regions of Landau damping, collisional damping and the transition between the limiting cases.

Low frequency oscillations

Sumi [13] has examined theoretically the various modes of low frequency ion and acoustic waves produced in a cylindrical plasma and endeavoured to compare the experimental results with theoretical features. Several experiments [14-17] on oscillations in P.I.G. discharge tubes and ion oscillations generated by electron beams have been undertaken in Japan.

Plasma oscillations

Several Japanese workers [18-20] have studied theoretically electron plasma oscillations, with particular reference to stability. Tsuda [21] has developed a theory of the electric field in a turbulent plasma.

Whistler waves

Using a frequency of 35 000 Mc/s Sydney University have recently propagated Whistler waves in a helium plasma and found good agreement with the theoretical dispersion relations.

Cross sections and theory of Coulomb interactions

Butler and Buckingham [22] have theoretically examined the energy loss of a fast ion in a plasma and obtained close expressions for the behaviour of the mean energy as a function of time and of the diffusion spread around this mean.

Varsavsky [23] of Argentina has determined experimentally the excitation of resonant lines of O⁵⁺ by electron bombardment.

Kihara and Aono [24] have worked out an extensive study of Coulomb interactions and related relaxation phenomena in plasmas, with a skilful method of avoiding cut-off procedure, by combining the binary collision theory and the so-called wave theory.

Orbit theory

The Institute of Plasma Physics and the Physical Institute of Nagoya have examined the motion of charged particles in magnetic fields [25, 26] and experimentally the trapping of electrons injected into a magnetic bottle [27].

Anomalous cyclotron radiation

An enormously intense and sharp microwave emission at the electron cyclotron resonance in Xe, Kr and A plasmas has been observed by Tanaka *et al.* [28]. This phenomenon is supposed on the ground of good, if not conclusive, evidence to be an effect of the negative absorption at cyclotron resonance due to the Ramsauer effect in a partially ionized gas.

Radiation at cyclotron harmonics

Microwave emission at electron cyclotron harmonics in a positive column has been observed by Tanaka *et al.* [29, 30]. A theoretical interpretation is presented by Sugihara [31].

Radiation by plasma waves

The transformation of the plasma oscillation in a hot cathode discharge tube into an electromagnetic

wave has been observed by Kojima *et al.* [32]. Tera-shima and Yajima [33] have investigated theoretically this mechanism in the presence of density inhomogeneities. The phenomenon is also related to the high frequency conductivity around the plasma frequency, of which a calculation has been carried out by Aono [34].

Cerenkov radiation

The theory of Cerenkov radiation in plasmas has been investigated by several Japanese workers [35, 36]. A programme to study experimentally the Cerenkov radiation generated by electron beams is in progress at Tokyo University. The electron beams with energies of 2 MeV are to be prepared by the 10^4 Mc/s electron linac.

X ray radiation

Two Pakistan workers have studied the X rays emitted from metal surfaces under the impact of 200 keV hydrogen ions [37].

Runaway electrons and ions

A plasma betatron has been built at Tokyo University to study and utilize runaway electrons.

George [38] in India is interested in producing runaway ions by the limitation of electron current.

PLASMA DIAGNOSTICS

Measurements of plasma properties—particularly particle densities and temperatures—are important in CTR work and have received some attention by the rest of the world. New developments may be summarized in what follows.

Resonance probe

This work pioneered by the Japanese has stimulated considerable interest throughout the world. In this measurement [39-44] a low voltage rf signal is superimposed on a probe and swept in frequency; the dc component of the electron current due to the non-linearity of the sheath impedance is measured and from it can be calculated:

- (a) The electron temperature from the increase in current at frequencies below the plasma resonance;
- (b) The electron density from the sheath resonance frequency.

Microwave probe

Robinson of Sydney University has shown [45-47] that electron density profiles in a plasma can be obtained from the phase shift of a microwave beam reflected from a small modulated dipole, inserted in the plasma.

Microwave reflections

Microwave reflection techniques have been examined by Takeda and Tshukishima [48] and Robinson [49] and yield information on plasma densities and collision frequencies from the wave mode reflected at a critical plasma boundary.

Microwave transmission and interferometers

Japan [1], Israel [50] and Australia [51, 52] have developed microwave interferometry as a diagnostic tool.

High-speed spectrometry

Yoshimura and others [53] of Nihon University have constructed an ultra high-speed spectrometer for the measurement of spectral line profile, and applied to a theta-pinch plasma to get insight into the time change of ion temperature.

STABILITY AND CONTAINMENT PROBLEMS

Some experimental and theoretical work has been undertaken by the rest of the world into problems of stability, containment and associated effects such as diffusion and shapes of confining magnetic fields.

Stability theory

Sato [54] has produced a comprehensive review article of macroscopic instabilities in a plasma in a magnetic field with emphasis on the physical interpretation of instability mechanisms and of methods of stabilization.

India has been prominent in the field with theoretical contributions to the stability of inhomogeneous plasmas in magnetic fields [55], the stability of Alfvén gas insulated plasmas [56], sausage instabilities in hard-core liquid-pinch models [57] and stabilities of rotating plasmas [58].

Hamada [59] studies hydromagnetic equilibria in their proper co-ordinates, while Kalman [60] of Israel discusses magnetic collective modes in a plasma. May [61] examines the collisional damping of a two-stream instability.

Containment devices

Containment problems are receiving attention particularly in Japan, where a number of small to medium size machines has been built to study the problem. These are: Kyoto University's heliotron which utilizes a corrugated magnetic field produced by an alternate system of currents; a scalloped torus at the Tokyo-Shibaura Electric Co; a Trapstron at Tokyo University to study anomalous diffusion across a magnetic field; a reversed field machine at the National Electro-technical Laboratory, a tubular plasma with fields of opposite sense inside and outside, and "Chimera" at

Osaka University, where plasma from a linear pinch gun is injected into a cusp.

Blevin of the University of New England, has transferred to Australia experiments on plasma confinement using alternating magnetic fields and reported at Saizburg [62]. After an unsuccessful attempt to reduce the importance of end-effects in a linear discharge, he has now constructed a toroidal version of the rotating field apparatus of 7.5 cm minor diameter and a mean circumferential length of 120 cm.

Experiments on containment and stability

Helical instabilities of a linear discharge plasma produced by a large capacity electrolytic condenser bank have been observed by Enjoji and Okamoto at the Institute of Physical and Chemical Research, Tokyo [63]. The process of formation of helical plasma and its rotational velocity were observed by a streak camera. Shafranov's condition for a stable plasma was confirmed.

Correction to be made for the toroidal Joule heating windings has been studied by Mohri *et al.* in their Heliotron-B device [64]. Without the correction, the magnetic field of the windings was as great as 1.2 kilogauss on the tube axis, as a result of a finite curvature in the toroidal windings. An auxiliary correction current reduced the field to less than 10 gauss over the discharge region and the plasma confinement was effectively improved.

The deformation and drift to the wall of a compressed plasma column has been observed by Takeda *et al.* [65] in their slow theta-pinch device at Nihon University. It was found that the deformation and drift were due to a small inhomogeneity, of less than 2%, of the magnetic field at the centre of the mirrors.

A detailed investigation of the screw instabilities in a positive column in a strong field has been made by Sekiguchi in his Trapstron.

Diffusion

Experiments on charged particle diffusion in the after-glow of plasmas have been examined by Ichimaru *et al.* [66] who study the collisional diffusion in the after-glow of magnetic helium and neon plasmas. Somewhat similar experiments have been undertaken by Sharp of Sydney University in hydrogenous and helium plasmas.

Avivi *et al.* [67] of Israel have investigated the slow expansion of a plasma column without magnetic field.

HEATING EXPERIMENTS

A number of small-scale CTR plasma-heating experiments supported by theoretical work, are being undertaken by the rest of the world and are conveniently classified below.

Theta-pinch

Japan has theta-pinch experiments at Nihon University [68] and at the Electro-technical Laboratory [69]. The theta-pinch at Nihon University has low values of dB/dt and showed the interesting result of the absence of instabilities during the compression stage. The assumption of infinite conductivity in computing the dynamics of the contraction was found to be valid, and gave qualitative agreement with a snow-plough model. The half-period of the discharge was 31 microseconds, the maximum value of B was 8 kilogauss and the trapped field was 90 gauss after the third half cycle, 320 gauss after the fourth and 530 gauss after the fifth, for an initial pressure of 30 microns of air.

Experiments on the mirror-configuration slow theta-pinch are being continued with a 51 kJ source of energy. Particularly the following points were pursued: radial as well as axial motions of the plasma; stability of the plasma in its compressed state, and the relation between adiabatic heating and end leakage loss. The electron temperature and density so far obtained are 40-100 eV and 10^{15} - 10^{16} cm⁻³, respectively. The slow change of B and longer discharge half-period (100 μ s) make the observations and analysis much easier than the case of a fast pinch. Hard X rays with the maximum energy of 300 keV have been observed in the helium pressure range of 2-800 mtorr, an energy which cannot be accounted for by a single particle induction acceleration.

The University of Cape Town [70] has used magnetic probes to examine the electron temperature and the velocity of the imploding current sheath in a theta-pinch device of peak magnetic field 41 kilogauss, half-period 4.8 microseconds and tube diameter 5.3 cm.

El-Khalafawy, of the United Arab Republic, has a theta-pinch machine under construction.

MACETIE

A multi-stage adiabatic compression machine with equi-temperature irreversible expansion, called also by the Japanese nickname BSG, has just been undertaken at the Nagoya Institute of Plasma Physics after preliminary work in Nihon University [71]. It is based on the principle that when a plasma is transferred from a region of strong magnetic field into a weaker region, the temperature will not change much provided that the mass-motion can appropriately be thermalized. If this process of isothermal expansion is feasible, it is evident that repeated applications of adiabatic compression with intermediate irreversible expansion will result in the heating of the plasma without the use of too high a magnetic field. In the preliminary experiment, the plasma was created by a theta-pinch with B_{max} of 7500 gauss and ejected along the axia

direction into a weaker field of 1000 gauss or less. The plasma was intended to stop at the far end of the machine where a stronger field of 7 500 gauss prevails. The motion of the plasma, the electron density and temperature at the several points were observed.

High-energy injection

Japan has constructed at Osaka University an "HX" machine for injecting molecular ions into a magnetic field.

Abdel-Aziz, of the United Arab Republic, is constructing an experiment for the injection of a 50 mA, 250 kV beam of 250 kV ions into an arc discharge. A high current rf ion source [72] capable of 150 mA at 40 kV is also being considered.

The theoretical group at Sydney University has particularly concerned itself with the production of highly excited neutral atoms for injection purposes. It finds [72, 74] a giant resonance for hydrogen at an initial laboratory energy of 25 keV.

RF heating

The Watanabe Laboratory at Osaka City University have constructed a figure eight stellarator designed to use radio-frequency heating and with the specific intention of maintaining a zero axial current.

Ion cyclotron heating experiments are dealt with in the wave section earlier in this paper.

REFERENCES

- Annual Review, Institute of Plasma Physics, Nagoya University (1963).
- Brennan, M. H., Lehane, J. H., Millar, D. D., and Watson-Munro, C. N., *Australian J. Phys.*, *16*, 340 (1963).
- Brennan, M. H., Brown, I. G., Millar, D. D., and Watson-Munro, C. N., *J. Nucl. Energy Pt. C*, *5*, 229 (1963).
- Brennan, M. H., Robinson, L. C., Sharp, L. E., and Watson-Munro, C. N., *Sixth International Conference on Gaseous Ionization Phenomena, IV*, 293 (1963).
- Irons, F. E., and Millar, D. D., Sydney University, Plasma Physics Report ER.8 (1964) (submitted to *Australian J. Phys.*).
- Sharp, L. E., and Watson-Munro, C. N., Sydney University, Plasma Physics Report ER.9 (1964) (to be published in *Phys. Letters*).
- Wilcox, J. M., Baker, W. R., Bailey, F. I., Cooper, W. S., De Silva, A. W., and Sillman, G. R., *J. Nucl. Energy, Pt. C*, *4*, 337 (1962).
- Nagoa, S., and Sato, T., *J. Phys. Soc. Japan*, *15*, 735 (1960).
- Nagoa, S., and Sato, T., *Nucl. Fusion Supp.*, *3*, 1123 (1962).
- Kato, Y., and Taniuti, T., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-11 (1963).
- Boley, F. I., De Silva, A. W., Forman, P. R., Hamilton, G. W., Watson-Munro, C. N., and Wilcox, J. M., *Phys. Fluids*, *6*, 925 (1963).
- May, R. M., and Tendys, J., Sydney University, Plasma Physics Report TR.8 (1964) (submitted to *J. Nucl. Energy, Pt. C* for publication).
- Sumi, M., *Sixth International Conference on Gaseous Ionization Phenomena, IV* (1963).
- Tanaka, Y., and Yamamoto, K., *J. Phys. Soc. Japan*, *18*, 735 (1963).
- Nagao, S. *et al.*, *J. Phys. Soc. Japan*, *18*, 738 (1963).
- Kojima, S. *et al.*, *J. Phys. Soc. Japan*, *18*, 1553 (1963).
- Itoh, T., *J. Phys. Soc. Japan*, *18*, 1695 (1963).
- Yoshikawa, M., *Nucl. Fusion*, *1*, 167 (1961).
- Ozawa, Y., Kaji, I., Kito, M., *Nucl. Fusion Supp.*, *3*, 1123 (1962).
- Matsuura, K., and Ogawa, K., *J. Nucl. Energy, Pt. C*, *4*, 271 (1962) and *Sixth International Conference on Gaseous Ionization Phenomena* (1963).
- Tsuda, T., *Progr. Theoret. Phys.*, *28* (1962), *ibid.*, *30*, 17 (1963).
- Butler, S. T., and Buckingham, M. J., *Phys. Rev.*, *126*, 1 (1962).
- Varsavsky, C. M., *Fifth International Conference on Gaseous Ionization Phenomena*, 69 (1961).
- Kihara, T., and Aono, O., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-17 (1963).
- Hayakawa, S., and Obayashi, M., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-5 (1963).
- Ikuta, K., and Taniuti, T., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-8 (1963).
- Fukui, S., Hayakawa, S., Honzawa, T., Nishimura, H., and Obayashi, H., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-2 (1962).
- Tanaka, S., Mitani, K., and Kubo, H., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Reports IPPJ-25 (1964), IPPJ-6 (1963) and *J. Phys. Soc. Japan*, *17*, 1800 (1962); *18*, 1810 (1963).
- Tanaka, S., and Mitani, K., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-13 (1963).
- Tanaka, S., and Kubo, H., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-23 (1964).
- Sugihara, R., *J. Phys. Soc. Japan*, *18*, 1062 (1963).
- Kojima, S., and Hagiwara, S., *Nucl. Fusion Supp.*, *3*, 1123 (1962).
- Terashima, Y., and Yajima, N., Nagoya Inst. of Plasma Physics Report IPPJ-9 (1963) also *Progr. Theoret. Phys.*, *30*, 443 (1963).
- Aono, O., *J. Phys. Soc. Japan*, *19*, 376 (1964).
- Kihara, T., Aono, O., and Sugihara, R., *Nucl. Fusion*, *1*, 181 (1961).
- Kihara, T., and Dodo, T., *Nucl. Fusion*, *2*, 66 (1962).
- Khan, R. M., and Chaubri, M. M., *Sixth International Conference on Gaseous Ionization Phenomena, I* (1963).
- George, K. A., *Nature*, *184*, 1790 (1959).
- Takayama, K., Ikegami, M., and Miyazaki, S., *Phys. Rev. Letters*, *5*, 238 (1960).
- Ikegami, H., Takayama, K., Hagiwara, S., and Kojima, S., *Sixth International Conference on Gaseous Ionization Phenomena, IV*, 135 (1963).
- Ikegami, H., and Takayama, K., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-10 (1963).
- Ichikawa, Y. H., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-14 (1963).
- Uramoto, J., Ikegami, H., and Takayama, K., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-15 (1963).
- Uramoto, J., Fujita, J., Ikegami, H., and Takayama, K., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-19 (1963).
- Robinson, L. C., Sydney University, Plasma Physics Report ER.7 (1964).

46. Robinson, L. C., *J. Appl. Phys.*, **35**, 458 (1964).
47. Robinson, L. C., *J. Appl. Phys.* (to be published) and *Rev. Sc. Inst.* (to be published).
48. Takeda, S., and Tshukishima, T., *Sixth International Conference on Gaseous Ionization Phenomena, IV*, 177 (1963).
49. Robinson, L. C., Sydney University, Plasma Physics Report ER.6 (1964).
50. Duir, M., and Low, W., *Sixth International Conference on Gaseous Ionization Phenomena, IV*, 325 (1963).
51. Robinson, L. C., and Sharp, L. E., *Australian J. Phys.*, **16**, 439 (1963).
52. Robinson, L. C., *Rev. Sc. Inst.*, **35**, 226 (1964).
53. Yoshimura *et al.*, A.E.R.I. of Nihon University, Annual Report NUP 64-2 (1963).
54. Sato, M., Nagoya Inst. of Plasma Physics, Report IPPJ-7 (1963).
55. Trehan, S. K., *Nucl. Fusion*, **3**, 294 (1963).
56. Talway, S. P., and Tandon, J. N., *J. Nucl. Energy, Pt. C*, **5**, 243 (1963).
57. Tandon, J. N., and Talway, S. P., *J. Nucl. Energy, Pt. C*, **5**, 261 (1961).
58. Tandon, J. N., and Talway, S. P., *Nucl. Fusion*, **3**, 75 (1963).
59. Hamada, S., *Nucl. Fusion*, **2**, 23 (1962).
60. Kalman, G., *Nucl. Fusion Supp.*, **3**, 1115 (1962).
61. May, R. M., Sydney University, Plasma Physics Report TR.5 (1964) (to be published in *Phys. Fluids*).
62. Blevin, M. A., and Thonemann, P. C., *Nucl. Fusion Supp.*, **1**, 55 (1962).
63. Enjoji, H., and Okamoto, K., *J. Appl. Phys. (Japan)*, **2**, 114 (1963).
64. Mohri, A., Oshiyama, M., Hayashi, S., and Ariga, S., *J. Appl. Phys. (Japan)*, **2**, 815 (1963).
65. Takeda, Y., Miyamoto, T., Ohnishi, H., and Yokota, M., *J. Phys. Soc. Japan*, **19**, 411, 585 (1964).
66. Ichimaru, S., Iida, N., Sekiguchi, T., and Yamada, N., *Nucl. Fusion Supp.*, **3**, 1123 (1963).
67. Avivi, P., Ben-Yosef, N., Deutsch, F., and Kaufman, A. S., *Sixth International Conference on Gaseous Ionization Phenomena, IV*, 373 (1963).
68. Uchida, T., Sato, M., and Hamada, S., *Nuclear Fusion*, **2**, 70 (1962), also A.E.R.I. of Nihon University, 1963 Annual Report NUP 64-2 (1964).
69. Yamada, T., Kawamata, S., Ogawa, K., Sugiura, M., Ahiara, S., Iguchi, M., Kikuchi, H., Yahagi, E., and Yamashita, E., *Nucl. Fusion Supp.*, **3**, 1124 (1962).
70. Cilliers, W. A., Driver, M. S., Irving, J., and Lewin, J., *Nucl. Fusion*, **3**, 78 (1963).
71. Annual Report 1963, A.E.R.I. of Nihon University, Annual Rev. 1964 IPPJ.
72. Abdel-Aziz, M. E., *IRE (Inst. Radio Engrs.) Trans. Nucl. Sc. NS-9-2*, **1** (1962).
73. Butler, S. T., and Johnston, I. D. S., *Phys. Letters*, **9**, 141 (1964).
74. Butler, S. T., Johnston, I. D., and May, R. M., Sydney University, Plasma Physics Reports TR.3, TR.9, TR.10, TR.11 (to be published in *Nucl. Fusion, Phys. Letters and Phys. Rev.*).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/881 Australie

Progrès en matière de fusion contrôlée et de physique du plasma dans les parties du monde autres que l'Europe, l'Amérique du Nord et l'URSS

par C. N. Watson-Munro

Si quelques machines de dimensions moyennes y ont été construites, ces autres parties du monde — dont l'activité dans ce domaine a, pour l'essentiel, commencé après la Conférence de Genève de 1958 — se sont attachées surtout à poursuivre la recherche de base, dont on espère qu'elle fournira des données qui faciliteront la mise au point de grosses expériences concernant les réactions thermonucléaires contrôlées. Le mémoire passe en revue les problèmes qui se posent sous les quatre rubriques principales suivantes: problèmes fondamentaux de physique des plasmas se rapportant au problème des réactions thermonucléaires contrôlées; techniques de diagnostic; problèmes de confinement et de stabilité; chauffage du plasma.

A/881 Австралия

Прогресс в работах по управляемому термоядерному синтезу и физике плазмы в различных странах мира, кроме европейских стран, США и СССР

С. Н. Уотсон-Мунро

Хотя в других странах мира (кроме Европы, США и СССР) после Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1958 год) построено несколько средних экспериментальных установок, основное внимание сосредоточено на теоретических исследованиях, которые позволят получить данные в помощь конструированию крупных экспериментальных установок. В докладе рассматриваются основные работы по следующим четырем направлениям: вопросы физики плазмы, связанные с исследованиями управляемых термоядерных реакций; диагностика плазмы; проблемы удержания и устойчивости и нагрев плазмы.

A/881 Australia

Progresos en la física de la fusión y del plasma controlados en los demás países del mundo, excepto Europa, América del Norte y la URSS

por G. N. Watson-Munro

Si bien se han construido unas cuantas máquinas de tamaño medio, los demás países del mundo, que en gran parte iniciaron sus actividades en este campo después de la Segunda Conferencia Internacional sobre

la Utilización de la Energía Atómica con Fines Pacíficos (Ginebra, 1958), han concentrado principalmente sus actividades en la realización de investigaciones más fundamentales, las cuales se espera que permitan allegar la información que requiere el diseño de grandes experimentos sobre las reacciones termonucleares controladas. En la memoria se examinan los problemas a la luz de los cuatro epígrafes principales siguientes: la física fundamental del plasma relativa al problema de la reacción termonuclear controlada; las técnicas de diagnóstico; los problemas de confinamiento y estabilidad, y el calentamiento del plasma.

Controlled nuclear fusion research in Western Europe

By A. Schlüter *

This paper is a report based on material made available to the author, with the support of the International Atomic Energy Agency, by the majority of the 43 Western European institutions enumerated in a comprehensive list, engaged in research on the generation of useful energy by controlled thermonuclear reactions. Only a very small fraction of this material can be presented in this paper; the selection is in no way intended as an assessment by the author of the relative merits of the different investigations, but has been made solely to give as coherent a picture as possible.

In 1958, at the time of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, the only major Western European effort in the field of controlled fusion was that undertaken by the United Kingdom Atomic Energy Authority at Harwell, while smaller experiments were in operation and larger ones were being prepared at different places in the United Kingdom, in France, in Sweden, in the Federal Republic of Germany and in other countries of Western Europe. A considerable amount of theoretical work had also been done, particularly in the United Kingdom and in Germany. In the period thereafter, European efforts in this field have been intensified to a considerable extent. The present status is best illustrated by a few statistics on the major European installations. The largest of these is still that of the United Kingdom Atomic Energy Authority with their research establishment, now at Culham, Berkshire, with 110 research physicists and an annual operating budget equivalent to US\$10 000 000. Most of the other big Western European installations work under contracts of association concluded by Euratom, such as the Institut für Plasmaphysik at Garching near Munich, with 99 scientists and an annual budget of almost US\$2 000 000, and the Euratom-CEA association with 75 scientists at Fontenay-aux-Roses and 17 scientists at Saclay. Further associations have been concluded with the following smaller organizations: Laboratorio Gas Ionizzati (Frascati near Rome); FOM-Instituut voor Plasma-Fysica (Jutphaas near Utrecht); FOM-Laboratorium voor Massascheiding (Amsterdam), and the Kernforschungsanlage (Jülich near

Aachen). Of other Western European institutions the following should be mentioned: the Institute for Plasmaphysics of the Royal Institute of Technology (Stockholm); the Research Establishment Risø of the Danish Atomic Energy Commission (Roskilde), and the Laboratoire de physique des plasmas of the Université de Paris (Orsay). One division of the Max-Planck-Institut für Physik und Astrophysik (Munich) is also devoted to plasma physics and collaborates closely with the Garching institute. (In the following pages, these laboratories will be identified by their location.)

Between all these laboratories there is close informal co-operation. The European Study Group on Fusion, through its regular meetings, acts as the catalyst. The work of the Euratom associations is further co-ordinated by Joint Committees and the advice of a *groupe de liaison*.

It appears that a further increase in scientific manpower and funds will, at least in the bigger installations, be at a considerably slower rate than it has been in recent years. Specifically, it is the stated policy of the United Kingdom Atomic Energy Authority to continue at the present budget and complement levels until new developments warrant a change.

The ultimate objective of these investigations is the controlled production of useful energy by fusion reactions between the nuclei of heavy hydrogen isotopes. The first step in this research is to explore the possibilities of producing the physical state which the heavy hydrogen isotopes have to attain in order to yield a sufficient number of reactions with a total nuclear energy release large compared with the kinetic energy of the hydrogen nuclei. If one considers the most promising fuel, namely a deuterium-tritium mixture, then this condition would imply a minimum relative kinetic energy of several tens of thousands of electron volts per particle and a minimum time τ during which this energy is maintained, such that τ times the number density n is in excess of 10^{14} s/cm³. Since, even at these kinetic energies, the elastic collision cross section is markedly greater than the fusion cross section, the confinement of the nuclei must allow for a considerable spread in the direction of their velocities, so that nuclei will, to some approximation, be in thermodynamic equilibrium at a temperature

* Institut für Plasmaphysik, Garching.

of several millions of degrees Kelvin. In the case of some schemes of confinement, as in the so-called magnetic mirror machines, MMII and DECA-II at Fontenay and PHOENIX at Culham, particles with certain directions in their velocity vectors can easily escape. In such cases the velocity distribution of the particles, and hence their pressure, will be somewhat anisotropic, and the approximation of thermal equilibrium will not be good, and additional complications will occur.

The densities implied by the minimum value of $n\tau$ are in any case such that the positive space charge of the nuclei must be compensated by an almost equal density of electrons. Even if no external heating mechanism feeds energy into the electrons, elastic collisions between nuclei and electrons will tend to produce thermal equilibrium between them. If the number of these collisions per lifetime of the particles is small, as in the mirror machines mentioned, the temperature of the electrons can be far lower than that of the nuclei. This is a convenient feature since energy production depends only on the temperature of the nuclei, while the temperature of the electrons causes additional losses, e.g., by radiation.

The physical state of matter—consisting of a collection of hot ions, hydrogen nuclei and of space charge-compensating electrons—is commonly called the “plasma” state. The first step towards a fusion reactor has, therefore, to be accomplished within the realm of plasma physics. Although fusion research is by no means the only interesting application of plasma physics. Since almost all matter in the universe is in the plasma state, there are many links with astrophysical problems which are being looked into in Stockholm, in Munich and at Culham. The most encouraging information drawn from astrophysics is the observation that long-lived plasma configurations do exist, even where gravitation does not play a controlling role. It is conceivable that fusion research will not be the first branch of plasma physics to yield practical results on a large scale; for instance, the possible use of plasmas in electromagnetic generators is now being explored at many places.

Even the attainment of the Lawson criterion of minimum $n\tau$ at a sufficiently high temperature does not completely solve the fusion problem. Other than this requirement, energy losses from the hot plasma and from external circuits must be kept at a tolerable level. Since fusion energy must be extractable, tritium has to be produced with the aid of fusion neutrons, without even considering the economic problem of competitiveness with fossil-fuel burning or power generation from nuclear fission reactors. Nevertheless, there seems to be in Western Europe a common agreement that the chances are good enough to warrant a relatively large effort.

The containment of the plasma for as long as possible is in all experiments attempted with the aid of

strong magnetic fields. In most cases, these fields are produced by electric currents flowing in external conductors and are only modified by the diamagnetic behaviour of the plasma or, what amounts to the same, by secondary currents induced in the conducting plasma. This does not hold for the so-called z-pinch as TIBER at Culham and its variants like the tubular pinch or the anti-pinch studied at Fontenay and at Garching, where large external currents are fed into the plasma. Nor does it hold for the toroidal relatives of what are referred to as “straight” devices: the well known toroidal z-pinch ZETA at Culham and the LEVITRON experiments. Some basic ideas of the latter were first proposed by the Stockholm institute, where it forms the main objective and also at Aldermaston. The “alternating pinch” and the “magnetic screw compression” devices at Jutphaas also belong to this group. The advantage of the toroidal systems is that there are no electrodes preventing the complete separation of the plasma from the walls. If, however, electric currents within the plasma or on its surface are solely diamagnetic in origin, then a toroidal connectivity of the plasma is not needed to permit this separation. In the mirror machines already mentioned, the magnetic field is strengthened where lines of force penetrate the surface of the plasma; those particles which gyrate sufficiently strongly around the magnetic lines of force in these “mirrors” are reflected, since the gradient of the field exerts a force on the magnetic moment of the gyrating motion. This dependence upon the gyration is the reason for the above-mentioned anisotropy of this type of confinement. With a similar partial leak, one has to cope with confinement schemes where the magnetic field forms cusps, as in the high-density “cusped field containment” experiments at Culham, and the low-density “quadrupole field” experiments at Jutphaas.

In the theta-pinches, or thetatrons, a very slender plasma column is rapidly compressed by a magnetic field consisting of essentially straight lines of force. They belong also to the “diamagnetic” class. With these devices, plasma densities of the order 10^{17} per cm^3 have been reached, and although the plasma can stream out at both ends, the best containment values $n\tau$ are higher than 10^{13} s/cm³. This is low by only a factor of about 100 compared with the Lawson criterion, and is better than in all other types of devices. The value quoted refers to tubes of about one meter long, and to condenser banks with about a million watt-seconds stored energy, as have been installed at Culham, Jülich and Garching. The outflow at the ends can be somewhat diminished by using the mirror effect, but more effectively by trapping in the plasma a magnetic field of polarity opposite to that of the compressing field. From the stated value, it follows that a machine making possible the attainment of the Lawson criterion, would have a length of perhaps a hundred

meters. This would be so, even if the necessary further increase in temperature, with its consequent increase in the speed of outflow, can be compensated by a further increase in density. This in turn would imply the use of compressing fields in the megagauss range. In the MIRAPI experiment at Frascati, densities of 10^{19} per cm^3 have in fact been reached, but only in a rather small volume.

End losses would disappear also with "diamagnetic" plasma, if the plasma could be closed upon itself, i.e., if a toroidal geometry could be employed. If one could, however, simply bend a theta-pinch into a ring around an axis, then the plasma would very quickly drift away from that axis, since the compressing field is necessarily stronger on the side of the plasma near the axis than on the far side. This has been experimentally verified at Munich. This drift is connected with a rearrangement of the lines of force. It demonstrates that the confinement of a plasma is not simply the problem of the effect on a plasma by a given magnetic field, but constitutes a problem of equilibrium between the plasma and the magnetic field. This problem exists for all plasma configurations. In the case of the previously mentioned arrangements, ZETA, Stockholm, levitron and magnetic screw compression, the magnetic field between the plasma and the container walls has poloidal components, i.e., components in planes which contain the axis. These poloidal fields fix the position of the plasma by their interaction with the metal walls of the vessel. In the Jutphaas magnetic screw compression arrangement, an ingenious system of metal shells has been provided specifically for this purpose and used successfully. In toroidal theta-pinch, these poloidal fields do not exist. Theory, however, has shown that more complicated equilibrium configurations do exist for "diamagnetic" plasmas of toroidal connectivity. Two such types have been experimentally studied at Wendelstein (Munich), where the Princeton stellerator principle of additional helical windings has been used, and also the M & S devices (named after the initials of the authors of the corresponding analytic equilibrium solution), where the lines of force on the side near to the axis of the torus are given a wave shape, so as to reduce the field strength there. The M & S scheme has proved to be effective in reducing the outward drift in a fast compression machine by at least a factor of 3.

A further complication in the equilibrium problem arises from the fact that the finite electrical resistivity of the plasma renders a strict static equilibrium impossible, since some motion of the plasma across the lines of force must persist to induce the electric fields necessary to drive the "diamagnetic" currents. In a Munich paper it has been shown that this effect is especially noticeable with the complicated flow pattern of the "diamagnetic" currents in stellerator configurations.

The practical value of a confinement system is much reduced if its attainment depends on a very critical adjustment of the parameters, in particular on a critical alignment of the magnetic field. This has been found experimentally, for example, in theta-pinch experiments at Culham and Jülich, where an accuracy of one part in a thousand was required. A corresponding sensitivity also occurred in the M & S experiments. The addition of auxiliary magnetic fields perpendicular to the main field, following the procedure first used by Ioffe, has shown good results in reducing this sensitivity.

From both a practical and a theoretical point of view, the sensitivity against small changes in external parameters is a special aspect of the problem of instabilities. This has been recognized as the crucial problem of fusion research for quite some time, at least ever since the first experiments on the simple straight z-pinch showed violent instabilities. Although many questions are still open, it is our growing understanding of instabilities and of the means of preventing some of them which constitute the most important advance in plasma physics in recent years.

Best known of the many modes of instability is the "interchange" or "convective" instability. It can occur in systems in which the magnitude of the confining magnetic field falls off away from the plasma surface. These systems are unstable if the plasma and the magnetic field can interchange their positions and thereby lower the potential energy of the whole system. It is the only macroscopic form of instability in those systems in which the energy density of the plasma is small compared to the energy density of the magnetic field ("low β "). If the conductivity of the plasma can be considered infinite, the exchange can be prevented by "shearing" the magnetic field sufficiently, so that neighbouring lines of force are no longer parallel. This "shear stabilization" has been applied in the z-pinch and its relatives, and in the stellerator system, where it is the other main purpose of the helical windings referred to.

An important discovery last year was that things are rather different if the plasma has a finite resistivity. Then the motions of the plasma and the magnetic fields are partly decoupled and the state of lower total potential energy may become accessible in spite of the shear. An indication of some new instabilities of this origin was first found in the inverse pinch experiments called FAUST at Culham. In straight-tube experiments, an ordinary pinch configuration was compared with an inverse pinch geometry. The latter should be stable, the former unstable if resistivity is neglected. But in practice, fluctuations of about equal magnitude, indicative of instability in both cases, are found, although the confinement appears to be somewhat better in inverse pinch geometry. Experiments and finite resistivity theory have been compared

accurately in experiments with a falling mercury column in inverse pinch geometry. In the case of the plasma experiments, an approximate agreement between theory and experiment has been obtained in the case of the wavelength, growth time and pitch of the instability. The theory is not sufficiently developed to apply it with confidence to high-temperature plasma, where the mean free-path for collision becomes greater than the pitch length of the helical lines of force. The reason is that in such circumstances electric fields along the lines of force can be suppressed by the rapid thermal motion of the particles, and can arise from the finite mass of the particles. Both these new instabilities, and those of the kinetic type which can arise from currents flowing along the lines of force, immensely complicate the problem of finding stable forms of the pinch.

Of these resistive instabilities, the so-called "tearing-mode instability" also occurs in thetapiiches when an inverse magnetic field had been trapped in the plasma. Experiments at Garching have shown that they occur much faster if there is only a small inhomogeneity in the system.

If the reaction of the plasma on the confining magnetic field is small ("low β "), the interchange instability can be prevented by the use of field configurations where the magnetic field strength increases in all directions away from the interior of the plasma. The equilibrium and the stability of such systems have been studied both at Fontenay and Culham. By using the adiabatic invariants of motion, criteria of stability could be derived. They predict possible equilibria of the open-ended type, which should be stable for all perturbations having frequencies below the ion gyro-frequency. If such a "magnetic well" is filled with plasma (β being increased), it is likely to become unstable if the plasma pressure exceeds a value $P^{\text{max}} \approx B_1^2 - B_0^2$ where B_1 is the field at the plasma boundary and B_0 is the field at the minimum B point. This theoretical result has been found independently at Fontenay and at Culham.

An apparatus called MTSE, based on Ioffe's experiments, has been constructed at Culham, which can be converted from a simple mirror geometry into a "magnetic well" by adding hexapole windings. It is found that the simple mirror geometry, in agreement with the results of Ioffe and colleagues, is indeed unstable to interchanges, and the plasma escapes in few tens of microseconds. With the hexapole windings on, the plasma appears to be stable, and it is confined for a much longer time (500 μs), determined by a charge exchange on the neutral gas inevitably present in the existing apparatus. Similar results were obtained with the mirror machine DECA-II at Fontenay. The addition of a quadrupole correcting field had a stabilizing effect which could be studied over a wide range of densities from 10^{10} to 10^{14} per cm^3 . The confine-

ment time was typically 20 μs without the correcting field; it reached values of about 100 to 200 μs in the density range 10^{10} to 10^{13} per cm^3 .

Although the strict adiabatic theory cannot be applied as yet to high β -devices like theta-pinches, the simple hydromagnetic stability theory predicts that such configurations should be stable, if the magnetic field and the plasma are completely separated ($\beta=1$) and if the magnetic field strength increases away from the plasma surface at every point. First experiments of this kind were carried out at Culham in a so-called "spindle-cusp" geometry. Shock preheated plasma is compressed by cusp magnetic fields which rise in a time of about 10 μs to values of about 30 kilogauss maximum. All the experiments so far carried out indicate that, provided the plasma is not accelerated violently (in which case it becomes liable to Rayleigh-Taylor instability), the confinement system is stable. The plasma does not cross the lines of force to any marked extent but it does, of course, leak out along the lines of force at the cusp apices. A critical parameter is the width of this leak. The most recent results suggest that at ion energies of ~ 100 eV and in fields of about 6 kilogauss, this width is about 2 mm, which corresponds to about two ion gyro-magnetic radii. If the system were hydromagnetically unstable, this width would be greater. However, the confinement time in this experiment is not very long, about 10 μs . Nevertheless, the simplest prediction of hydromagnetic stability theory appears to be confirmed.

Ordinary theta-pinches should be slightly unstable according to the present argument, since the lines of force are bent towards the plasma, at least near the ends. Recent extensions of the stability theory, which include the effect of the finite radius of gyration, predict an improvement in the stability due to this effect. Thus theta-pinches (without a trapped reversed field) might become stable if the radius of the plasma column contains only a few radii of gyration after compression.

Theoretical work on the problem of magneto-hydrodynamic stability has been pursued for several years at Fontenay. Recently, a general necessary condition for stability has been obtained which involves the magnetic field and current density on the magnetic axis and the shape of magnetic surfaces around this axis. It has been applied successfully to new concepts of periodic multipole stabilisation of closed low β -configurations, proposed in the United States.

Further types of instability occur in mirror machines which are associated with an enhanced emission of radiation with frequencies around the ion gyro-frequency. These can presumably be understood as a manifestation now called "Harris" instability. In theory, the microscopic behaviour of the particles constituting the plasma plays a dominant role, so that they cannot be understood in any macroscopic

concept, or in an adiabatic approximation. The wide field of microscopic instability theory is being studied in several places, among them Munich and Garching. The possibility of deriving strict microscopic conditions sufficient for stability shows that the situation is not altogether hopeless. Experimental studies are carried out at different places; they constitute one main objective at Saclay.

Not yet quite clear is the particular situation found in the plasmas of relatively low energy (of the order of 10 to 100 eV as compared to 1 keV in theta-pinches) in machines of the stellarator type. Experiments at Munich and Garching, at still lower energies using an almost thermal plasma of caesium, are being carried out to decide whether the observed high rates of loss of particles and of energy are due to a lack of equilibrium or to some instability.

Although all methods of confinement use magnetic fields in some way, in some schemes direct use is made of the dynamic properties of a plasma. The fast compressing devices mentioned form a transition to this class, since the inertia of the plasma cannot be neglected during the compression. The MAFIN experiments at Frascati might lead to an even more dynamically controlled plasma. A magnetic field has been compressed up to values of several megagauss by the implosion of a metallic conductor with a detonation action of 3 kg of explosive.

The experiments PLÉIADE, ICARE and CIRCÉ at Saclay belong in some sense also to this class. Stationary or progressive high-frequency fields are employed, especially with frequencies around gyro-frequencies, in conjunction with static magnetic fields. With hf powers up to 1 MW (in ICARE), three-dimensional confinement of a plasma of very hot electrons and relatively cool ions has been achieved.

The problem of the stable confinement of a plasma for a sufficiently long time is certainly the most difficult of the obstacles on the way to controlled fusion. The other basic problem is the heating to a sufficiently high temperature. Fundamentally, there are two different ways of achieving this temperature. The particles can either be given first a high energy and then be trapped, or vice versa. A combination of both is a further possibility. The trapping of high energy particles leads invariably to plasmas of relatively low density, while heating *in situ* can be applied both to high and low density plasmas.

A simple method of heating within a confined region is employed in all fast compression devices of the z-pinch or, more commonly, of the theta-pinch type. The fast build-up of the confining field leads to adiabatic and shock wave heating. The Joule heat generated by the currents within the plasma also contributes to this. The heating is here closely connected with the dynamics of the compression. Extensive numerical calculations have led to a reasonable under-

standing of these processes in geometries of cylindrical symmetry; they are being extended to cases of more complex structure. Work of this kind has been done at Culham and Garching in close co-operation with the Naval Research Laboratory in Washington.

At present, high energy injection is being investigated only with confinement schemes of the cusped magnetic field or the mirror type. Most of the latter are or will be provided with Ioffe type stabilisation fields. The injected particles are ions, neutrals, or already constitute a fast moving plasma. A new development is the trapping of neutrals, as in the Phoenix experiments at Culham where a beam of 20 keV neutral atoms is injected. The particles are first ionised by the Lorentz $\vec{V} \times \vec{B}$ electric field seen by them as they cross the magnetic field, and then trapped by the same magnetic field. By this trapping process, densities of the order of 10^9 per cm^3 have been achieved. At this density ionisation by the plasma already trapped should enable the density to build up to a value of 10^{13} - 10^{14} per cm^3 which, associated with a particle scattering time of about 1 second, would not be far from the requirement of the Lawson criterion.

Plasma injection will be used in the quadrupole magnetic field experiment at Jutphaas. It has been used in DECA-II experiments at Fontenay with resulting densities up to 10^{14} per cm^3 . The Jülich experiments to accelerate a plasma by travelling magnetic fields and the studies of colliding plasmas in the Fontenay experiment "bille en tête" are of great interest in this connection.

A method in some way intermediate between plasma injection and heating *in situ* is being investigated in Stockholm and in Amsterdam. By applying a longitudinal magnetic and an external radial electrical field, energy is first fed into the rotational motion of a plasma and then, by dissipative mechanisms, into heat. The physical processes occurring are quite complex and not yet well understood.

None of these investigations could have been performed but for the great progress achieved in both the technology needed to set up the experiments and the diagnostic techniques needed to get the desired information. In almost all centres of fusion research, the total effort spent on these aspects presumably exceeds that spent on performing the experiments themselves. Further progress in fusion research will continue to depend largely on the solution of these problems. Mention should be made here only of two recent diagnostic techniques which have this in common, namely that they should render possible, for the first time, the direct observation of microscopic quantities within the plasma. At Risø, attempts have been made to measure the anisotropic part of the electric microfield, which should accompany some micro-instabilities, by its effect on the spectral lines of visible light.

At Frascati and at Garching, the spectral distribution of the light scattered by a plasma out of an incident beam of high intensity and small spectral intensity has been measured. This spectral distribution depends directly on the density fluctuations of the electrons in the plasma. It shows the existence of the predicted collective effects in these fluctuations.

The picture of the present state of fusion research in Western Europe which has been drawn is undoubtedly

quite complex. Progress is being sought along many lines. Since the size of the experiments is increasing with increasing confinement time and increasing temperature, even large institutes have to concentrate on a small number of approaches. Thus, progress in Europe will depend on an even closer co-operation between European laboratories and laboratories in other continents.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/882 République fédérale d'Allemagne

A/882 ФРГ

Recherche en matière de fusion nucléaire contrôlée en Europe occidentale

par A. Schlüter

Le mémoire se fonde sur les renseignements fournis à l'auteur par la majorité des quarante-trois établissements d'Europe occidentale qui mènent des recherches concernant les réactions thermonucléaires contrôlées. Le réacteur à fusion demeure un espoir, qui ne pourra être réalisé au cours des quelques prochaines années, mais on semble être d'accord pour estimer que les chances sont assez bonnes pour justifier un effort relativement grand dans ce domaine. Les principaux laboratoires, l'effectif de leur personnel ainsi que leur budget sont indiqués. Il existe entre les laboratoires une étroite coopération sur le plan pratique, qui est renforcée par plusieurs organismes officiels, le Groupe d'étude européen sur la fusion, et, en ce qui concerne le travail de l'EURATOM, par ses divers comités.

Une douzaine de paragraphes consacrés aux problèmes techniques contiennent une discussion des points suivants: méthode d'approche pour arriver à des temps de haute densité pour les plasmas d'hydrogène et relations avec les problèmes astrophysiques; champs magnétiques intenses pour le confinement; nouvelles connaissances sur les nombreuses instabilités qui compliquent les expériences sur les plasmas; systèmes ingénieux de confinement du plasma n'exigeant pas les ajustements très critiques de certains des systèmes plus anciens; configuration magnétique en cosse-pivot. Comme le confinement stable du plasma, l'obtention d'une température élevée du plasma présente un problème fondamental, quoique moins difficile à résoudre; les méthodes expérimentales sont décrites dans leurs grandes lignes. Dans presque tous les centres qui font de la recherche en matière de fusion, on consacre probablement à la technologie qu'exige la préparation des expériences et aux méthodes de diagnostic nécessaires pour obtenir les renseignements voulus plus d'efforts au total qu'on n'en consacre à l'exécution des expériences elles-mêmes.

Работы по управляемому термоядерному синтезу в Западной Европе

А. Шлютер

Доклад основан на материалах, полученных автором от большей части из 43 институтов Западной Европы, проводящих работы в области управляемых термоядерных реакций. Создание термоядерного реактора по-прежнему остается задачей, которую вряд ли удастся осуществить в течение ближайших нескольких лет, однако существует общее мнение, что шансы на успех достаточно велики, чтобы затрачивать большие средства. Приведены крупные лаборатории, численность персонала и бюджет. Между лабораториями поддерживается тесное информационное сотрудничество, которому способствует деятельность нескольких официальных групп: Европейской исследовательской группы по синтезу, Евратома и его различных комитетов.

В десятке параграфов по техническим вопросам излагаются работы по получению и удержанию водородной плазмы большой плотности и связь с астрофизическими проблемами; применение сильных магнитных полей для удержания; успехи в изучении многих неустойчивостей — бича экспериментов с плазмой; остроумные системы для удержания плазмы без таких жестких требований, как это было в старых установках, конфигурация магнитного поля с остроконечными выступами. Наряду с устойчивым удержанием получение высокотемпературной плазмы является основной проблемой, хотя и не такой сложной. Описаны эксперименты в этом направлении. Почти во всех центрах, где ведутся термоядерные исследования, все усилия, направленные на технологию проведения экспериментов и на диагностику, необходимую для получения информации, в большинстве случаев превышают усилия, затрачиваемые на проведение самих экспериментов.

A/882 República Federal de Alemania

Investigaciones sobre la fusión nuclear controlada en Europa occidental

por A. Schlüter

La memoria se basa en materiales facilitados al autor por la mayor parte de las 43 instituciones de Europa occidental que efectúan investigaciones sobre las reacciones termonucleares controladas. El reactor de fusión sigue siendo una meta que se espera alcanzar, aunque no en los próximos años, pero, al parecer, se está de acuerdo en general en que hay bastantes probabilidades de éxito y en que conviene realizar un esfuerzo relativamente grande para obtenerlo. Se citan los grandes laboratorios, sus efectivos y presupuesto. Entre los laboratorios existe una estrecha cooperación extraoficial que favorecen diversos grupos oficiales; el Grupo de Estudios Europeos sobre la Fusión, y, para el trabajo del EURATOM, sus diversas comisiones.

En una docena de párrafos relativos a problemas técnicos se examina la obtención de plasmas de hidrógeno de gran densidad y sus relaciones con problemas astrofísicos; los campos magnéticos intensos para el confinamiento; se señala que es cada vez mayor la comprensión de muchas inestabilidades inherentes a los experimentos con plasma; se discuten los ingeniosos sistemas de confinamiento del plasma que no exigen los ajustes muy críticos de algunos sistemas anteriores y la configuración magnética de lóbulo ahusado. Junto al confinamiento estable del plasma, el plasma de alta temperatura constituye un problema fundamental aunque su resolución no sea tan difícil; se esbozan los métodos experimentales para abordar ese problema. En casi todos los centros de investigación sobre la fusión, el esfuerzo global relativo a las cuestiones tecnológicas necesarias para organizar los experimentos y a las técnicas de diagnóstico que se requieren para obtener información tal vez sobrepase el empeño puesto en la ejecución de los experimentos propiamente dichos.

Controlled nuclear fusion

Chairman: Sir William Penney (United Kingdom)

PANEL DISCUSSION

M. TROCHERIS (France): I should like to give you a few details of the DECA II experiment carried out at Fontenay-aux-Roses. The principle of this experiment, which consists in confinement by magnetic mirrors and stabilization by multipole fields, seems to offer one of the most promising lines of research at the moment, and it is one on which a number of laboratories are pinning their hopes.

In the DECA II device a stable configuration is achieved by superposing a quadrupole field on a magnetic mirror field. The magnetic mirror field is produced by two co-axial coils, about 50 cm apart, with an interior diameter of approximately 20 cm. The quadrupole field is produced by currents moving in alternate directions in four bars parallel to the axis. The maximum magnetic field can reach 15 kilogauss at the centre and 30 kilogauss at the mirrors.

The deuterium plasma is not produced *in situ* in the experimental chamber but injected from the outside in the form of a rapid burst from a plasma gun. After capture between the magnetic mirrors, the average energy of an ion of the plasma reaches several hundred eV. The plasma is then raised to an even higher temperature and at the same time moved away from the walls by a slow increase of the magnetic field, or adiabatic compression.

Numerous measurements have been carried out on the plasma thus formed. The most important of these are measurements of electron density by means of millimetre waves and the detection of fast neutral atoms formed by charge exchanges between the fast ions of the plasma and the slow atoms of the neutral residual gas. The decrease with time of the signal observed from the fast neutrals gives an indication of the lifetime of the plasma.

A very considerable advantage of the injection method used in DECA II is the possibility of producing plasmas whose density can be varied over a wide range (10^{10} - 10^{14} particles/cm³).

One can summarize the experiments carried out on DECA II very briefly by saying that we studied the variation of plasma lifetime as a function of two parameters: intensity of the quadrupole field, and density. In theory, if the intensity of the quadrupole field is increased without any change being made in the principal field formed by the mirrors, the stable

configuration should be achieved above a certain minimum value of the quadrupole field. The lifetime of the plasma should, therefore, increase sharply when this minimum value is passed. This is in fact what one observes for the lowest densities (of the order of 10^{10} particles/cm³): the lifetime rises, for example, from 20 to 200 μ s. This latter value is determined by a cause of plasma loss other than instability, namely charge exchange with the residual gas.

At higher densities our initial results were very discouraging: for a density of 10^{11} particles/cm³ the lifetime did not exceed 70 μ s and for a density of 10^{13} or 10^{14} particles/cm³ the lifetime showed no further increase at all with the quadrupole field.

Completely different results were obtained after we had added a diaphragm at the entrance to the chamber to limit the diameter of the injected plasma. The lifetime now increased as a function of the quadrupole field, always roughly in the same manner, no matter what the density.

Analysis of the results leads one to believe that they can be explained entirely by the two causes of plasma loss already mentioned, namely instability and charge exchange with the neutral gas. However, as regards the first series of experiments (without diaphragm), one has to consider that the density of the neutral gas was not merely that of the residual gas, and moreover that it increased with the density of the plasma. This can be explained perfectly well if one considers the rôle of the walls. In the experiments without diaphragm the chamber was too completely filled and a part of the plasma was not captured in the magnetic well, the depth of which was limited. This unconfined plasma soon strikes the walls, removing the gas from them and so introducing neutral gas into the chamber in proportion to the quantity of plasma striking the walls.

Needless to say, a great many experiments still have to be performed, particularly with a view to clarifying and eventually eliminating this unfortunate wall effect. But the results obtained so far, although only preliminary, are nevertheless very encouraging; they provide a clear experimental indication in favour of the stability of magnetic well configurations.

K. FUSHIMI (Japan): Professor Watson-Munro has been kind enough to cover, in paper P/881, the more important Japanese work in fusion and plasma physics. I can, therefore, confine myself to discussing

a few of the highlights, without any attempt to evaluate the relative significance of the different activities.

To some extent, Japanese work in plasma physics derives from a rather long tradition of research into electrical discharges in gases. From this tradition there emerged the proposal for a double probe, put forward by Professor Kojima, and, more especially, Professor Takayama's proposal for a resonance probe. The performance of the resonance probe has attracted wide interest, especially at Stanford University and at the Max Planck Institute, and has been the object of close study. Although the original interpretation of the observed resonance-like peak as indicating the exact frequency of plasma oscillations has had to be abandoned because of the modification introduced by the sheath impedance, the essential feature of the method remains valid, so that it may eventually become a reliable diagnostic tool, though probably outside the realm of fusion.

The results of our research suggest the conclusion that plasmas apparently in the same state, and having the same density and temperature, can respond in different ways. This fact has prompted research workers to the witticism that every diagnostic method has its own plasma, and it certainly hampers our efforts to obtain a coherent picture from the results of different research projects. For instance, Professor Takayama's success in obtaining a conspicuous resonance peak was due essentially to the fact that he made a large, spherically-shaped discharge bulb, the electrode system being put at the side of the tube, so that only the skirts of the plasma came near the centre of the bulb. In this way, wall effects on the plasma were avoided and other electrical disturbances of the electrode system were prevented. One part of our initial task at the Institute of Plasma Physics is to produce plasmas of definite and known parameters, an aim which so far has not been fully realized.

A second part of the Japanese effort in fusion owes its origin to the great stimulus provided by the first and second Geneva Conferences. Dr. Bhabha declared at the first conference that fusion power might be practical within twenty years, and the second conference made available all at once the great fund of material that had been accumulated in secret experiments in the atomically advanced countries. Able scientists from related fields of research, such as cosmic-ray physics and accelerator physics, were attracted to this new and challenging work. The task was more difficult than they had anticipated, apparently, and after several trials they realized that plasmas were frequently not amenable to control.

As an example, I should like to mention a painful experience we had in the construction of the heliotron, a device for containment and heating of plasma in a special corrugated magnetic field. A number of wires wound along the generating lines of the toroidal

discharge tube were used to produce joule heating. After considerable experimentation it was found that these wires produced a transverse field which drove the plasma sideways. The research group in question is now building a second device in which, it is hoped, the weak points of the original design will have been removed. I have heard that in some of the big American machines, too, there has been a similar neglect of the Maxwell equations.

I have discussed two aspects of the Japanese work that may have their counterparts in other countries. Pursuant to these observations I should like to mention a problem which should at least give us food for thought. In 1961, midway between the second and third Geneva Conferences, the International Atomic Energy Agency held in Salzburg an international conference on plasma physics and controlled nuclear fusion research. In the same year there was a parallel conference held in Munich on ionization phenomena in gases. Next year the Agency intends to hold another conference on controlled nuclear fusion, and there is also to be a further conference on the phenomena of ionization in gases. The problem, then, is to get these two schools of scientific research to collaborate more closely.

In closing I should like to mention a second problem. I have already described one instance where the progress of an experimental project was slowed by a rather trivial and elementary mistake. There must have been many errors of this type in the atomically advanced countries, yet it is not easy to find accounts of them in the literature; one learns of them, in fact, only through actual exchanges of research personnel. The problem, then, is how to promote the fuller exchange of information of this kind.

J. B. ADAMS (United Kingdom): Perhaps I can best contribute to the discussion by commenting on various specific problems as we see them at Culham. Our programme as a whole is, of course, very adequately covered by Professor Schlüter in paper P/882.

In 1958 the work in the United Kingdom was mainly concerned with the pinch experiment. Our programme now encompasses three lines of work on the containment problem: adiabatic magnetic mirror experiments, both in the simple form and in the magnetic well form; experiments using magnetic bottles such as the thetatrons—i.e., experiments with high- β plasmas (these first two are both open-ended systems); and, lastly, research with closed magnetic traps, where we have concentrated on the pinch and the inverse pinch experiments.

As regards the adiabatic magnetic mirrors, undoubtedly the most important advance in the last year or so has been the idea of magnetic wells. Our contribution, after the original experiments of Ioffe at the Kurchatov Institute, has been in the theoretical work. We have managed to calculate the stability of

such wells, which are containment systems; and, more recently, we have found how to calculate what is called the β limit, that is, how much plasma one can put into such a well before the magnetic field becomes so distorted that the interchange instability reappears. We have checked Ioffe's experiment in our own laboratory with results very similar to his and we hope to extend these experiments, particularly those concerned with the β limit. To judge by Dr. Trocheris' remarks about the experience with DECA II, it seems that this really is one of the most important problems.

With regard to the magnetic bottles, such as thetatrions, I think our most useful contribution has been in connection with determination of the equilibrium position in such devices. This may seem a trivial problem, but in fact it has arisen in many plasma containment systems; there is little use in discussing instabilities where no equilibrium exists. This, I think, has been generally realized now.

The real problem with thetatrions and with the spindle-cusp, which is a very similar type of experiment, using, essentially, a magnetic bottle with a well, is the rate of leakage from such devices. It is well established that they produce very hot and dense plasmas. But unless the leaks can be stopped it is difficult to see how one could use them as the basis of a practical reactor. At Culham we have perhaps made a useful contribution towards a solution of this problem by trying to find the width of the leak. We found it to be of the order of twice the ion gyromagnetic radius; and of course for the purposes of a reactor it will have to be much smaller, something more like the electron gyromagnetic radius. This, it seems to me, is the sort of problem which is likely to become very important in the next year or so.

In our work with closed magnetic traps we have concentrated on the inverse pinch experiments. Professor Schlüter's paper refers to our work on resistive instability. The question of shear stabilization also still needs a good deal of clarification. The most interesting recent development in closed systems, to my mind, is the possibility of making something like a magnetic well in them. It is theoretically impossible to have a closed system with magnetic fields increasing in all directions from the plasma centre, but it is possible to think of appropriate averages of the magnetic field taken round the system, such as an integral of dI/B , which can give a type of magnetic well. Such systems have been investigated in the United States and offer an alternative to the shear-stabilized system.

In closing I should like to emphasize that very important advances have been made since 1958 in plasma diagnostics. If we know more about hot plasmas now and speak of them with greater confidence, it is because we can measure them better.

This is probably one of the most important areas of progress since the last conference.

Lastly, it should be borne in mind in all this work that in studying plasmas we are dealing with a state of matter which, although it may be new to us, is very common in the universe. At Culham we are engaging in programmes of stellar spectroscopy, using stabilized rockets. This is an interesting problem: to measure cosmic plasmas with the diagnostic tools developed in the laboratory for research into laboratory plasmas. I think one should also emphasize that the plasma state may well have many uses apart from nuclear fusion, and that it is therefore a legitimate sphere of research in itself, quite apart from the goal.

I. N. GOLOVIN (USSR): A great deal has been said about the successful development of one particular method of overcoming flute instability. It is not hard to understand the keen interest of experimentalists and theoreticians in this matter because flute instability is in fact the most serious of the known forms of instability; if it develops, the accumulation of a dense hot plasma in a magnetic trap is quite out of the question. The many results of investigations of plasma instability in various laboratories throughout the world often seem at first sight to be in contradiction with each other. This has given rise to lively discussions, as a result of which the true picture of plasma instability has become a good deal clearer in the last few years; even so further clarification of detail is required, both in theory and in the experiments. We have heard about effective suppression of flute instability by means of radially increasing magnetic fields. This is a considerable achievement. Nevertheless, I should like to dwell briefly on two other methods of dealing with this problem, for only the future will show which way of overcoming instability is most practical.

At the Salzburg Conference in the autumn of 1961 it was pointed out that the finite dimensions of the ion orbits (Larmor radius) produce a stabilizing effect. Subsequent theoretical analysis—carried out in the Soviet Union, and experiments on OGRA, have shown that the radial electric field of the plasma space charge has, depending on how it changes along the radius, either a de-stabilizing effect on a plasma which was stable beforehand or a stabilizing effect on a previously unstable plasma. In other words, a radial electric field increasing faster than the first power of the radius has stabilizing effect, whereas a radial electric field increasing more slowly, or decreasing, has a de-stabilizing effect on the plasma. The experiments carried out so far have been at low plasma densities of up to 10^8 ions/cm³, but the attractive feature of this stabilizing mechanism is that, in accordance with the theory, its effectiveness does not depend on the density of the plasma.

We have learned how to suppress instability by modifying the radial distribution of the plasma space

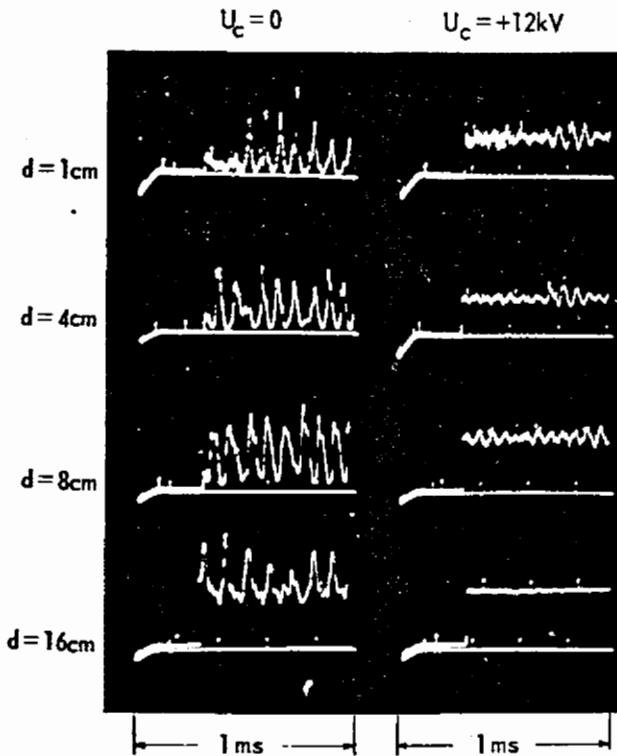


Figure 1. The flux of fast ions onto a probe covered with foil at various distances from the chamber wall in the unstabilized ($U_c = 0$) and stabilized ($U_c = +12$ kV) regimes

charge, and from Figure 1 you can see how effective this method is. Here we see how the signal from the probe changes when it is immersed at various depths in the plasma. On the left is unstabilized plasma, on the right stabilized plasma. We see that at a depth of only 16 cm from its surface the plasma is completely quiescent, although its diameter is about 1 m.

In Figure 2 we see how the fluxes of neutral atoms escaping from the plasma depend on the stabilizing effect. The upper diagram shows an oscillogram of the fluxes of neutral atoms without the stabilizing field; on the lower diagram you see a completely smooth horizontal straight line and, after shutdown, a smooth decrease in the stabilized regime. Experiments showing to what extent this mechanism will guarantee stability in the systems required for practical fusion reactors have yet to be carried out. In such systems the plasma must have a lifetime of the order of a second, but in our experiments, where the lifetime is 0.01 s, we have been unable to detect any signs of instability in the stabilized regime.

Another important method of overcoming flute instability has been under discussion since the time of the second Geneva Conference, a method to which attention was first called by Post and Rosenbluth in the United States. We regard it as extremely significant. It is based on the fact that in mirror machines flute instability is suppressed if conductivity along the magnetic field from the mirror to the ends

of the chamber can be ensured. An analysis of this mechanism has been undertaken by the Zavoisky group at the Kurchatov Institute of Atomic Energy. The theory evolved by Rudakov indicates that there are good prospects of arriving at systems of practical importance: specifically, conductivity up to the ends of the chamber is quite sufficient if outside the mirrors there is a cold plasma with a density 1000 times less than that of the hot confined plasma. A cold plasma of this type is inevitably formed as a result of the residual gas surrounding the hot plasma. It has been proven experimentally that with cold plasma densities 40-80 times less than the density of the hot plasma, the hot plasma itself is stable. We hope that stability will be preserved, as predicted by the theory, with further reductions in the density of the cold plasma. This will have to be checked by experiments using a higher vacuum.

Interesting results on the suppression of plasma instability have been obtained by S. M. Osovets and his group, also at the Kurchatov Institute of Atomic Energy. In order to stabilize the plasma use is made of a high-frequency electromagnetic field whose pressure on the plasma increases radially.

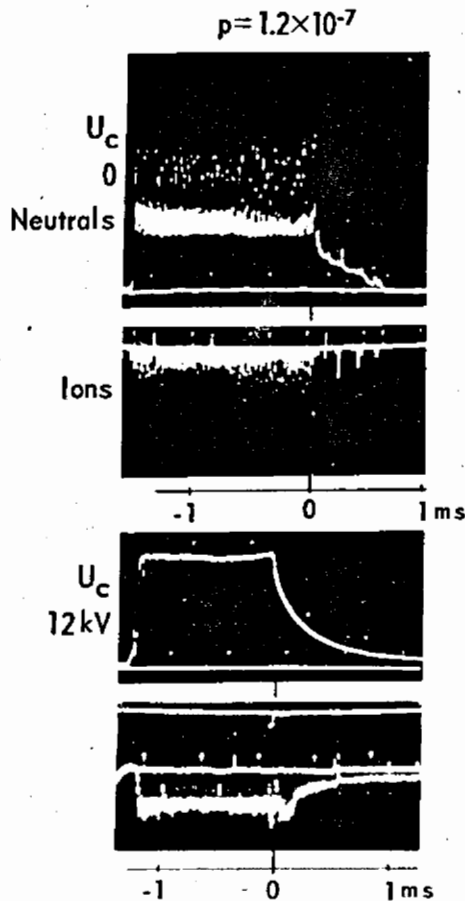


Figure 2. The flux of neutrals from charge exchange and the flux of fast ions onto the walls of the OGRA chamber in the unstabilized ($U_c = 0$) and stabilized ($U_c = 12$ kV) regimes. At $t = 0$ the injection of fast ions is cut off

Figure 3 shows how effectively his system works. In the upper part we see bent unstabilized plasma columns whereas below we see a completely smooth plasma column stabilized by the high-frequency field. It is still too early to say whether this system will be practicable from the point of view of power production in full-scale industrial reactors, but at least the excellent agreement between theory and experiment is gratifying.

In the last few years our attitude towards the problem of instability has undergone a significant upheaval. Until recently experimenters were so frightened by the instabilities predicted by the theoreticians that they avoided producing these forms of instability; all their efforts were directed to suppressing them. The Zavoisky group and the laboratory of the Novosibirsk Institute of Nuclear Physics have now adopted the diametrically opposite approach. They have come round to the idea of deliberately producing intense instabilities for the purpose of heating dense plasmas. Needless to say, not all forms of instability are suitable for this purpose; only those forms can be used which do not result in large amounts of the plasma escaping from the trap. The size of the instability must be small relative to the dimensions of the plasma trap, and the time required to thermalize the unstable oscillations must be small enough so that the plasma does not have time to enter into strong interaction with the walls. It appears that there are instabilities which meet these requirements, e.g. the cluster or "double-flux" instability. The turbulent heating which results therefrom is due to the fact that intense particle fluxes are excited in the plasma; the cluster instability sets up strong plasma oscillations and chaotically distributed plasma waves interacting nonlinearly with each other; and these in turn characterize the particle velocity distribution in the beam and heat up the plasma as a whole. As was pointed out in paper P/297, the effectiveness of plasma heating by this method has been proven experimentally. The figures quoted show that the plasma is heated to hundreds of millions of degrees and that the ions have an extremely high temperature; in Zavoisky's experiments the plasma already has a lifetime of about 0.02 s; and these values do not represent the limit of what is attainable. The prospects for further development of turbulent heating are very good indeed.

In conclusion I should like to say that the many forms of plasma instability predicted by theory, which until recently have been a black cloud on the horizon of thermonuclear research, are now increasingly coming under our control. Effective methods are being worked out for the suppression of the large-scale instabilities which endanger plasma confinement, and the small-scale instabilities are already beginning to serve us usefully as a means of plasma heating.

C. N. WATSON-MUNRO (Australia): As indicated in paper P/881, our main efforts in the field in Australia

lie in basic work on the measurement of plasma properties and the development of diagnostic methods. In addition, we have undertaken a small programme based on ion-cyclotron heating. We hope to get plasmas to temperatures of a few hundred electron volts at fairly low densities, something like 10^{12} or 10^{13} ions/cm³. Our machine also provides for a magnetic compression cycle so that we could introduce the Ioffe bars that have been so successful in other experiments of this kind.

Paper P/297

DISCUSSION

A. SIMON (United States of America): You mention that in the PR-5 apparatus the decay of plasma density in the region of highest density is not exponential. Is there some explanation for this?

L. A. ARTSIMOVICH (USSR): Recent experiments have completely explained the nature of plasma decay at these high densities. It has become clear that in the new method which Ioffe is now using for his experiments there occurs, in the initial stages of

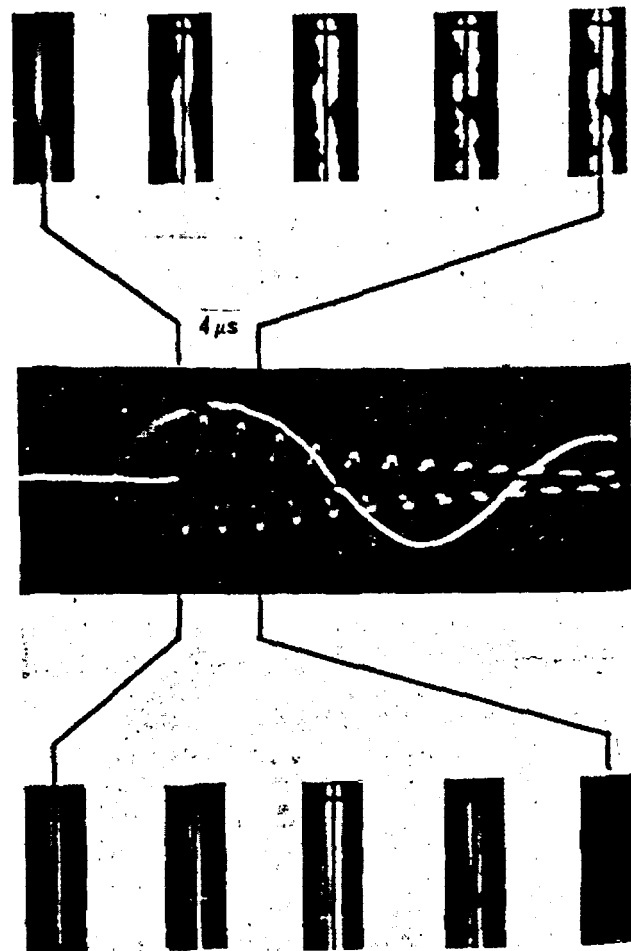


Figure 3. Photographs of a plasma column without the high-frequency stabilizing field (below). The oscilloscope shows the discharge current (low frequency) and the current in the stabilizing bars (high frequency). One of the stabilizing bars casts a longitudinal shadow on all the photographs.

the process, a sharp increase in gas pressure. The drop in density is therefore due to the normal process of charge exchange. This is related in no way to the problem of stability.

R. S. PEASE (United Kingdom): Could you explain how the PR-5 trap is filled with high-density plasma?

L. A. ARTSIMOVICH (USSR): The new method of plasma accumulation in PR-5 makes use of the electrostatic instability of a pinch of cold plasma. The cold plasma, propagating itself along the axis of the magnetic system, is rendered unstable, and this instability produces electric fields which accelerate the ions. This enables us to accumulate a denser plasma than before. The densities obtained with this method are now of the order of 10^{11} ions/cm³; I doubt whether it will yield higher densities, and for that reason other techniques of increasing the density to 10^{12} ions/cm³ are being studied.

R. S. PEASE (United Kingdom): Do you have direct evidence of the electron temperature in the TOKOMAK device?

L. A. ARTSIMOVICH (USSR): The electron temperature in the TOKOMAK device at present attains about 2 million degrees. One index of this is the conductivity of the plasma, although it gives rather too low a value for electron temperature. Secondly, one can measure the so-called diamagnetic effect, from which it is then possible to determine average plasma pressure. Spectroscopic data are in good agreement with the results obtained by these two methods.

Mr. JORDAN (Federal Republic of Germany): The method of turbulent heating described by Mr. Artsimovich hears some similarity to the inductive preheating technique commonly used in theta-pinch experiments. If possible I should like to hear further details of this new method.

L. A. ARTSIMOVICH (USSR): There is one basic difference between turbulent heating and the technique used in theta-pinch systems, namely that the growth rate of the magnetic field is far greater in turbulent heating. In the experiments of Zavoisky at the Institute of Atomic Energy, and those of Nesterikhin at the Novosibirsk Institute of Nuclear Physics, special systems are now used which enable the magnetic field to increase to 10 kilogauss in less than 0.1 μ s. The essential thing here is that the frequency of the electromagnetic pulse must be at a maximum. As a result, a rapid wave passes to the centre causing a sharp drop in the magnetic field. With this drop is associated the formation of an azimuthal flux of fast electrons. This flux is unstable; the energy is quickly dispersed and converted to heat. Thus you can see that this is really a different method, one which makes use of the instability of an azimuthal flux of electrons in a low-density collisionless plasma.

Paper P/195 (presented by H. Roderick)

DISCUSSION

I. N. GOLOVIN (USSR): At the end of Part II of this paper we read that "Burnout and perhaps simultaneous ion heating have been obtained in electron-beam interaction with plasma". Could we have further details as what this means?

H. RODERICK (United States of America): I can only reply that work on the electron-beam interaction with plasma is proceeding very well, although a good many mysterious questions remain to be answered. I. Alexeff and R. V. Neidigh have just prepared a paper on the measurements they have made so far, and I am pleased to hand Mr. Golovin a copy. This is a detailed series of measurements the significance of which, as regards burnout, is not yet entirely clear.

E. PISKAREV (IAEA): Have experimental results already been obtained on the accumulation of electrons in "Astron"? If so, (a) was an E-layer formed, (b) how long did it exist, and (c) was the direction of the magnetic field altered?

H. RODERICK (United States of America): "Astron" has been in operation for approximately 12 hours during the month of August. Electrons have been injected, and preliminary measurements show the lifetime to be rather short. It appears that the electrons are now being held for 50 μ s whereas the anticipated lifetime is 5 s. The reason for this short electron confinement appears to be that the electrons are creating microwave noise; this acts as a klystron, interacting with the electrons and expelling them from the device. The trapping efficiency is about 10% of the initial beam. At present the circulating current from one burst of electrons is about 1000 A. It is hoped, of course, that as the experiment develops, and as we find ways of damping the microwaves produced by the electrons, the lifetime will increase.

L. A. ARTSIMOVICH (USSR): It appears that in the DCX-2 device plasma decay occurs at first very rapidly, after which the smooth exponential decay begins. At what concentration does the change from a rapid to a slow, smooth decay take place?

H. RODERICK (United States of America): The measurements of decay time in DCX-2 are open to some question. The rapid decay is from 2×10^{10} ions/cm³ to half that value, after which the long decay period begins. However, I think more experiments need to be done to determine whether there are in fact two decay periods or just one with a bend in it.

Paper P/882

DISCUSSION

A. N. SEVCHENKO (Byelorussian SSR): In your investigations of plasma spectra (para. 15 of the paper),

did you study the isotropy of the radiation or its dependence on temperature?

A. SCHLÜTER (Federal Republic of Germany): There is no direct connection between the anisotropy of the plasma and the temperature. There is an indirect connection in the following way: in a future fusion reactor, losses of particles through elastic collisions will have to be tolerated to a larger extent than is now possible in the mirror machines for instance, and these additional losses, which will also involve a larger deviation from isotropy, will have to be compensated, in part at least, by a higher temperature.

Paper P/881

There was no separate discussion of this paper.

GENERAL DISCUSSION

A. M. WEINBERG (United States of America): In most of the discussion it has been assumed that the necessary conditions for thermonuclear fusion are a temperature of about 10 keV, a density of 10^{14} - 10^{15} ions/cm³ and a β value, that is, the ratio of plasma pressure to magnetic pressure, of 0.1. Have any of you considered the possibility suggested by Dr. Post at the Salzburg Conference, * namely that it may be possible to produce more energy than is consumed in systems with a far lower β (say $\beta=0.01$) by using superconducting magnets and highly efficient injection?

L. A. ARTSIMOVICH (USSR): It seems to me that the problem of constructing a system which will have a positive energy balance for β values of a few tenths will, in the long run, be solved. However, I do not think that we are ready as yet to discuss in detail the technical aspects of a thermonuclear reactor. There is still a long road ahead of us before we can hope to obtain the parameters which are essential, in principle, for a positive energy balance. The first task, then, is to increase the density of our plasmas and to ensure their stability at these higher densities. At present we have succeeded in achieving stability at densities, roughly speaking, of the order of 10^{11} ions/cm³, by the method of stabilizing or hybrid fields, also called the minimum-B principle. It is hard to say what results other methods will yield, but it seems certain in any case that we can make progress with this method. If we succeed in getting a β of a few tenths, and that is certainly not out of the question with this method, then, obviously, refrigerated conductors or possibly even superconductors, can be used in order to solve the problem.

A. M. WEINBERG (United States of America): I merely want to say to Professor Artsimovich, as

one who believes by instinct that the task of burning rocks is going to be easier than burning the seas, that it might be useful to try to do the simplest and most elementary thing first. It seems to me that if we can get an energy gain at a β of 0.01, and we are not far from that, it would be logical to exploit that advance as soon as possible.

H. RÖDERICK (United States of America): With regard to the experiments on OGRA-1, I notice that the plasma has been stabilized at a density of 10^9 ions/cm³ by the use of electrostatic potentials on the side walls of the device. Could you elaborate on the stabilizing effect?

I. N. GOLOVIN (USSR): We have actually managed to achieve stabilization with electric fields, but only at densities of 10^8 ions/cm³; we have not yet been able to carry out such experiments with denser plasmas. To do so we must perfect our means of evacuation and increase the injection current. We plan to perform such experiments this year.

S. D. WINTER (France): Could Professor Golovin give us a few details on the method of stabilization by high-frequency fields? In particular, I should like to know: (a) the density of the stabilized plasma; (b) the characteristics of the high-frequency field; and (c) the difficulties encountered in coupling the high-frequency generator to the plasma (drift of resonance frequency).

I. N. GOLOVIN (USSR): I am not familiar with the technique used in coupling the generator to the plasma; that is a rather specialized matter. The principle of the method consists in placing linear conductors similar to those used by Ioffe outside the space occupied by the plasma. The high-frequency current is passed through these conductors, thus exerting on the average a radially increasing pressure on the plasma. The frequency selected is such that the period of the high-frequency field is substantially less than the time of flight of the ions from the boundary of the plasma to the walls. In the instant during which the field passes through zero the regions have no time to shift appreciably, so that the plasma is in fact stably contained by the high-frequency field.

T. CONSOLI (France): I should like to mention certain experimental results obtained in France with a device called PLÉIADE, a model of which can be seen at the atomic exhibition. Pléiade is a resonance device in which a stationary high-frequency electromagnetic field is superposed on a decreasing static magnetic field. Placed at the extremities of a bottle-shaped magnetic field, it can act as an accelerator or as a reflector of the plasma beam. The energy of the electrons is essentially transverse, that of the ions axial. Using the device as a continuous particle accelerator we have obtained fluxes of 10^{15} - 10^{18} particles/cm² s, the ions having a maximum parallel

* *Nuclear Fusion*, IAEA, Supplement, Part I, pp. 99-123, Vienna (1962).

energy of 30 keV, with electrons of 50 keV. Using it as a mirror we have observed only some 100 reflections, this rather low number being due to the charge exchange losses brought about by the poor vacuum.

J. B. ADAMS (United Kingdom): I would like to address a question to those who have studied plasma containment in magnetic wells. Can we be sure that the greatly increased containment times observed in these experiments are entirely due to the inherent magnetohydrodynamic stability of a magnetic well and not to other stabilizing effects such as "line-tying"? In all the experiments a great deal of the plasma formed initially is subsequently thrown to the walls of the vessel and hence forms a conducting medium joining the contained plasma with external conductors. We know that such conducting paths from the contained plasma to metal walls will stabilize interchange instabilities in the simple magnetic mirror. Can the same thing be happening in the magnetic well experiments such as Ioffe's and those carried out on DECA II?

M. TROCHERIS (France): I quite agree with Dr. Adams that the cold plasma raises serious problems. In the particular case of DECA II, however, we hope that its role is not terribly important. A long column separates the plasma gun from the experimental chamber and the cold plasma does not arrive in the chamber until the experiment is almost over. Nevertheless, some cold plasma might be present as a result of the cooling of hot plasma on the walls. In future experiments it will certainly be very important to do much more towards eliminating cold plasma; a number of devices for this purpose are already being studied at Fontenay-aux-Roses, and undoubtedly in other laboratories as well.

I think, however, that an increase in lifetime as a function of the quadrupole field is a sure indication of stability. If there were no variation with the quadrupole field nothing whatever would be proved. It is a different matter, however, when there is such a variation: one cannot imagine how the quadrupole field could influence stabilization by cold plasma.

L. A. ARTSIMOVICH (USSR): I should also like to say a word about Dr. Adam's question. We are quite certain that cold plasma can have no such effect in the PR-5 device. Experiments have shown that this effect is associated directly with the stabilizing field, in cases where there is an extremely high vacuum. The cold plasma is maintained only for an extremely short time near the axis of symmetry and then disappears.

H. RODERICK (United States of America): I am inclined to agree with Professor Artsimovich. The ALICE experiments employed a very high initial vacuum (about 2×10^{-9} torr) into which neutral

particles were injected and trapped. I doubt whether much cold plasma could be present in such an experiment, and the dramatic change when the 12-bar Ioffe system was introduced would tend to confirm the fact that this really is a minimum-B stabilization. However, a group at New York University have been making theoretical calculations which tend to show that a plasma can be stabilized by cold plasma very carefully injected outside the hot plasma; moreover, their calculations suggest that this technique may tie in with the minimum-B method.

Sir William PENNEY (Chairman): As Chairman of the session, I am expected now to give a summary of my impressions, but I am sure that all of you will sympathize with me in the difficulty of this task. What is obvious is that we have splendid international collaboration. As regards the scale of the effort in terms of money costs, total annual expenditure around the world on fusion research would appear to-day to be equivalent to about US \$100-million (or roughly the same amount in Soviet roubles).

Since the 1958 Conference we have made a lot of progress, and that progress consists partly in realizing that the scientific problems are much harder than we had thought. Theory has made a most effective contribution, although some of the instabilities predicted by the theorists may not be of much significance. I was certainly interested in the Soviet approach: to create some of these instabilities and then make use of them to heat the plasma. There is nothing like looking for a thing to make it disappear. The different technical questions that have been asked show that there are still uncertainties about the exact interpretation to be placed on some of the measurements and observations, but undoubtedly there have been great improvements in diagnostic techniques. Scientists are much more certain of what they are measuring than they were five years ago, and some of the new techniques interfere less with the plasma than the older methods. I think the laser interferometric method, for example, has great merit and there may well be other applications of lasers.

Just where this is all going to lead is still uncertain. The programme is by now so diverse and yet so specialized that it constitutes a branch of physics which will have difficulty in communicating with other branches. In time it will be simplified and the irrelevancies will disappear, but at the moment the mere mass of material, and all these strange names which each person invents for his own apparatus, require a costly effort of memory. But, as I say, I am sure that all this will become simpler.

Having listened to this session, I should think it fair to say that this field of science is not only interesting and important in its own right but could really lead, in time, to the practical objective which has so frequently been expressed. Clearly, some time—

several years—must pass before we can reliably assess the possibilities. All we can say at present is that scientists should continue with their work and seek the necessary support from their governments because the ultimate goal is so important. The more developed countries must carry the main load, because the work is long and costly in scientists and money. The less-developed countries have more immediate tasks for their scientists and for their funds.

I think those are broad and fair conclusions to be drawn from what has been said. To comment on the technical highlights would, I think, be a little premature. We all need time to study the various papers and hear them discussed by small groups in the laboratories. So, in conclusion, we have reached a very exciting stage which will bring forth important new ideas and results, and I am sure that we can all look forward to continued close and fruitful collaboration.

Compte rendu de la séance E

Fusion nucléaire contrôlée

Président: Sir William Penney (Royaume-Uni)

DISCUSSION DE GROUPE

M. TROCHERIS (France): Je voudrais donner quelques détails sur l'expérience DECA II qui est entreprise à Fontenay-aux-Roses. Le principe de cette expérience, qui consiste en un confinement par des miroirs magnétiques et une stabilisation par champs multipolaires, paraît en effet l'un des plus prometteurs actuellement et porte les espoirs de plusieurs laboratoires.

Dans la machine DECA II, la configuration stable est réalisée par la superposition d'un champ à miroirs magnétiques et d'un champ quadrupolaire. Le champ à miroirs magnétiques est produit par deux bobines de même axe distantes d'environ 50 cm, avec un diamètre intérieur de 20 cm environ. Le champ quadrupolaire est produit par des courants circulant dans 4 barres parallèles à l'axe dans des sens alternés. Le champ magnétique maximal peut atteindre 15 kilogauss au centre et 30 kilogauss aux miroirs.

Le plasma de deutérium n'est pas produit *in situ* dans la chambre d'expérience, mais injecté de l'extérieur sous la forme d'une bouffée rapide produite par un canon à plasma. Après capture entre les miroirs magnétiques, l'énergie moyenne d'un ion du plasma atteint plusieurs centaines d'électron-volts. Le plasma est ensuite porté à une température encore plus élevée et en même temps éloigné des parois par une augmentation lente du champ magnétique ou compression adiabatique.

On a fait de nombreuses mesures sur le plasma ainsi formé. Les principales sont la mesure de la densité des électrons au moyen d'ondes millimétriques et la détection d'atomes neutres rapides formés par échange de charge des ions rapides du plasma sur les atomes lents du gaz neutre résiduel. La décroissance en fonction du temps du signal d'observation des neutres rapides donne une mesure du temps de vie du plasma.

Un avantage très appréciable de la méthode d'injection utilisée dans DECA II est la possibilité de réaliser des plasmas dont on peut faire varier la densité dans un large intervalle (10^{10} à 10^{14} particules/cm³).

On peut résumer très sommairement les expériences réalisées avec DECA II en disant qu'on a étudié la variation du temps de vie du plasma en fonction de deux paramètres qui sont l'intensité du champ quadrupolaire et la densité.

En théorie, si l'on augmente l'intensité du champ quadrupolaire sans changer le champ principal des miroirs, la configuration stable doit être réalisée à partir d'un certain minimum du champ quadrupolaire. Le temps de vie du plasma devrait donc augmenter brusquement quand on franchit cette valeur minimale. C'est bien ce que l'on observe pour les densités les plus faibles (de l'ordre de 10^{10} particules/cm³), le temps de vie passant, par exemple de 20 à 200 μ s. Cette dernière valeur est déterminée par une cause de perte du plasma autre que l'instabilité et qui est l'échange de charge sur le gaz résiduel.

Pour les densités plus élevées, les premiers résultats ont été très décourageants: pour une densité de 10^{11} particules/cm³ la vie ne dépassait pas 70 μ s et pour une densité de 10^{13} ou 10^{14} particules/cm³ le temps de vie n'augmentait plus du tout avec le champ quadrupolaire.

Des résultats tout différents ont été obtenus après avoir ajouté un diaphragme à l'entrée de la chambre pour limiter le diamètre du plasma injecté. Dans ces nouvelles conditions, le temps de vie augmentait en fonction du champ quadrupolaire, en gros de la même façon, quelle que soit la valeur de la densité.

L'analyse des résultats fait penser qu'ils peuvent être expliqués en invoquant seulement les deux causes de

perte du plasma déjà mentionnées, l'instabilité et l'échange de charge sur le gaz neutre. Mais, dans la première série d'expériences sans diaphragme, il faut admettre que la densité du gaz neutre n'est pas simplement celle du gaz résiduel, et qu'elle augmente avec la densité du plasma. Cela est parfaitement explicable en faisant intervenir le rôle des parois. Dans les expériences sans diaphragme, la chambre était trop bien remplie et une partie du plasma n'était pas capturée dans le puits magnétique dont l'extension est limitée. Ce plasma non confiné va rapidement frapper les parois et provoque leur dégazage, ce qui introduit du gaz neutre dans la chambre, en proportion du plasma qui a frappé la paroi.

Il reste, bien entendu, à faire encore de nombreuses expériences, en particulier pour éclaircir et ensuite éliminer ce rôle néfaste des parois. Mais les résultats obtenus, quoique préliminaires, sont déjà très encourageants et apportent une indication expérimentale très nette en faveur de la stabilité des configurations à puits magnétiques.

K. FUSHIMI (Japon): Le professeur Watson-Munro a bien voulu mentionner, dans son mémoire P/881, l'essentiel des travaux japonais sur la fusion et la physique des plasmas. Je peux donc me limiter à la discussion de certains aspects principaux, sans chercher à évaluer l'importance relative des différentes activités.

Les travaux japonais en physique des plasmas découlent, jusqu'à un certain point, d'une assez ancienne tradition de recherche sur les décharges électriques dans les gaz. Cette tradition a donné naissance à la proposition d'une sonde double, suggérée par le professeur Kojima, et, plus particulièrement, à la suggestion du professeur Takayama au sujet d'une sonde à résonance. Les résultats obtenus avec la sonde à résonance ont suscité un vif intérêt, en particulier à l'Université de Stanford et à l'Institut Max Planck, et sont l'objet de nombreuses études. Bien qu'il ait fallu abandonner l'interprétation initiale, selon laquelle le pic du type résonance observé indiquait la fréquence exacte des oscillations du plasma, en raison de la modification due à l'impédance de la gaine, les aspects essentiels de la méthode restent valables, ce qui lui permettra sans doute de devenir un instrument sûr de diagnostic, mais probablement en dehors du domaine de la fusion.

Les résultats de nos recherches conduisent à la conclusion que des plasmas apparemment dans le même état, ayant les mêmes densités et températures, peuvent réagir de différentes façons. Cela a conduit les chercheurs à dire en plaisantant que chaque méthode de diagnostic a son propre plasma, et complique certainement les efforts que nous faisons pour obtenir un tableau cohérent à partir des résultats de différents projets de recherche. Par exemple, le succès avec lequel le professeur Takayama a obtenu un pic de résonance

net était dû essentiellement au fait qu'il utilisait un grand tube de décharge de forme sphérique, avec le système d'électrodes placé de côté, de sorte que seule la partie périphérique du plasma arrivait au centre du tube. De cette façon il évitait les effets de paroi sur le plasma, ainsi que d'autres interférences électriques sur le système d'électrodes. Une partie de notre travail initial à l'Institut de physique du plasma consiste à produire des plasmas dont les paramètres sont définis et connus, et ce but n'est pas encore complètement atteint.

Une seconde partie de l'effort japonais dans le domaine de la fusion doit son origine à l'impulsion donnée par la première et la deuxième conférence de Genève. Le Dr Bhabha déclarait à la première Conférence que l'énergie de fusion pourrait être disponible en moins de vingt ans, et la seconde Conférence a mis brusquement à la disposition de tous les résultats accumulés à la suite d'expériences secrètes effectuées dans les pays les plus avancés en énergie atomique. Les chercheurs compétents venant de disciplines scientifiques voisines, comme la physique des rayons cosmiques et la physique des accélérateurs, ont été attirés par ce domaine nouveau et excitant. La tâche a été plus difficile que prévu, semble-t-il, et de nombreux essais ont montré qu'il était souvent impossible de contrôler les plasmas.

Par exemple, je voudrais citer l'expérience pénible que nous avons eue en construisant l'héliotron, un appareil pour le confinement et le chauffage du plasma dans un champ magnétique ondulé spécial. Des fils enroulés le long des génératrices du tube à décharge toroïdal servaient au chauffage par effet Joule. Après de nombreuses expériences, on a trouvé que ces fils produisaient un champ transversal qui déviait le plasma. Le groupe de recherche en question est en train de construire un second appareil dans lequel on espère que les points faibles du schéma initial seront éliminés. J'ai entendu dire que dans certaines des grandes machines américaines, on avait aussi négligé les équations de Maxwell.

J'ai parlé de deux aspects des recherches japonaises qui ont sans doute leur contrepartie dans d'autres pays. A la suite de ces observations je voudrais parler d'un problème qui devrait pour le moins, nous donner à réfléchir. En 1961, à mi-chemin entre la deuxième et la troisième Conférence de Genève, l'Agence internationale de l'énergie atomique a organisé à Salzbourg une conférence internationale sur la physique des plasmas et la recherche sur la fusion nucléaire contrôlée. La même année, il y a eu une conférence parallèle à Munich, sur les phénomènes d'ionisation dans les gaz. L'Agence a l'intention d'organiser l'année prochaine une nouvelle conférence sur la fusion nucléaire contrôlée, et il y aura aussi une autre conférence sur les phénomènes d'ionisation dans les gaz. Le problème est alors de réaliser une collaboration plus étroite entre ces deux écoles de recherche scientifique.

Pour terminer je voudrais mentionner un second problème. J'ai déjà décrit un cas où le progrès d'un projet expérimental a été ralenti par une erreur assez insignifiante et élémentaire. Il a dû y avoir beaucoup d'erreurs de ce genre dans les pays plus avancés en matière de recherche atomique, et pourtant il n'est pas facile d'en trouver des échos dans la littérature; on entend parler, en fait, seulement à l'occasion d'échanges de personnel de recherche. Le problème consiste donc à trouver le moyen d'échanger plus efficacement les renseignements de ce type.

J. B. ADAMS (Royaume-Uni): Je pense que la façon la plus utile de contribuer à cette discussion est d'exposer les opinions que nous avons à Culham sur certains problèmes spécifiques. Le mémoire P/882 du professeur Schlüter donne naturellement une excellente vue d'ensemble de notre programme.

En 1958, les recherches au Royaume-Uni étaient concentrées principalement sur les expériences de pincement. Notre programme comprend maintenant trois types d'études sur le problème du confinement: des expériences de miroirs magnétiques adiabatiques, à la fois sous forme simple et sous forme de puits magnétique; des expériences utilisant des bouteilles magnétiques comme les thétatrons — c'est-à-dire des expériences sur des plasmas à β élevé (il s'agit dans ces deux premiers cas de systèmes à extrémités ouvertes); et enfin des recherches avec des pièges magnétiques fermés, pour lesquelles nous nous sommes concentrés sur les expériences de pincement et de pincement inversé.

En ce qui concerne les miroirs magnétiques adiabatiques, l'idée des puits magnétiques a constitué sans aucun doute le progrès majeur au cours de la dernière année. Notre contribution, après les expériences originales de Ioffé à l'Institut Kurchatov, a été d'ordre théorique. Nous avons réussi à calculer la stabilité de tels puits, qui sont des systèmes de confinement; et, plus récemment, nous avons trouvé comment calculer ce qu'on appelle la limite β , c'est-à-dire la quantité de plasma que l'on peut introduire dans un tel puits avant que le champ magnétique ne devienne assez déformé pour que l'instabilité d'échange apparaisse à nouveau. Nous avons vérifié l'expérience de Ioffé dans notre laboratoire, et obtenu des résultats très voisins des siens, et nous espérons poursuivre ces expériences, en particulier celles qui concernent la limite β . D'après les remarques du Dr Trocheris sur l'expérience de DECA II, il semble qu'il s'agisse là d'un des problèmes les plus importants.

En ce qui concerne les bouteilles magnétiques, comme les thétatrons, je pense que notre contribution la plus utile concerne la détermination de la position d'équilibre dans de tels appareils. Cela peut sembler un problème mineur, mais c'est un problème qui s'est posé dans un grand nombre de systèmes de confinement du plasma; il n'est pas très utile de discuter des

instabilités quand il n'y a pas d'équilibre. Je crois que cette idée est maintenant généralement acceptée.

Le problème réel que posent les thétatrons — et la cosse-pivot, que constitue un type d'expérience voisin, utilisant essentiellement une bouteille magnétique avec un puits — c'est le taux de perte à partir de ces systèmes. On sait qu'ils produisent des plasmas très chauds et denses. Mais si les pertes ne peuvent pas être limitées, on ne voit pas comment on pourrait utiliser ces systèmes comme réacteurs pratiques. A Culham, nous avons peut-être apporté une contribution utile à la solution de ce problème en essayant de déterminer la largeur de la perte. Nous avons trouvé qu'elle était de l'ordre du double du rayon gyromagnétique de l'ion; et naturellement il faudrait qu'elle soit beaucoup plus petite pour un réacteur, plutôt de l'ordre du rayon gyromagnétique de l'électron. Voici, à mon avis, un type de problème qui deviendra sans doute important au cours de l'année prochaine.

Dans notre étude des pièges magnétiques fermés, nous nous sommes concentrés sur les expériences de pincement inversé. La communication du professeur Schlüter signale notre travail sur l'instabilité de résistivité. La question de la stabilisation par cisaillement a aussi besoin d'être tirée au clair. Je pense que le développement récent le plus intéressant dans les systèmes fermés est la possibilité d'y réaliser une sorte de puits magnétique. Il est théoriquement impossible d'avoir un système fermé avec des champs magnétiques croissant dans toutes les directions à partir du centre du plasma, mais on peut imaginer des valeurs moyennes appropriées du champ magnétique, prises autour du système, comme une intégrale de d/B , ce qui donne une sorte de puits magnétique. De tels systèmes ont été étudiés aux Etats-Unis et donnent une solution de rechange aux systèmes stabilisés par cisaillement.

En terminant, je voudrais insister sur les progrès très importants réalisés depuis 1958 en diagnostic des plasmas. Si nous connaissons mieux maintenant les plasmas chauds et si nous en parlons avec plus de certitude, c'est parce que nous pouvons mieux les mesurer. Ce qui constitue sans doute l'un des plus importants domaines de progrès depuis la dernière conférence.

Enfin, il faut se rappeler dans toutes ces études qu'en étudiant les plasmas nous avons affaire à un état de la matière qui, même s'il nous semble nouveau, est très répandu dans l'univers. A Culham, nous avons des programmes de spectroscopie stellaire, utilisant des fusées stabilisées. La mesure des plasmas cosmiques avec les méthodes de diagnostic mises au point en laboratoire pour l'étude des plasmas de laboratoire représente un problème intéressant. Je crois qu'il faut aussi insister sur le fait que les plasmas peuvent avoir de nombreuses applications en dehors de la fusion nucléaire, et représentent un domaine légitime de recherche, en dehors du but poursuivi.

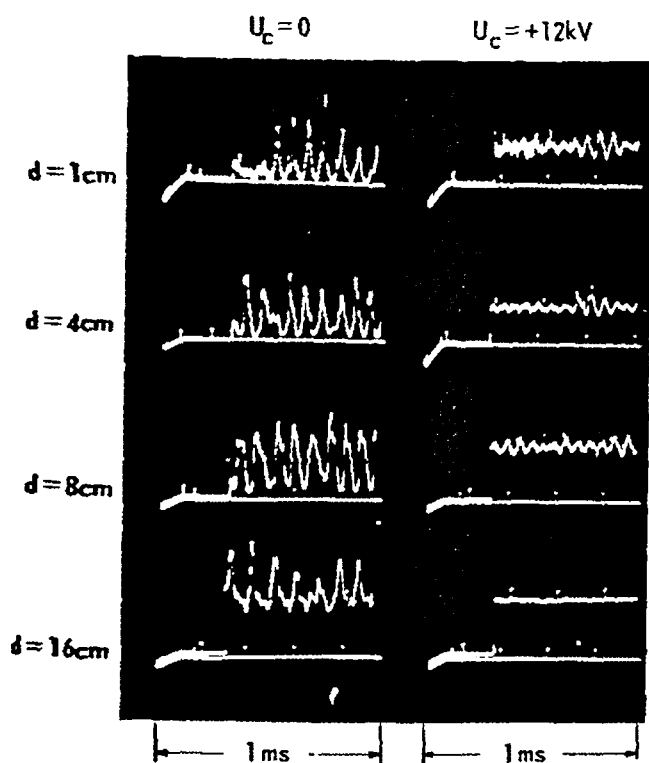


Figure 1. Flux d'ions rapides arrivant sur une sonde couverte d'une feuille métallique, à différentes distances de la paroi de la chambre en régime non stabilisé ($U_c = 0$) et stabilisé ($U_c = +12 \text{ kV}$)

I. N. GOLOVIN (URSS): On a beaucoup parlé du succès de l'élaboration d'une méthode d'élimination de l'instabilité de battement. On comprend facilement l'intérêt des expérimentateurs et des théoriciens pour ce problème, car l'instabilité de battement est l'une des formes les plus graves d'instabilité; si elle se développe, il est hors de question d'accumuler un plasma chaud dense dans un piège magnétique. Les nombreux résultats des études d'instabilité du plasma dans divers laboratoires du monde entier semblent parfois en contradiction à première vue. Cela a suscité des discussions animées, qui ont permis d'avoir une idée beaucoup plus claire depuis quelques années de la nature réelle de l'instabilité du plasma; il faut cependant éclaircir encore des détails, théoriques et expérimentaux. Nous avons entendu parler de suppression efficace de l'instabilité de battement à l'aide d'un accroissement du champ magnétique dans toutes les directions du piège. C'est un résultat considérable. Cependant, je voudrais parler brièvement de deux autres méthodes d'aborder ce problème, car seul l'avenir dira quelle est la méthode la plus pratique pour surmonter l'instabilité.

A la Conférence de Salzbourg en automne 1961, on avait déjà signalé que les dimensions finies des orbites des ions (rayon de Larmor) produisent un effet de stabilisation. L'analyse théorique entreprise ensuite en Union soviétique, et les expériences sur OGRA, ont

montré que le champ électrique radial de la charge d'espace du plasma a — en fonction de sa variation avec le rayon — soit un effet déstabilisant sur un plasma qui était primitivement stable, soit un effet stabilisant sur un plasma initialement instable; c'est-à-dire un champ électrique radial croissant plus vite que la première puissance du rayon a un effet stabilisant, tandis qu'un champ électrique radial croissant plus lentement, ou décroissant, a l'effet inverse sur le plasma. Les expériences réalisées pour le moment l'ont été avec des densités de plasma faibles allant jusqu'à 10^8 ions/cm³, mais ce mécanisme de stabilisation présente l'intérêt d'avoir, selon la théorie, une efficacité indépendante de la densité du plasma.

Nous avons appris comment supprimer l'instabilité en modifiant la distribution radiale de la charge d'espace du plasma, et la figure 1 vous montre l'efficacité de cette méthode. Nous observons la variation du signal de la sonde quand on l'introduit dans le plasma à diverses profondeurs. Sur la gauche se trouve le plasma non stabilisé, sur la droite le plasma stabilisé. Nous voyons qu'à une profondeur de seulement 16 cm à partir de sa surface, le plasma est complètement tranquille, alors que son diamètre est voisin de 1 m.

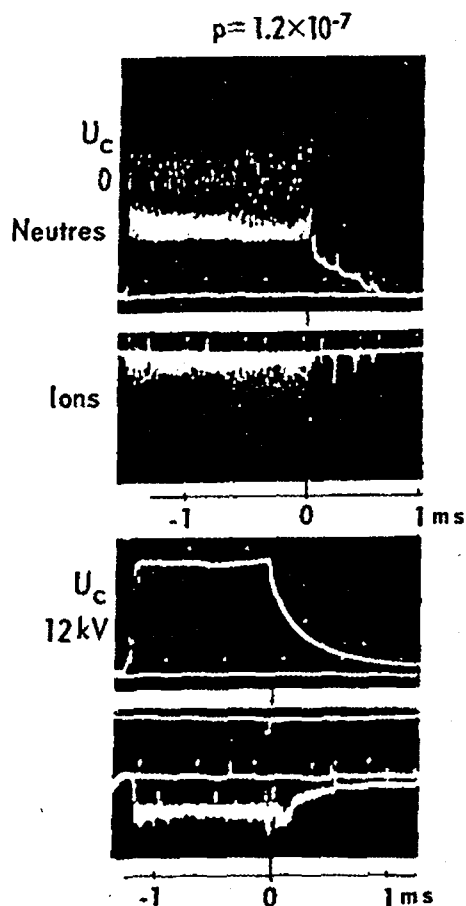


Figure 2. Flux de neutres, dû à l'échange de charge, et flux d'ions rapides vers la paroi de la chambre du dispositif OGRA en régime non stabilisé ($U_c = 0$) et stabilisé ($U_c = 12 \text{ kV}$). Au temps $t = 0$, il y a arrêt de l'injection d'ions rapides

La figure 2 montre comment les flux de neutres s'échappant du plasma dépendent de l'effet de stabilisation. La partie supérieure donne un oscillogramme des flux de neutres en l'absence d'un champ de stabilisation; sur la partie inférieure vous pouvez voir une ligne droite horizontale parfaitement lisse et, après arrêt, une décroissance régulière dans un régime stabilisé. Il reste à réaliser les expériences qui montreront dans quelle mesure ce mécanisme peut garantir la stabilité dans les régimes nécessaires aux réacteurs de fusion pratiques. Dans de tels systèmes, le plasma doit avoir un temps de vie de l'ordre de la seconde, mais dans nos expériences, où le temps de vie est 0,01 s, nous n'avons pu détecter aucun signe d'instabilité en régime stabilisé.

On discute depuis la deuxième Conférence de Genève d'une autre méthode importante de suppression de l'instabilité de battement, méthode qui a été signalée pour la première fois par Post et Rosenbluth aux Etats-Unis. Nous la considérons comme très importante. Elle est basée sur le fait que dans les machines à miroirs, l'instabilité de battement est supprimée si on peut assurer la conduction le long du champ magnétique, du miroir aux extrémités de la chambre. L'analyse de ce mécanisme a été entreprise par le groupe Zavoisky à l'Institut d'énergie atomique Kurchatov. La théorie élaborée par Rudakov indique qu'on a de bonnes chances d'arriver à des systèmes d'importance pratique, à savoir que la conduction jusqu'aux extrémités de la chambre est tout à fait suffisante si on a, derrière les miroirs, un plasma froid dont la densité est 1 000 fois plus faible que celle du plasma chaud confiné. Un plasma froid de ce type se forme inévitablement à cause du gaz résiduel qui entoure le plasma chaud. On a prouvé expérimentalement qu'avec des densités de plasma froid 40 à 80 fois faibles que celle du plasma chaud, le plasma chaud lui-même est stable. Nous espérons que la stabilité sera conservée, comme le prédit la théorie, quand on réduira encore la densité du plasma froid. Il faudra le vérifier expérimentalement en utilisant un vide plus poussé.

Des résultats intéressants sur la suppression de l'instabilité du plasma ont été obtenus par S. M. Osovets et son groupe, également à l'Institut Kurchatov. Afin de stabiliser le plasma, ils utilisent un champ électromagnétique à haute fréquence dont la pression sur le plasma croît radialement.

La figure 3 montre l'efficacité de ce système. Dans la partie supérieure nous voyons des colonnes de plasma non stabilisé, et ces colonnes sont courbées, tandis que dans la partie inférieure nous voyons une colonne entièrement lisse de plasma stabilisé par le champ à haute fréquence. Il est trop tôt pour dire si ce système sera utilisable pour les grands réacteurs industriels producteurs d'énergie, mais l'excellent accord entre la théorie et l'expérience est encourageant.

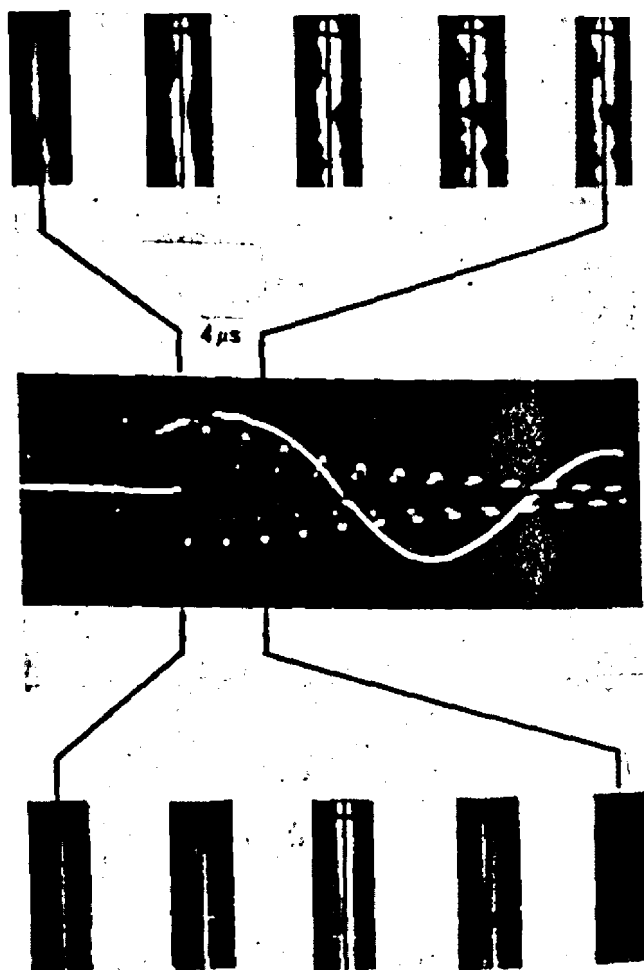


Figure 3. Photographies de la colonne de plasma: en haut — en l'absence du champ stabilisant de haute fréquence, en bas — le champ de haute fréquence étant appliqué. L'oscillogramme donne le courant de décharge (basse fréquence) et le courant dans les barres stabilisatrices (haute fréquence). L'une des barres est la cause de l'ombre longitudinale que l'on voit sur toutes les photographies.

Notre attitude envers les problèmes d'instabilité a évolué de façon significative ces dernières années. Tout récemment encore les expérimentateurs avaient si peur des instabilités prédites par les théoriciens qu'ils évitaient de produire des instabilités; tous leurs efforts tendaient à les supprimer. Le groupe de Zavoisky et le laboratoire de l'Institut de physique nucléaire de Novosibirsk ont maintenant adopté l'attitude diamétralement opposée. Ils ont eu l'idée de produire délibérément des instabilités intenses dans le but de chauffer des plasmas denses. Bien entendu, toutes les formes d'instabilités ne conviennent pas dans ce but; on ne peut utiliser que celles qui n'entraînent pas une perte importante de plasma hors du piège. La taille de l'instabilité doit être faible par rapport aux dimensions du piège à plasma, et le temps nécessaire à thermaliser les oscillations instables doit être assez petit pour que le plasma n'ait pas le temps d'entrer en interaction forte avec les parois. On a constaté qu'il y a des instabilités qui répondent à ces conditions, par exemple l'insta-

bilité en grappe ou en « double flux ». Le chauffage turbulent qui en résulte est dû au fait que des flux intenses de particules sont excités dans le plasma; l'instabilité en grappe provoque des oscillations violentes du plasma et des vagues de plasma distribuées chaotiquement avec des interactions non linéaires; ces dernières à leur tour caractérisent la distribution des vitesses des particules dans la grappe et chauffent l'ensemble du plasma. Comme l'indique le mémoire P/297, on a prouvé expérimentalement l'efficacité de cette méthode pour chauffer le plasma. Les chiffres cités montrent que le plasma est porté à des centaines de millions de degrés et que les ions ont une température extrêmement élevée; dans les expériences de Zavoisky, le plasma a déjà une vie d'environ 0,02 s; et ces valeurs ne représentent pas la limite que l'on peut atteindre. Les chances de développement futur du chauffage turbulent sont certainement très grandes.

En conclusion je voudrais dire que les nombreuses formes d'instabilité du plasma prédites par la théorie, qui représentaient jusqu'à tout récemment un nuage noir à l'horizon de la recherche thermonucléaire, sont maintenant de mieux en mieux contrôlées. On met au point des méthodes efficaces pour supprimer les instabilités de grandes dimensions qui mettent en danger le confinement du plasma, et les instabilités de petites dimensions commencent déjà à nous servir utilement comme moyen de chauffage du plasma.

C. N. WATSON-MUNRO (Australie): Comme l'indique le mémoire P/881, nos principaux efforts dans ce domaine en Australie sont consacrés à des études fondamentales sur la mesure des propriétés du plasma et la mise au point de méthodes de diagnostic. En plus, nous avons entrepris un petit programme basé sur le chauffage cyclotronique d'ions. Nous espérons porter des plasmas à des températures de quelques centaines d'électron-volts à d'assez faibles densités, de l'ordre de 10^{12} ou 10^{13} ions/cm³. Notre machine permet aussi un cycle de compression magnétique, de sorte que nous pourrions utiliser les barres de Ioffé qui se sont révélées si utiles dans d'autres expériences de ce type.

Mémoire P/297

DISCUSSION

A. SIMON (Etats-Unis d'Amérique): Vous mentionnez que dans l'appareil PR-5 la décroissance de la densité du plasma dans la région des plus hautes densités n'est pas exponentielle. Avez-vous une explication pour ce résultat?

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): Des expériences récentes ont complètement expliqué la nature de la décroissance du plasma à ces densités élevées. Il est maintenant clair que dans la nouvelle méthode utilisée par Ioffé pour ses expériences, il se produit, au stade initial du processus, une augmentation brutale de la pression

du gaz. La chute de densité est donc due au processus normal d'échange de charges. Cela n'a rien à voir avec le problème de stabilité.

R. S. PEASE (Royaume-Uni): Pourriez-vous expliquer comment le piège du PR-5 est rempli de plasma à haute densité?

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): La nouvelle méthode d'accumulation du plasma dans PR-5 utilise l'instabilité électrostatique d'un pincement de plasma froid. Le plasma froid, qui se propage le long de l'axe du système magnétique, est rendu instable, et cette instabilité produit des champs électriques qui accélèrent les ions.

Ceci nous permet d'accumuler un plasma plus dense que le plasma initial. Les densités obtenues par cette méthode sont maintenant de l'ordre de 10^{11} ions/cm³; je ne pense pas qu'on obtiendra ainsi des densités plus élevées, et c'est pourquoi nous étudions d'autres techniques pour augmenter les densités jusqu'à 10^{12} ions/cm³.

R. S. PEASE (Royaume-Uni): Avez-vous des preuves directes de la température des électrons dans l'appareil TOKOMAK?

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): La température des électrons dans l'appareil TOKOMAK atteint actuellement environ 2 millions de degrés. L'un des indices en est la conductibilité du plasma, bien qu'elle donne une valeur plutôt faible pour la température des électrons. De plus, on peut mesurer ce qu'on appelle l'effet diamagnétique, d'où l'on peut déduire la pression moyenne du plasma. Les données spectroscopiques sont en bon accord avec les résultats obtenus par ces deux méthodes.

M. JORDAN (République fédérale d'Allemagne): La méthode de chauffage turbulent décrite par M. Artsimovich ressemble quelque peu à la technique de préchauffage par induction couramment utilisée dans les expériences de pincement thêta. Si possible, j'aimerais avoir quelques détails sur cette nouvelle méthode.

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): Il y a une différence fondamentale entre le chauffage turbulent et la technique utilisée dans les systèmes à pincement thêta, c'est que la vitesse de croissance du champ magnétique est beaucoup plus grande dans le chauffage turbulent. Dans les expériences de Zavoisky à l'Institut de l'énergie atomique, et dans celles de Nesterikhin à l'Institut de physique nucléaire de Novosibirsk, on utilise maintenant des systèmes spéciaux qui permettent de porter le champ magnétique à 10 kilogauss en moins de 0,1 μ s. La condition essentielle est que la fréquence de l'impulsion électromagnétique soit à un maximum. A ce moment, une onde rapide se propage vers le centre, provoquant une diminution brutale du champ magnétique. A cette diminution est associée la formation d'un flux azimuthal d'électrons rapides. Ce

flux est instable; l'énergie se disperse rapidement et se transforme en chaleur. Vous voyez donc qu'il s'agit en fait d'une méthode différente, qui utilise l'instabilité d'un flux azimutal d'électrons dans un plasma de faible densité sans collisions.

Mémoire P/195 (présenté par H. Roderick)

DISCUSSION

I. N. GOLOVIN (URSS): A la fin de la partie II de ce mémoire, nous lisons que l'on a obtenu la combustion totale et peut-être en même temps le chauffage d'ions par interaction du faisceau d'électrons et du plasma. Pourrions-nous avoir des détails sur cette déclaration?

H. RODERICK (Etats-Unis d'Amérique): Je peux seulement répondre que les travaux sur les interactions entre les faisceaux d'électrons et les plasmas se poursuivent avec succès, bien qu'il reste un bon nombre de questions mystérieuses. I. Alexeff et R. V. Neidigh viennent de rédiger un article sur les mesures qu'ils ont déjà réalisées, et je serai heureux d'en remettre un exemplaire à M. Golovin. Il s'agit d'une série de mesures détaillées dont la signification, en ce qui concerne la combustion totale, n'est pas encore tout à fait au clair.

E. PISKAREV (AIEA): Avez-vous déjà obtenu des résultats expérimentaux sur l'accumulation d'électrons dans « Astron »? Si oui, a) une couche E s'est-elle formée, b) combien de temps a-t-elle duré, et c) la direction du champ magnétique a-t-elle été modifiée?

H. RODERICK (Etats-Unis d'Amérique): « Astron » a fonctionné une douzaine d'heures pendant le mois d'août. On a injecté des électrons, et les mesures préliminaires montrent que le temps de vie est assez court. Il semble que les électrons sont actuellement conservés pendant 50 μ s alors qu'on espérait une durée de vie de 5 s. La raison de ce confinement de courte durée des électrons semble due au fait que les électrons créent un bruit de fond en micro-ondes; celui-ci joue le rôle d'un klystron, en interaction avec les électrons et expulse ces derniers de l'appareil. L'efficacité du piégeage est de l'ordre de 10% du faisceau initial. Actuellement le courant circulant d'une bouffée d'électrons est d'environ 1 000 A. On espère, naturellement, que le temps de vie croîtra à mesure que l'on poursuivra les expériences et trouvera le moyen d'amortir les micro-ondes produites par les électrons.

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): Il semble que dans l'appareil DCX-2, la décroissance du plasma se produit très rapidement au début et qu'elle devient exponentielle et régulière ensuite. A quelle concentration le changement d'une décroissance rapide à une décroissance lente et régulière a-t-il lieu?

H. RODERICK (Etats-Unis d'Amérique): Les mesures du temps de décroissance dans DCX-2 ne sont pas parfaitement expliquées. La décroissance rapide a lieu de 2×10^{10} ions/cm³ jusqu'à la moitié de cette valeur, et ensuite la période de décroissance lente commence. Je pense cependant qu'il faudra d'autres expériences pour déterminer s'il y a vraiment deux périodes de décroissance ou bien une seule avec une courbure.

Mémoire P/882

DISCUSSION

A. N. SEVCHENKO (RSS de Biélorussie): Dans votre étude des spectres de plasma (paragraphe 15 du mémoire), avez-vous étudié l'isotropie du rayonnement ou sa variation en fonction de la température?

A. SCHLÜTER (République fédérale d'Allemagne): Il n'y a pas de rapport direct entre l'anisotropie du plasma et la température. Il y a un rapport indirect que l'on peut expliquer ainsi: dans un futur réacteur à fusion, il faudra tolérer des pertes de particules par collisions élastiques, supérieures à celles que l'on a maintenant dans les machines à miroirs par exemple, et ces pertes additionnelles, qui entraîneront aussi un écart plus grand de l'isotropie, devront être compensées, en partie tout au moins, par une température plus élevée.

Mémoire P/881

Ce mémoire n'a pas fait l'objet d'une discussion distincte.

DISCUSSION GÉNÉRALE

A. M. WEINBERG (Etats-Unis d'Amérique): Dans la plupart des discussions on a supposé que les conditions nécessaires à la fusion thermonucléaire étaient une température d'environ 10 keV, une densité de 10^{14} - 10^{15} ions/cm³, et une valeur de β , c'est-à-dire du rapport entre la pression du plasma et la pression magnétique, de 0,1. Certains d'entre vous ont-ils envisagé la possibilité, suggérée par le Dr Post à la Conférence de Salzbourg *, qu'il pourrait être possible de produire plus d'énergie qu'on n'en consomme dans des systèmes à β beaucoup plus faible (par exemple $\beta = 0,01$) en utilisant des aimants supraconducteurs et une injection très efficace?

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): Je pense que le problème de la construction d'un système à bilan énergétique positif pour des valeurs de β de quelques dixièmes sera résolu en fin de compte. Cependant, je ne pense pas que nous soyons prêts pour le moment à discuter

* Fusion Nucléaire, AIEA, Supplément, Partie 1, p. 99, Vienne (1962).

en détail les aspects techniques d'un réacteur thermonucléaire. Il nous reste un long chemin à parcourir avant de pouvoir espérer obtenir les paramètres indispensables, en principe, pour un bilan énergétique positif. Notre première tâche est d'augmenter la densité de nos plasmas et d'assurer leur stabilité à ces densités élevées. Pour le moment, nous avons réussi à obtenir la stabilité à des densités, en gros, de l'ordre de 10^{11} ions/cm³, par la méthode des champs stabilisants ou hybrides, aussi appelés le principe de *B* minimum. Il est difficile de prévoir les résultats que l'on obtiendra avec d'autres méthodes, mais il semble certain en tout cas, que nous pouvons faire des progrès avec cette méthode. Si nous réussissons à obtenir un β de quelques dixièmes — et ce n'est certainement pas exclu par cette méthode — il est alors évident que des conducteurs refroidis ou peut-être même des supraconducteurs pourraient être utilisés pour résoudre ce problème.

A. M. WEINBERG (Etats-Unis d'Amérique): Je veux seulement dire au professeur Artsimovich, comme quelqu'un qui croit d'instinct qu'il sera plus simple de brûler les roches que de brûler les océans, qu'il pourrait être utile de faire d'abord le plus simple et le plus élémentaire. Il me semble que si nous pouvons avoir un gain d'énergie avec un β de 0,01, et nous n'en sommes pas loin, il serait logique d'exploiter ce résultat dès que possible.

H. RODERICK (Etats-Unis d'Amérique): A propos des expériences sur OGRA-1, je remarque que le plasma a été stabilisé à une densité de 10^9 ions/cm³ en utilisant des potentiels électrostatiques sur les parois latérales de l'appareil. Pourriez-vous préciser l'effet de stabilisation?

I. N. GOLOVIN (URSS): En fait nous sommes arrivés à obtenir la stabilisation avec des champs électriques, mais seulement à des densités de 10^8 ions/cm³; nous n'avons pas encore réussi de telles expériences avec des plasmas plus denses. Pour y arriver, il nous faut améliorer nos moyens de pompage et augmenter le courant d'injection. Nous pensons faire de telles expériences cette année.

S. D. WINTER (France): Le professeur Golovin pourrait-il nous donner quelques détails sur la méthode de stabilisation par des champs de haute fréquence? J'aimerais connaître en particulier: a) la densité du plasma stabilisé; b) les caractéristiques du champ de haute fréquence; et c) les difficultés rencontrées en couplant le générateur haute fréquence au plasma (glissement de la fréquence de résonance).

I. N. GOLOVIN (URSS): Je ne suis pas très renseigné sur la technique de couplage du générateur au plasma; c'est un domaine assez spécialisé. Le principe de la méthode consiste à placer des conducteurs linéaires, semblables à ceux utilisés par Ioffé, à l'extérieur du volume occupé par le plasma. Le courant à haute fré-

quence passe dans ces conducteurs, en moyenne exerçant ainsi sur le plasma une pression croissant radialement. La fréquence choisie est telle que la période du champ de haute fréquence soit nettement inférieure au temps de vol des ions de la frontière du plasma aux parois. Au moment où le champ passe par zéro, les régions n'ont pas le temps de glisser de façon appréciable, de sorte que le plasma est en fait confiné de façon stable par le champ à haute fréquence.

T. CONSOLI (France): Je voudrais mentionner certains résultats expérimentaux obtenus en France avec un appareil appelé PLÉIADE, dont on peut voir un modèle à l'Exposition atomique, PLÉIADE est une structure résonante dans laquelle un champ électromagnétique stationnaire à haute fréquence est superposé à un champ magnétique statique décroissant. Placée aux extrémités d'un champ magnétique en forme de bouteille ou de cosse, elle peut servir d'accélérateur ou de réflecteur pour le faisceau de plasma. L'énergie des électrons est essentiellement transversale, celle des ions axiale. En utilisant cet appareil comme un accélérateur continu de particules, nous avons obtenu des flux de 10^{15} - 10^{18} particules/cm²s, les ions ayant une énergie parallèle maximale de 30 keV, avec des électrons de 50 keV. En l'utilisant comme un miroir, nous n'avons observé que 100 réflexions, ce chiffre assez faible étant dû aux pertes par échange de charge provoquées par le mauvais vide.

J. B. ADAMS (Royaume-Uni): Je voudrais poser une question à ceux qui ont étudié le confinement du plasma dans des puits magnétiques. Sommes-nous sûrs que les durées de confinement beaucoup plus grandes observées dans ces expériences sont entièrement dues à la stabilité magnétohydrodynamique inhérente d'un puits magnétique, et non pas à d'autres effets stabilisateurs? Dans toutes les expériences, une bonne partie du plasma initialement formé est ensuite rejetée vers les parois du récipient et forme donc un milieu conducteur reliant le plasma confiné à des conducteurs externes. Nous savons que de tels chemins conducteurs allant du plasma confiné au parois métalliques stabilisent les instabilités d'échange dans le miroir magnétique simple. La même chose peut-elle se produire dans les expériences de puits magnétique comme celles de Ioffé et celles qui sont faites sur DECA II?

M. TROCHERIS (France): Je suis tout à fait d'accord avec le Dr Adams que le plasma froid pose de graves problèmes. Dans le cas particulier de DECA II, cependant, nous espérons que son rôle n'est pas très important. Une longue colonne sépare le canon à plasma de la chambre d'expérience, et le plasma froid n'arrive dans la chambre que lorsque l'expérience est presque terminée. Néanmoins, il peut y avoir du plasma froid à la suite du refroidissement du plasma chaud sur les parois. Dans les expériences futures, il sera certainement très important de faire beaucoup plus d'efforts

pour éliminer le plasma froid; divers dispositifs sont actuellement à l'étude dans ce but à Fontenay-aux-Roses, et certainement aussi dans d'autres laboratoires.

Je pense cependant qu'une augmentation du temps de vie en fonction du champ quadrupolaire est une indication sûre de stabilité. S'il n'y avait pas de variation en fonction du champ quadrupolaire, ce résultat ne prouverait rien. Mais s'il y a une variation, on ne voit pas comment le champ quadrupolaire pourrait avoir une influence sur la stabilisation par le plasma froid.

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): Je voudrais aussi dire un mot en réponse à la question du Dr Adams. Nous sommes tout à fait certains que le plasma froid ne peut pas avoir d'effet dans l'appareil PR-5. Les expériences ont montré que cet effet est directement associé au champ stabilisateur, cas où l'on a un vide très poussé. Le plasma froid n'est maintenu qu'un temps excessivement court au voisinage de l'axe de symétrie et disparaît ensuite.

H. RODERICK (Etats-Unis d'Amérique): J'ai tendance à être d'accord avec le professeur Artsimovich. Dans les expériences ALICE on avait initialement un vide très poussé (environ 2×10^{-9} torr) dans lequel des particules neutres étaient injectées et piégées. Je ne crois pas qu'il pouvait y avoir beaucoup de plasma froid dans une telle expérience, et le changement frappant obtenu par introduction du système Ioffé à 12 barres tendrait à confirmer qu'il s'agit bien de stabilisation par B minimal. Cependant un groupe de l'Université de New York a fait des calculs théoriques qui tendent à montrer qu'un plasma peut être stabilisé par du plasma froid injecté avec beaucoup de soin à l'extérieur du plasma chaud; de plus, leurs calculs indiquent que cette technique peut être liée à la méthode de B minimal.

Sir William PENNEY (Président): En tant que Président de la séance, il convient que je résume maintenant mes impressions, mais je suis sûr de votre sympathie en face des difficultés de cette tâche. Ce qui est évident, c'est que nous sommes en face d'une splendide collaboration internationale. En ce qui concerne l'échelle de l'effort en termes budgétaires, les dépenses annuelles totales dans le monde entier pour les recherches consacrées à la fusion semblent aujourd'hui équivalentes à 100 millions de dollars des Etats-Unis environ (ou approximativement le même montant en roubles soviétiques).

Depuis la Conférence de 1958, nous avons fait beaucoup de progrès, et ces progrès consistent en partie à avoir compris que les problèmes scientifiques sont beaucoup plus ardues que nous ne le pensions. La théorie a apporté sa contribution très efficace, bien que

certaines des instabilités prévues par les théoriciens n'aient pas beaucoup d'importance. J'ai été très intéressé par la méthode d'approche soviétique: créer certaines de ces instabilités et les utiliser ensuite pour chauffer le plasma. Il n'y a rien comme chercher une chose pour la voir disparaître. Les différentes questions techniques qui ont été posées montrent qu'il reste encore des incertitudes concernant l'interprétation exacte de certaines mesures et de certaines observations, mais il y a sans aucun doute de grands progrès dans les méthodes de diagnostic. Les chercheurs sont beaucoup plus certains de ce qu'ils mesurent qu'il y a cinq ans, et certaines des nouvelles techniques interfèrent moins avec le plasma que les méthodes plus anciennes. Je pense que la méthode interférométrique au laser, par exemple, est très intéressante, et il y aura sans doute d'autres applications des lasers.

Nous ne savons pas exactement où ces travaux vont nous conduire. Le programme est maintenant si diversifié, et pourtant si spécialisé, qu'il constitue une branche de la physique qui éprouvera des difficultés à communiquer avec les autres branches. A la longue elle se simplifiera et les problèmes inutiles disparaîtront, mais pour le moment la masse même des données, et tous ces noms étranges que chacun invente pour son propre appareil, exigent un gros effort de mémoire. Mais, comme je viens de le dire, je suis sûr que les choses iront en se simplifiant.

Après avoir entendu cette séance, je pense qu'il est correct de dire que ce domaine de la science n'est pas seulement intéressant et important en soi, mais qu'il pourrait vraiment conduire, dans l'avenir, à l'objectif pratique qui a été si souvent cité. Il faut clairement attendre quelque temps, plusieurs années, avant de pouvoir évaluer avec certitude les possibilités. Tout ce que nous pouvons dire pour le moment, c'est que les chercheurs doivent continuer à travailler et doivent demander le soutien nécessaire à leurs gouvernements parce que le but est si important. Les pays les plus développés doivent accomplir le plus gros de la tâche, parce que les travaux sont longs et coûteux en chercheurs et en argent. Les pays moins développés ont des tâches plus urgentes pour leurs chercheurs et pour leurs fonds.

Je pense que telles sont les conclusions générales qu'il faut tirer de ce qui a été dit. Des commentaires sur les données techniques seraient à mon avis quelque peu prématurés. Il nous faut à tous du temps pour étudier les différentes communications et les entendre discuter par de petits groupes dans les laboratoires. Je dirai, en conclusion, que nous avons atteint une étape très intéressante qui conduira à de nouvelles idées et de nouveaux résultats importants, et je suis sûr que nous pouvons tous penser avec espoir à une collaboration étroite, efficace et continue.

Протокол заседания Е

Управляемый ядерный синтез

Председатель: сэр. Уильям Пенни (Соединенное Королевство)

ДИСКУССИЯ

М. ТРОШЕРИ (Франция): Мне хотелось бы сообщить присутствующим здесь некоторые подробности об экспериментах, выполненных на установке DECA-II в Фонтене-о-Роз. Эти эксперименты, основанные на принципе удержания плазмы в ловушке с магнитными пробками и стабилизирующими многополюсными полями, по-видимому, являются сейчас наиболее обещающими. Поэтому на подобные исследования возлагают свои надежды ряд лабораторий.

В установке DECA-II устойчивая конфигурация плазмы получается благодаря наложению квадрупольного поля на поле пробочной геометрии. Поле пробок создается с помощью двух коаксиальных катушек, расположенных друг от друга на расстоянии около 50 см. Внутренний диаметр катушек равняется приблизительно 20 см. Квадрупольное поле создается с помощью четырех стержней, расположенных параллельно оси, причем ток в соседних стержнях течет в противоположных направлениях. Максимальное значение напряженности магнитного поля может достигать 15 кэс в центре и 30 кэс в пробках.

Дейтериевая плазма образуется не непосредственно в камере экспериментальной установки, а инжектируется извне в виде быстрого газа из плазменной пушки. Средняя энергия ионов, захваченных в области между магнитными пробками, составляет несколько сотен электронвольт. Затем температура плазмы возрастает до еще больших величин и в то же время происходит откат плазмы от стенок благодаря медленному нарастанию магнитного поля, или адиабатическому сжатию.

Весьма существенным преимуществом метода инжекции, используемого в установке DECA-II, является возможность создания плазмы, плотность которой можно менять в широких пределах от 10^{10} до 10^{14} частиц/см³.

Очень коротко говоря, в экспериментах на установке DECA-II изучалась зависимость времени жизни плазмы от двух параметров: напряженности квадрупольного поля и плотности. Согласно теории, если напряженность квадрупольного поля возрастает, в то время как основное пробочное поле остается неизменным, при напряженности квадрупольного поля, боль-

шей определенного минимального значения, должна достигаться устойчивая конфигурация. Следовательно, время жизни плазмы должно резко возрастать, как только напряженность квадрупольного поля превысит минимальное значение. Это действительно наблюдается при наименьших значениях плотности (порядка 10^{10} частиц/см³). Время жизни возрастает, например, от 20 до 200 мксек. Это последнее значение времени жизни определяется скорее потерями плазмы, нежели неустойчивостью, а именно перезарядкой на остаточном газе.

При более высоких плотностях наши первоначальные результаты были весьма неутешительными: при плотности 10^{11} частиц/см³ время жизни не превышало 70 мксек, а при плотности 10^{13} или 10^{14} частиц/см³ время жизни совсем не возрастало при использовании квадрупольного поля.

Совершенно иные результаты были получены после того, как на входе камеры была установлена диафрагма, которая ограничивала диаметр плазмы. Время жизни в этом случае увеличивалось в зависимости от величины квадрупольного поля всегда приблизительно одинаковым образом независимо от величины плотности.

Анализ полученных результатов приводит к выводу, что они могут быть объяснены целиком двумя уже упоминавшимися выше причинами потерь плазмы, а именно неустойчивостью и перезарядкой на нейтральном газе. Однако, что касается первой серии экспериментов (без диафрагмы), то легко видеть, что плотность нейтрального газа не равняется соответственно плотности остаточного газа и более того возрастает с увеличением плотности плазмы. Это можно очень легко объяснить, если учесть влияние стенок. В экспериментах без диафрагмы камера была целиком заполнена плазмой и часть этой плазмы недостаточно хорошо захватывалась в магнитной яме, глубина которой была ограниченной. Эта неудерживаемая плазма скоро попадает на стенки, выбивая из них молекулы газа. Таким образом, количество нейтрального газа, попадающего в камеру, оказывается пропорциональным количеству плазмы, попадающей на стенки.

Излишне говорить, что необходимо еще провести очень много экспериментов для выяснения роли и в конечном счете исключения этого

неблагоприятного эффекта, связанного со стенками. Однако результаты, полученные в настоящее время, хотя и носят предварительный характер, являются тем не менее обнадеживающими и представляют собой ясное экспериментальное доказательство в защиту устойчивости конфигурации магнитного поля подобного типа.

К. ФУШИМИ (Япония): Профессор Уотсон-Муиро был настолько любезен, что включил в доклад Р'881 наиболее важные результаты работ по синтезу и физике плазмы, ведущиеся в Японии. Поэтому я могу ограничиться обсуждением нескольких общих вопросов, не пытаясь дать оценку относительной ценности различных работ.

До некоторой степени работы по физике плазмы, ведущиеся в Японии, основаны на довольно старых традициях исследований электрических разрядов в газах. Отсюда возникло предложение о применении двойных зондов, сделанное профессором Коджима, и особенно предложение профессора Такаямы об использовании резонансного зонда. Характеристики резонансного зонда вызвали большой интерес, особенно в Стэнфордском университете и в Институте им. Макса Планка. Возможности применения этого зонда тщательно изучаются. Хотя первоначальная интерпретация наблюдавшегося резонансноподобного пика, как точно соответствующего частоте плазменных колебаний, оказалась неоправданной из-за изменений, связанных с наличием импеданса слоя, окружающего зонд, все же основные свойства метода остаются справедливыми, так что он может в конечном счете стать настоящим диагностическим средством, правда, в области, не связанной с ядерным синтезом.

Результаты наших исследований приводят к заключению, что плазменные сгустки, находящиеся по существу в одном и том же состоянии и имеющие одинаковые плотности и температуры, могут вести себя различным образом. Этот факт дал повод для шуток ученых, что каждому диагностическому методу присуща его собственная плазма и действительно это препятствует нашим усилиям в получении согласованной картины на основе результатов, полученных в различных экспериментах. Например, успех профессора Такаяма, который обнаружил значительный резонансный пик, объясняется тем, что ему удалось сделать большую сферическую разрядную камеру с системой электродов, расположенной со стороны трубки, так что вблизи центра камеры находилась только наружная область плазменного сгустка. Таким образом удалось избежать влияния стенок на плазму и предотвратить электрические возмущения, создаваемые системой электродов. Первая часть нашей первоначальной задачи, стоящей перед Институтом физики плазмы, заключалась в создании плазменных сгустков с определенными и известными пара-

метрами. До настоящего времени эта цель полностью еще не достигнута.

Проведение второй части исследований в области ядерного синтеза, над которой трудятся японские ученые, было стимулировано Первой и Второй Женевскими конференциями. Доктор Хони Баба заявил на Второй Женевской конференции, что практическое использование энергии ядерного синтеза может быть осуществлено в течение ближайших двадцати лет. Вторая конференция сразу сделала доступным для широкого круга ученых большое количество сведений, накопленных в результате секретных экспериментов, которые велись в странах, широко развивавших атомную науку. Способные ученые из смежных областей физики, таких, как физика космических лучей и физика ускорителей, были привлечены к работе в этой новой и соперничающей области. Задача оказалась гораздо более трудной, чем, по-видимому, ожидалось, и после серии экспериментов было обнаружено, что плазма очень часто оказывается неуправляемой.

Например, можно упомянуть о горьком опыте сооружения установки «Гелиотрон» для удержания и нагрева плазмы с применением специального гофрированного магнитного поля. Для Джоулева нагрева используется несколько обмоток, расположенных вдоль тороидальной разрядной трубки. После проведения многих экспериментов было обнаружено, что эти обмотки создают поперечное магнитное поле, которое приводит к смещению плазмы к стенкам. Сейчас рассматривается вопрос о сооружении второй установки, в которой, как надеются, будут устранены недостатки, имеющиеся в первой установке. Я слышал также, что в некоторых больших американских установках имеет место подобное невыполнение уравнений Максвелла.

Я коснулся двух аспектов работ, ведущихся в Японии, которые, возможно, ведутся и в других странах. В связи с этим мне хотелось коснуться проблемы, которая по крайней мере могла бы дать нам пищу для размышлений. В 1961 г. на полпути между Первой и Второй Женевскими конференциями МАГАТЭ провело Международную конференцию по физике плазмы и управляемому ядерному синтезу в Зальцбурге. В том же году состоялась параллельная конференция по ионизационным явлениям в газах в Мюнхене. В будущем году МАГАТЭ намеревается провести следующую конференцию по управляемому ядерному синтезу и, кроме того, состоится очередная конференция по ионизационным явлениям в газах. Проблема, следовательно, заключается в том, чтобы связь между этими двумя ветвями научных исследований была более тесной.

В заключение мне хотелось бы упомянуть о второй проблеме. Я уже упоминал один случай когда развитие экспериментальных работ было

замедлено из-за довольно тривиальной и элементарной ошибки. Таких ошибок может быть очень много и в странах, где сильно развиты исследования по атомной науке, так как очень трудно найти данные по этому поводу в литературе. Об этом фактически можно узнать только при личном общении. Проблема заключается в том, чтобы каким-то образом способствовать полному обмену информацией подобного рода.

Дж. Б. АДАМС (Соединенное Королевство): Возможно, что наилучшим вкладом в обсуждение, который я могу сделать, будет попытка дать пояснения к различным специфическим проблемам так, как это мы понимаем в Калхеме. Наша программа исследований в целом была изложена весьма точно профессором Шлютером в докладе P/882.

В 1958 г. работы по ядерному синтезу в Великобритании велись только по самосжатым разрядам. В настоящее время наша программа развивается по трем направлениям исследования проблемы удержания плазмы: адиабатические магнитные ловушки с пробками как обычной формы, так и с комбинированными полями (магнитная яма); магнитные ловушки типа тетатрона, то есть системы с большой величиной (оба эти направления относятся к системам с незамкнутыми концами); наконец, замкнутые магнитные ловушки, в основном с простым и обращенным самосжатыми разрядами.

Что касается адиабатических ловушек с магнитными пробками, то несомненно самым важным результатом за последний год является появление идеи о магнитной яме. Наш вклад в этом направлении, после того как первоначальные эксперименты были осуществлены Иоффе в Институте атомной энергии им. И. В. Курчатова, заключался в развитии теории. Нам удалось сделать расчеты по устойчивости магнитных конфигураций типа ямы, которые используются для удержания плазмы. Совсем недавно был найден метод расчета так называемого предельного значения B , то есть количества плазмы, которое может быть введено в область удержания, а именно в такую магнитную яму, прежде чем магнитное поле будет возмущено настолько, что снова возникнет перестановочная неустойчивость. Мы проверили опыты Иоффе у нас в лаборатории и получили весьма сходные результаты. Мы надеемся продолжить эти эксперименты, в частности для выяснения вопросов, касающихся предельных величин B . Судя по замечаниям доктора Трошери относительно экспериментов на установке DECA-II, очевидно, эта проблема является одной из самых важных.

Если рассматривать магнитные ловушки типа тетатрона, то думаю, что наиболее полезным вкладом из наших работ является нахождение равновесного состояния плазмы в подобных установках. Это может показаться тривиальной проблемой, однако в действительности эта про-

блема имеет место в случае многих систем. Вообще мало пользы от рассуждений относительно неустойчивостей в системах, где нет равновесия. Думаю, что теперь это осознано повсюду.

Настоящая проблема для тетатронов, а также для весьма аналогичных установок с остроконечной геометрией поля, в которых по существу используется конфигурация магнитного поля типа ловушки с ямой, заключается в том, какова же скорость утечки плазмы через магнитную щель из таких систем. Точно установлено, что в таких системах создается очень горячая и плотная плазма. Однако до тех пор пока не будут предотвращены эти утечки, трудно представить себе, каким образом можно их использовать в качестве основы термоядерного реактора с положительным выходом энергии. В Калхеме были проведены работы, которые возможно, имеют значение для решения этой проблемы определения ширины щели. Было найдено, что она по порядку величины равняется двум ионным ларморовским радиусам. Если же рассматривать термоядерный реактор, то ширина щели должна была бы быть гораздо меньше, например, порядка электронного ларморовского радиуса. Это, как мне кажется, проблема такого характера, что она, вероятно, приобретет очень важное значение в ближайшее время. Работы по замкнутым магнитным ловушкам были сосредоточены на исследованиях обращенного самосжатого разряда. В докладе профессора Шлютера упоминаются наши исследования неустойчивости, обусловленной конечным сопротивлением. Вопрос о возможности стабилизации неустойчивости плазмы с помощью перекрещенных полей также еще требует подтверждения. По-моему, наиболее интересный из недавно полученных результатов, касающихся замкнутых систем, — это возможность создания в них в некотором роде магнитной ямы. С точки зрения теории нельзя иметь замкнутую систему с магнитными полями, нарастающими во всех направлениях от центра области, занимаемой плазмой, однако оказывается возможным говорить о соответствующей усредненной величине магнитного поля по всей системе, такой, как интеграл величины dl/B , которая может соответствовать одному из типов магнитной ямы. Такие системы исследовались в США и были предложены в качестве альтернативы со стабилизацией перекрещенными полями.

В заключение я хочу подчеркнуть, что с 1958 г. очень важные успехи были достигнуты в области диагностики плазмы. Если мы знаем сейчас гораздо больше о свойствах горячей плазмы и говорим о них с большей убедительностью, то этим мы обязаны тому, что мы можем лучше измерять параметры плазмы. Вероятно, это одна из наиболее важных областей, где достигнут прогресс с момента проведения последней конференции.

Наконец, следует иметь в виду, что при исследовании плазмы мы имеем дело с состоянием материи, которое хотя и ново для нас, но очень распространено во вселенной. В Калхеме ведутся работы по спектроскопии звезд с использованием стабилизированных ракет. Это очень интересная проблема: измерение параметров космической плазмы с помощью диагностических приборов, созданных в лаборатории для исследования лабораторной плазмы. Я думаю, следует также подчеркнуть, что вещество в плазменном состоянии может успешно использоваться во многих областях, помимо ядерного синтеза, и именно поэтому вполне правильно вести исследования свойств плазмы независимо от конечной цели.

И. И. ГОЛОВИН (СССР): Здесь очень много говорилось об успешном развитии одного частного метода подавления желобковой неустойчивости. Нетрудно понять огромный интерес экспериментаторов и теоретиков к этой проблеме, потому что желобковая неустойчивость действительно является наиболее серьезной из всех известных видов неустойчивости. Если она будет подавлена, то возможность накопления плотной горячей плазмы в магнитной ловушке не вызывает сомнений. Многие результаты исследований по устойчивости плазмы, полученные в различных лабораториях мира, часто кажутся на первый взгляд противоречащими друг другу. Это послужило поводом для оживленных дискуссий, в результате которых истинная картина неустойчивости плазмы за последние несколько лет стала намного яснее. Однако необходимо дальнейшее выяснение деталей как в теории, так и в области экспериментов. Мы слышали об эффективном подавлении желобковой неустойчивости с помощью магнитных полей, нарастающих в радиальном направлении. Это большое достижение. Тем не менее я хотел бы коротко остановиться на двух других методах решения этой проблемы, так как только будущее покажет, какой из методов подавления неустойчивости является наиболее практичным.

На Зальцбургской конференции осенью 1961 г. было отмечено, что конечная величина ларморовского радиуса приводит к стабилизации плазмы. Теоретический анализ (выполненный затем в Советском Союзе) и эксперименты на установке «Огра» показали, что радиальное электрическое поле пространственного заряда плазмы в зависимости от того, как оно меняется вдоль радиуса, может приводить либо к дестабилизации плазмы, которая была до этого устойчивой, либо к стабилизации плазмы, если она до этого была неустойчивой. Иначе говоря, радиальное электрическое поле, нарастающее быстрее, чем первая степень радиуса, приводит к стабилизации плазмы, тогда как электрическое поле, нарастающее медленнее, или уменьшающееся поле приводит к дестабилизации плазмы. В экспериментах, выполненных к на-

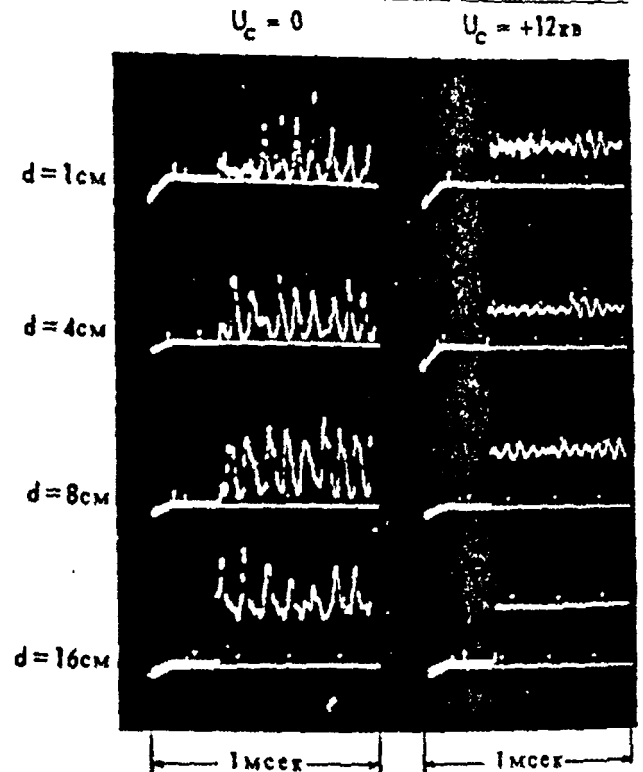


Рис. 1. Поток быстрых ионов на зонд, закрытый фольгой, на различных расстояниях от стенки камеры в нестабилизированном ($U_c = 0$) и стабилизированном ($U_c = +12$ кВ) режимах

стоящему времени, плотность плазмы была мала и не превышала 10^8 ионов/см³, однако наиболее заманчивое свойство механизма такой стабилизации заключается в том, что согласно выводам теории, эффективность этого механизма не зависит от величины плотности плазмы.

Мы изучали механизм подавления неустойчивости путем изменения радиального распределения пространственного заряда плазмы. Из рис. 1 можно видеть, насколько эффективным был этот метод. На рисунке показано, как меняется сигнал от зонда, когда он погружается в плазму на разную глубину. Слева расположены кривые для случая нестабилизированной плазмы, справа — для стабилизированной. Мы видим, что плазма становится совершенно спокойной только на расстоянии 16 см от ее поверхности, хотя диаметр плазмы равняется приблизительно 1 м.

На рис. 2 показана зависимость потока нейтральных атомов, вылетающих из плазмы, от эффекта стабилизации. Вверху приведена осциллограмма потока атомов, когда стабилизирующее поле отсутствует. На нижней диаграмме видна совершенно гладкая прямая горизонтальная линия, а после выключения источника — плавное уменьшение (в режиме, когда плазма стабилизирована). Однако еще необходимо провести эксперименты, на основании которых можно было бы судить, насколько этот

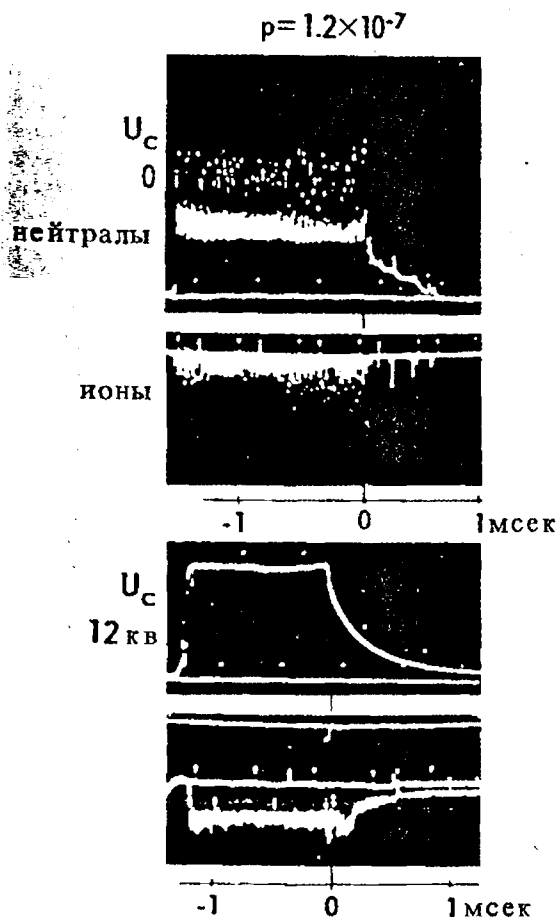


Рис. 2. Поток нейтралов от перезарядки и поток быстрых ионов на стенку камеры „Огры“ в нестабилизированном ($U_c = 0$) и стабилизированном ($U_c = 12$ кв) режимах. В момент времени $t=0$ происходит выключение инжекции быстрых ионов

механизм будет гарантировать устойчивость систем с параметрами, требуемыми для термоядерного реактора с положительным выходом энергии. Для таких систем время жизни плазмы должно быть порядка секунды, но в наших экспериментах, где время жизни составляло 0,01 сек, мы были не в состоянии заметить какие-либо признаки неустойчивости в режиме, когда плазма была стабилизирована.

Другой метод подавления неустойчивости обсуждается еще со времени Второй Женевской конференции. Это метод, на который впервые обратили внимание Пост и Розенблют в США. Мы считаем его чрезвычайно важным. Он основан на том, что в ловушках с магнитными пробками желобковая неустойчивость подавляется, если обеспечить проводимость вдоль силовых линий магнитного поля от пробки к концу камеры. Анализ этого механизма был выполнен группой Завойского в Институте атомной энергии им. И. В. Курчатова. Из теории, развитой Рудаковым, следует, что существуют благоприятные условия для создания систем, имеющих

практическое значение: в частности, проводимость к концам камеры оказывается вполне достаточной, если за пробками имеется холодная плазма с плотностью, в 1000 раз меньшей, чем плотность горячей удерживаемой плазмы. Холодная плазма подобного рода неизбежно образуется из-за наличия остаточного газа, окружающего горячую плазму. Экспериментально было показано, что при плотностях холодной плазмы в 40—80 раз меньше плотности горячей плазмы последняя оказывается устойчивой. Мы надеемся, что устойчивость сохранится, как это предсказывает теория, и при дальнейшем уменьшении плотности холодной плазмы. Это будет проверено экспериментально путем повышения вакуума.

Интересные результаты по подавлению неустойчивости плазмы были получены С. М. Осовцом и его группой также в Институте атомной энергии им. И. В. Курчатова. Для стабилизации

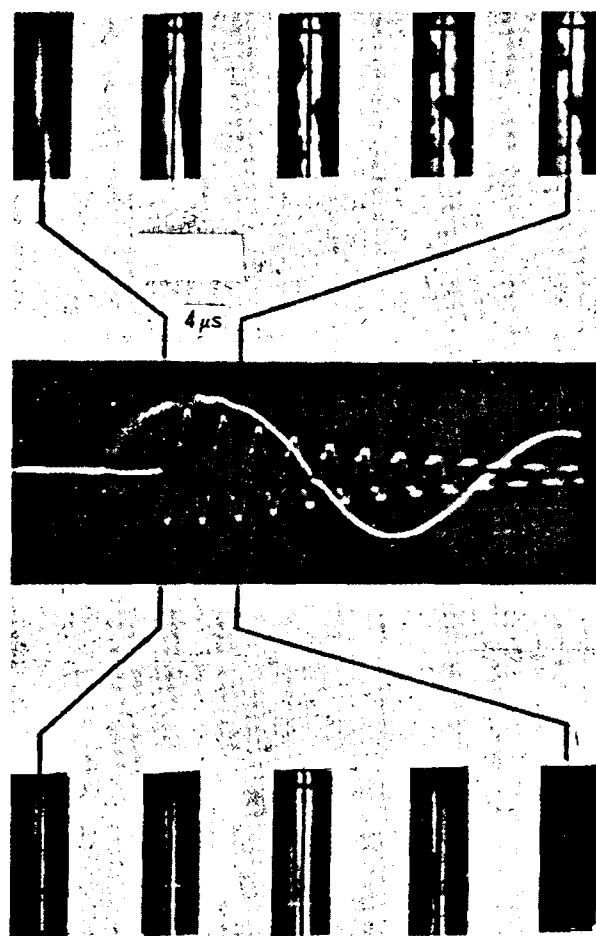


Рис. 3. Фотографии столба плазмы без стабилизирующего высокочастотного поля (наверху) и со включенным высокочастотным полем (внизу). На осциллограмме показаны: ток разряда (низкая частота) и ток в стабилизирующих стержнях (высокая частота). Один из стабилизирующих стержней дает продольную тень на всех фотографиях

плазмы использовалось высокочастотное электромагнитное поле, давление которого на плазму возрастает в радиальном направлении. Из рис. 3 можно видеть, насколько эффективна такая система. В верхней части рисунка показан изогнутый нестабилизированный плазменный шнур, тогда как ниже показан совершенно гладкий плазменный шнур, стабилизированный высокочастотным полем. Еще рано говорить, будет ли иметь такая система практическое значение с точки зрения получения энергии в промышленном масштабе, однако по крайней мере вызывает удовлетворение блестящее согласие между теорией и экспериментом.

За последние несколько лет наше отношение к проблеме неустойчивости претерпело существенные изменения. До недавнего времени экспериментаторы были настолько напуганы неустойчивостями, которые были предсказаны теоретиками, что они старались избегать создавать также неустойчивости. Все усилия экспериментаторов были направлены на подавление этих неустойчивостей. Группа Завойского и лаборатория Института ядерной физики в г. Новосибирске выбрала сейчас диаметрально противоположный путь. Они выдвинули идею о специальном возбуждении интенсивных неустойчивостей для нагрева плазмы. Наличие говорить, что не все типы неустойчивостей пригодны для этой цели. Возможно использование только таких типов, которые не приводят к уходу из ловушки большого количества плазмы. Размеры неустойчивости должны быть малы по сравнению с размерами ловушки, а время, необходимое для термализации неустойчивых колебаний, должно быть достаточно малым, так чтобы плазма за это время не могла вступить в сильное взаимодействие со стенками. Кажется, что существуют неустойчивости, которые удовлетворяют этим условиям, например пучковая или «двухпотоковая» неустойчивость. Турбулентный нагрев, вытекающий, отсюда, обусловлен тем, что в плазме возбуждаются интенсивные потоки частиц. Пучковая неустойчивость приводит к появлению сильных плазменных колебаний, а затем происходит нелинейное взаимодействие хаотически распределенных плазменных волн, которое в свою очередь вызывает хаотизацию распределения частиц пучка по скоростям и нагрев плазмы как целого. Как было отмечено в докладе P/297, эффективность этого метода нагрева доказана экспериментально. Приведенные в докладе рисунки показывают, что плазма нагревается до сотен миллионов градусов и что ионы имеют чрезвычайно высокую температуру. В экспериментах Завойского время жизни плазмы уже составляет 0,02 сек и это не является пределом, который может быть достигнут. Возможности дальнейшего развития турбулентного нагрева не вызывают сомнений.

В заключение я хочу сказать, что многие из типов неустойчивостей плазмы, предсказанных

теорией и которые до недавнего времени являлись черным облаком на горизонте термоядерных исследований в настоящее время все больше поддаются нашему контролю. Для подавления крупномасштабных неустойчивостей, которые подвергали опасности удержание плазмы, разработаны эффективные методы, а мелкомасштабные неустойчивости уже начинают использоваться как полезное средство для нагрева плазмы.

К. Н. УОТСОН-МУНРО (Австралия): Как отмечалось в докладе P/881, основные усилия австралийских ученых в этой области направлены на изучение общих свойств плазмы и разработку методов диагностики. Кроме того, имеется небольшая программа по исследованию ионного циклотронного нагрева. Мы надеемся получить плазму с электронной температурой в несколько сотен электронвольт при сравнительно небольших плотностях, что-нибудь порядка 10^{12} или 10^{13} ионов/см³. Наша установка рассчитана на магнитное сжатие, так же как и на использование стержней Иоффе, которые так успешно применялись в других экспериментах подобного типа.

Доклад P/297

ДИСКУССИЯ

А. САЙМОН (США): Вы говорили о том, что в установке ПР-5 спад плотности плазмы для случая больших плотностей не является экспоненциальным. Имеется ли какое-нибудь объяснение этому?

Л. А. АРЦИМОВИЧ (СССР): Последние эксперименты полностью объясняют природу спада плазмы для случая таких больших плотностей. Теперь стало ясно, что при новом методе инжекции, который сейчас применяется на установке Иоффе, на начальной стадии процесса имеет место резкое увеличение давления газа. Следовательно, спад плотности обусловлен нормальным процессом перезарядки. Это никоим образом не связано с проблемой устойчивости.

Р. С. ПИЗ (Соединенное Королевство): Не могли бы Вы пояснить, как в установке ПР-5 происходит заполнение камеры плазмой с большой плотностью?

Л. А. АРЦИМОВИЧ (СССР): Новый метод накопления плазмы в установке ПР-5 основан на использовании электростатической неустойчивости самосжатого разряда с холодной плазмой. Холодная плазма, распространяясь вдоль оси магнитной системы, становится неустойчивой и эта неустойчивость создает электрические поля, которые ускоряют ионы. Это позволило нам накопить более плотную плазму, чем это было ранее. Плотность плазмы, полученная таким методом, сейчас составляет порядка

10^{11} ионов/см³. Я сомневаюсь, можно ли будет получить более высокие значения плотности и поэтому для повышения плотности до 10^{12} ионов/см³ будет использоваться другой метод.

Р. С. ПИЗ (Соединенное Королевство): Есть ли прямые доказательства значения электронной температуры на установке «Токамак»?

Л. А. АРЦИМОВИЧ (СССР): В настоящее время электронная температура на установке «Токамак» достигает приблизительно двух миллионов градусов. Одним из свидетельств этого является проводимость плазмы, хотя это дает более низкие значения электронной температуры. Во-вторых, можно измерить так называемый диамагнитный эффект, по которому затем можно определить среднее значение давления плазмы. Спектроскопические измерения находятся в хорошем согласии с результатами, полученными с помощью этих двух методов.

ИОРДАН (ФРГ): Метод турбулентного нагрева, описанный Арцимовичем, выглядит весьма похожим на метод индуктивного предварительного нагрева, обычно используемого в экспериментах по тета-пинчам. Если можно, то мне бы хотелось услышать дальнейшие подробности об этом новом методе.

Л. А. АРЦИМОВИЧ (СССР): Между турбулентным нагревом и методом, используемым в системах с тета-пинчами, имеется одно главное различие, а именно, скорость нарастания магнитного поля в случае турбулентного нагрева намного больше. В экспериментах Завойского (Институт атомной энергии) и Нестерихина (Новосибирский институт ядерной физики) используются специальные системы, позволяющие наращивать магнитное поле до напряженности 10 кГс менее чем за 0,1 мксек. Существенным здесь является то, что частота электромагнитного импульса должна быть максимальной. В результате возникает быстрая волна, распространяющаяся к центру и вызывающая резкий спад магнитного поля. С этим спадом связано образование азимутального потока быстрых электронов. Этот поток неустойчив. Энергия быстро рассеивается и преобразуется в тепло. Таким образом можно видеть, что это действительно иной метод, в котором используется неустойчивость азимутального потока электронов в бесстолкновительной плазме с малой плотностью.

Доклад P/195 (представил Родерик)

ДИСКУССИЯ

И. Н. ГОЛОВИН (СССР): В конце второй части этого доклада можно прочесть фразу что «при взаимодействии электронного пучка с плазмой было достигнуто выгорание и, возмож-

но, одновременный нагрев ионов». Не могли бы Вы более подробно пояснить, что это означает?

Х. РОДЕРИК (США): Эта работа выполнена Снеллом и др., и от их имени я могу только сообщить, что работа по взаимодействию пучка электронов с плазмой развивается очень хорошо, хотя довольно много вопросов пока остаются без ответа. И. Алексеев и Р. В. Нейдиг сейчас подготовили статью по выполненным до настоящего времени измерениям, и мне будет приятно вручить ее экземпляр доктору Головину. Была проведена серия подробных измерений, но их значение для проблемы выгорания пока еще не ясно.

Е. В. ПИСКАРЕВ (МАГАТЭ): Получены ли экспериментальные результаты по накоплению электронов в установке «Астрон»? Если да, то а) удалось ли создать E-слой, б) как долго он существовал и с) менялось ли направление магнитного поля?

Х. РОДЕРИК (США): Установка «Астрон» работала в августе приблизительно 12 ч. Осуществлена инъекция электронов, и предварительные измерения показали, что время жизни довольно короткое. По-видимому, сейчас электроны удерживаются в течение 50 мксек, тогда как ожидаемое время жизни должно составлять 5 сек.

Причиной такого малого времени удержания электронов, по-видимому, может быть возбуждение электронами микроволновых шумов. Эти шумы, взаимодействуя с электронами (аналогично клистронному эффекту), приводят к выбросу электронов из установки. Коэффициент захвата составляет приблизительно 10% от величины начального пучка. В настоящее время циркулирующий ток от одного сгустка электронов составляет приблизительно 1000 а. Конечно, надеются, что в дальнейшем, когда будут найдены пути подавления микроволнового излучения электронов, время жизни будет увеличено.

Л. А. АРЦИМОВИЧ (СССР): По-видимому, в установке DCX-2 плазма распадается сначала очень быстро, а затем начинается плавное экспоненциальное убывание плотности плазмы. При какой величине плотности наблюдается этот переход от быстрого к медленному, плавному спаду плотности?

Х. РОДЕРИК (США): Измерения времени распада на установке DCX-2 остаются в некотором роде под вопросом. Быстрый спад происходит начиная от плотности $2 \cdot 10^{10}$ ионов/см³ до значения, равного половине от начального, после чего начинается длительный период спада плотности. Однако я думаю, что необходимо провести еще дополнительные измерения, чтобы определить, действительно ли имеется два периода распада плазмы или только один с перегибом.

Доклад P/882

ДИСКУССИЯ

А. Н. ШЕВЧЕНКО (БССР): Изучалась ли изотропия излучения или ее зависимость от температуры в Ваших исследованиях спектра плазмы (пункт 15 доклада)?

А. ШЛЮТЕР (ФРГ): Прямая связь между анизотропией плазмы и температурой отсутствует. Существует следующая косвенная зависимость: в будущем термоядерном реакторе потери частиц из-за упругих столкновений должны быть более опасными, чем это имеет место, например, сейчас в ловушках с магнитными пробками, и поэтому дополнительные потери, которые будут, конечно, приводить к большему отклонению от изотропии, должны быть компенсированы, по крайней мере, частично благодаря более высокой температуре.

Доклад P/881

По этому докладу дискуссии не было

ОБЩАЯ ДИСКУССИЯ

А. М. УЭЙНБЕРГ (США): Большинство из выступавших исходили из предположения, что необходимыми условиями для осуществления термоядерного синтеза являются наличие температуры приблизительно в 10 кэв, плотности 10^{14} — 10^{15} ионов/см³ и значения величины β , то есть отношения давления плазмы к магнитному давлению, порядка 0,1. Рассматривал ли кто-нибудь из присутствующих возможность осуществления предложения д-ра Поста, сделанного на Зальцбургской конференции*, а именно, что при использовании сверхпроводящих обмоток и весьма эффективной инжекции можно будет вырабатывать энергии больше, чем затрачивается в системах с гораздо меньшими величинами (скажем, $\beta = 0,01$)?

Л. А. АРЦИМОВИЧ (СССР): Мне кажется, что проблема создания систем с положительным балансом энергии в случае величин β порядка нескольких десятых будет решена, хотя и очень не скоро. Однако я не думаю, что мы уже в состоянии подробно обсуждать технические аспекты термоядерного реактора. Предстоит пройти еще долгий путь до того, как, мы надеемся, будут получены параметры, которые в принципе окажутся достаточными для обеспечения положительного энергетического баланса. Поэтому первой задачей является повышение плотности плазмы и обеспечение ее устойчивости при больших плотностях. В настоящее время нам удалось добиться устойчивости

при плотностях, грубо говоря, порядка 10^{11} ионов/см³ с помощью метода стабилизации гиривидными полями, называемого также принципом «минимума В». Трудно сказать, какие результаты дадут другие методы, но, по-видимому, в любом случае этот метод может несомненно привести к дальнейшим успехам. Если нам удастся получить величины β порядка нескольких десятых (а этим методом несомненно можно получить такие значения), то тогда, конечно, можно будет использовать охлаждаемые до низких температур или возможно даже сверхпроводящие обмотки, чтобы решить проблему.

А. УЭЙНБЕРГ (США): Я просто хотел сказать профессору Арцимовичу, как человек, который верит в интуицию, что задача «сжигания скала» легче, чем задача «сжигания морей», а поэтому, может быть, было бы полезно сначала решить более простые и более элементарные задачи. Мне кажется, что если можно иметь положительный выход энергии при величине β , равной 0,01, а мы уже близки к этому, то было бы логичным воспользоваться этим достижением как можно быстрее.

Х. РОДЕРИК (США): Касаясь экспериментов на установке «Огра-1», я хотел бы отметить, что плазма была стабилизирована при плотности 10^9 ионов/см³ с помощью электрического потенциала, прикладываемого к стенкам камеры. Разработан ли детальный метод стабилизации?

И. Н. ГОЛОВИН (СССР): Нам действительно удалось добиться стабилизации с помощью электрических полей, но только для плотностей 10^8 ионов/см³. Мы еще не имеем возможности провести такие эксперименты с более плотной плазмой. Чтобы сделать это, нам надо улучшить вакуумные условия и повысить инжектируемый ток. Мы планируем провести эти эксперименты в этом году.

С. Д. ВИНТЕР (Франция): Не мог бы профессор Головин несколько более подробно рассказать о высокочастотном методе стабилизации плазмы? В частности мне хотелось бы знать: а) плотность стабилизируемой плазмы; б) параметры высокочастотного поля и в) трудности, возникающие при работе высокочастотного генератора, нагруженного на плазму (уход резонансной частоты).

И. Н. ГОЛОВИН (СССР): Я близко не знаком с техникой, используемой в схемах с генератором, нагруженным на плазму. Это весьма специфичный вопрос. Принцип этого метода заключается в том, что прямолинейные проводники, аналогичные тем, которые использовал Иоффе, размещаются снаружи области, занимаемой плазмой. Через эти проводники пропускают высокочастотный ток, который создает в среднем нарастающее по радиусу давление на плазму. Частота выбирается такой, чтобы период высокочастотного поля был существенно

* См. Ядерный синтез, МАГАТЭ, Вена (1962). Приложение, ч. 1, стр. 99—123.

меньше, чем время пролета ионов от границы плазмы до стенок. В момент, когда напряженность поля достигает нулевого значения, крайний слой не успевает существенно сдвинуться, так что плазма действительно устойчиво удерживается высокочастотным полем.

Т. КОНСОЛИ (Франция): Я хотел бы упомянуть о некоторых результатах, полученных во Франции на установке «Плеяда», модель которой можно увидеть на атомной выставке. Это установка резонансного типа, в которой стационарное высокочастотное поле накладывается на спадающее постоянное магнитное поле. Если это постоянное магнитное поле имеет пробочную конфигурацию, то может происходить либо ускорение, либо отражение плазменного пучка. Энергия электронов имеет существенную поперечную составляющую, тогда как у ионов больше аксиальная составляющая. Используя установку в качестве непрерывного ускорителя частиц, мы получили потоки порядка 10^{15} — 10^{18} частиц/см²·сек, причем максимальное значение аксиальной составляющей энергии ионов равнялось 30 кэв, а электронов 50 кэв. Используя же эту систему как ловушку с пробками, удалось получить только около 1000 отражений. Такое малое число отражений связано с потерями на перезарядку из-за плохого вакуума.

Дж. Б. АДАМС (Соединенное Королевство): Мне хотелось бы адресовать свой вопрос к тем, кто ведет исследования по удержанию плазмы в системах с магнитной ямой. Можно ли быть уверенным, что сильно возросшее время удержания, наблюдавшееся в этих экспериментах, действительно обусловлено магнитогидродинамической устойчивостью, присущей магнитной яме, а не другими стабилизирующими эффектами, такими, как проводимость за счет холодной плазмы. Во всех экспериментах достаточно большая часть первоначально образовавшейся плазмы затем попадает на стенки сосуда и, следовательно, создает проводящую среду, соединяющую удерживаемую плазму с внешними проводниками. Мы знаем, что такая проводимость между удерживаемой плазмой и металлическими стенками будет приводить к стабилизации перестановочной неустойчивости в простой ловушке с магнитными пробками. Не может ли иметь место то же самое в экспериментах с системами типа магнитной ямы, таких, как установка Иоффе и DECA-II?

М. ТРОШЕРИ (Франция): Я совершенно согласен с доктором Адамсом, что холодная плазма представляет собой серьезную проблему. В случае установки DECA-II, однако, мы надеемся, что роль холодной плазмы не настолько важна. Длинная труба отделяет плазменную пушку от экспериментальной камеры и холодная плазма не достигает камеры почти до самого конца процесса. Тем не менее некоторое количество холодной плазмы может присутствовать

в результате охлаждения горячей плазмы на стенках. В последующих экспериментах безусловно будет очень важно предпринять более серьезные меры по устранению холодной плазмы. Сейчас для этой цели уже ведутся исследования на ряде установок в Фонтене-о-Роз и, несомненно, также и в других лабораториях.

Я думаю, однако, что характер зависимости увеличения времени жизни от величины квадрупольного поля является действительным подтверждением устойчивости. Если бы время жизни не менялось при наличии квадрупольного поля, то ничего бы нельзя было сказать. Существует другая сторона вопроса, однако, когда такое изменение условий имеет место: никто не может представить, как могло бы квадрупольное поле влиять на стабилизацию, обусловленную холодной плазмой.

Л. А. АРЦИМОВИЧ (СССР): Мне хотелось бы также сказать несколько слов о вопросе доктора Адамса. Мы вполне уверены, что холодная плазма не оказывает никакого влияния на процессы, протекающие в установке ПР-5. Эксперименты показали, что эффект стабилизации непосредственно связан со стабилизирующим полем в случае, когда имелся чрезвычайно высокий вакуум. Холодная плазма существует только в течение очень короткого промежутка времени вблизи оси симметрии системы, а затем исчезает.

Х. РОДЕРИК (США): Я склонен согласиться с профессором Арцимовичем. На установке «Алиса» имеется очень высокий начальный вакуум (около $2 \cdot 10^{-9}$ мм рт. ст.). В нее инжектируются нейтральные частицы, которые затем захватываются. Я сомневаюсь, чтобы при этих экспериментах могло присутствовать много холодной плазмы. Резкое изменение времени жизни после того, как была установлена система Иоффе из 12 стержней, может рассматриваться как подтверждение того факта, что стабилизация обеспечивается полем, нарастающим от плазмы наружу (минимум В). Однако группа из Нью-Йоркского университета сделала теоретические расчеты, которые показывают, что плазма может быть стабилизирована холодной плазмой, если последняя осторожно инжектируется из области, где нет горячей плазмы.

Более того, их расчеты подтверждают, что этот метод может быть объединен с методом «минимум В».

Сэр Уильям ПЕННИ (председатель): От меня как председателя этой секции сейчас ожидают, что я подведу итоги и выскажу свое мнение. Однако я уверен, что все Вы сочувствуете мне, так как это очень трудная задача. Что очевидно, так это то, что имеет место отличное международное сотрудничество. Относительно масштабов усилий, я имею в виду денежные расходы, то общая их сумма в мировом масштабе на исследование по ядерному синтезу составляет на сегодня, вероятно, приблизительно

100 млн. американских долларов (или грубо говоря столько же в советских рублях).

С момента Женевской конференции 1958 г. мы достигли значительного прогресса, который, в частности, заключается и в том, что мы убедились, что научные проблемы оказались гораздо более трудными, чем это думали вначале. В теории достигнуты более важные результаты, хотя некоторые из неустойчивостей, предсказанных теоретиками, возможно, не столь уж существенны. Меня особенно заинтересовали исследования советских ученых: возбуждать некоторые из этих неустойчивостей, а затем использовать их для нагрева плазмы. Ничего не остается, как искать средство для подавления неустойчивостей. Различные вопросы, которые здесь задавались, показывают, что существует еще неопределенность относительно точной интерпретации некоторых измерений и наблюдений, но несомненно значительное улучшение методов диагностики за это время. Ученые гораздо больше теперь уверены в том, что именно они измеряют, чем это было пять лет назад, и некоторые из новых методов диагностики вносят гораздо меньше возмущений в плазму, чем это имело место при старых методах. Я думаю, что лазерные интерферометры, например, имеют большое преимущество. Кроме того, лазеры, возможно, с успехом будут использованы и в других целях.

Пока еще неясно, куда нас все это приведет. Программа исследований сейчас настолько непостоянна и все еще настолько специфична, что представляет собой направление, которое трудно связать с другими направлениями. Со временем все снова упростится, а вопросы, не относящиеся к этой проблеме, исчезнут, но сейчас

большая часть имеющегося материала и все эти странные названия, которые каждый изобретает для своих установок, требуют колоссального напряжения памяти. Но, как я сказал, я уверен, что все это станет со временем проще.

Приняв участие в работе этой секции, я думаю, что лучше всего сказать, что эта область науки не только интересная и важная сама по себе, но она действительно может со временем привести к достижению практической цели, о которой так часто здесь упоминали. Ясно, что некоторый промежуток времени, несколько лет, должен быть затрачен, прежде, чем мы сумеем надежно оценить наши возможности. Сейчас все мы можем сказать, что ученые должны продолжать свою работу и добиваться необходимой поддержки правительства, ибо конечная цель очень важна. Более развитые страны должны нести главную нагрузку, потому что эта работа длительная и дорогая по денежным затратам и числу ученых. Менее развитые страны имеют более неотложные задачи, которые стоят перед их учеными и которые тоже требуют затраты средств.

Я думаю, что из всего сказанного на заседании могут быть сделаны именно такие общие и беспристрастные выводы. Комментировать же технические проблемы, я думаю, преждевременно. Всем нам необходимо некоторое время, чтобы изучить различные доклады и обсудить их небольшими группами в лабораториях. Итак, в заключение можно сказать, что мы находимся на очень захватывающей стадии, которая принесет дальнейшие важные новые идеи и результаты, и я уверен, что все мы можем ожидать продолжения тесного и полезного сотрудничества.

Acta de la Sesión E

Fusión nuclear controlada

Presidente: Sir William Penney (Reino Unido)

DISCUSIÓN EN GRUPO

M. TROCHERIS (Francia): Yo desearía dar a Vds. ciertos detalles sobre el experimento DECA II efectuado en Fontenay-aux-Roses. El principio, basado en el confinamiento por espejos magnéticos y estabilización por campos multipolares, parece ofrecer una de las líneas actuales de investigación más promisorias, y en ello tienen puestas sus esperanzas varios laboratorios.

En el dispositivo DECA II se obtiene una configuración estable por superposición de un campo cuadrupolar, a otro de espejo magnético generado mediante dos bobinas coaxiales, con un diámetro interno de unos 20 cm, separadas aproximadamente 50 cm. El campo cuadrupolar se produce mediante corrientes que circulan en sentidos alternados, en cuatro barras paralelas al eje. El campo magnético puede alcanzar un valor máximo de 15 kG en el centro, y 30 kG en los espejos.

El plasma de deuterio no se produce *in situ* en la cámara experimental, sino que se inyecta desde el exterior en forma de impulso rápido mediante un cañón de plasma. Después de su captura entre los espejos magnéticos, la energía media de un ion del plasma asciende a unos cientos de eV. A continuación, la temperatura del plasma se eleva aún más y al mismo tiempo el plasma se aleja de la pared a causa de un aumento lento del campo magnético, o compresión adiabática.

Se han efectuado muchas medidas del plasma así formado, de las cuales las más importantes son las de densidad electrónica con ondas milimétricas, y la detección de átomos neutros rápidos formados por intercambio de carga entre los iones rápidos del plasma, y los átomos lentos del gas residual neutro. La disminución temporal de la señal observada, procedente de estos átomos neutros, proporciona una indicación sobre la vida del plasma.

Una ventaja muy importante del método de inyección usado en el DECA II, es la posibilidad de producción de plasmas, con densidades variables en un amplio intervalo (10^{10} - 10^{14} partículas/cm³).

Se pueden resumir muy brevemente las experiencias efectuadas en el DECA II diciendo que hemos estudiado la variación de la vida del plasma en función de dos parámetros: la intensidad del campo cuadrupolar y la densidad. Teóricamente, si se aumenta la intensidad del campo cuadrupolar, sin alterar el campo principal formado por los espejos, debería obtenerse una configuración estable por encima de cierto valor mínimo del campo cuadrupolar. La vida del plasma debería aumentar bruscamente cuando se pasara de ese valor mínimo. Efectivamente se observa que para las densidades más bajas (del orden de 10^{10} partículas/cm³), la vida aumenta, por ejemplo de 20 a 200 μ s. Este último valor está determinado por pérdidas de plasma debidas a causas distintas de la inestabilidad, tales como el intercambio de carga con el gas residual.

Nuestros resultados iniciales a densidades más elevadas fueron muy decepcionantes: para una densidad de 10^{11} partículas/cm³, la vida no excedió de 70 μ s y para 10^{13} ó 10^{14} partículas/cm³, no experimenta aumento alguno al crecer el campo cuadrupolar.

Se obtuvieron resultados completamente distintos al colocar un diafragma a la entrada de la cámara para limitar el diámetro del plasma inyectado. En estas condiciones la vida aumenta de forma aproximadamente análoga en función del campo cuadrupolar, independientemente de la densidad.

El análisis de los resultados lleva a la opinión de que pueden explicarse completamente las pérdidas de plasma por las dos causas ya mencionadas: inestabilidad e intercambio de carga con el gas neutro. Sin embargo, respecto a la primera serie de experiencias (sin diafragma) se debe considerar que la densidad del gas neutro no era solamente la del gas residual,

y que aumenta con la densidad del plasma. Este fenómeno puede explicarse perfectamente si se considera el efecto de las paredes. En las experiencias sin diafragma, la cámara se llenó excesivamente y una parte del plasma no fue capturada en el espejo magnético, cuya profundidad era limitada. Este plasma no confinado, incide rápidamente sobre las paredes, expulsando gas de ellas e introduciendo gas neutro en la cámara, en proporción a la cantidad de plasma incidente en las paredes.

Es innecesario decir que se han efectuado un gran número de experiencias particularmente con el propósito de aclarar, y eventualmente eliminar, estos desafortunados efectos de pared. Los resultados obtenidos hasta el momento, aunque preliminares, son muy alentadores y dan indicación experimental clara en favor de la estabilidad de las configuraciones de pozo magnético.

K. FUSHIMI (Japón): El profesor Watson-Munro ha tenido la amabilidad de abarcar en el documento P/881 los trabajos japoneses más importantes sobre fusión y física del plasma. Por lo tanto, me voy a limitar a discutir algunos resultados importantes sin intentar evaluar el significado relativo de las diferentes actividades.

En cierta forma, el trabajo japonés sobre física del plasma proviene de una larga tradición en investigación sobre descargas eléctricas en gases. Consecuencia de esta tradición, fue la propuesta de una sonda doble, sugerida por el profesor Kojima, y más especialmente la del profesor Takayama sobre una sonda de resonancia. El funcionamiento de esta última ha despertado un gran interés, especialmente en la Universidad de Stanford y en el Instituto Max Planck, y ha sido objeto de un estudio cuidadoso. Aunque, a causa de la alteración introducida por la impedancia de la vaina, se ha tenido que abandonar la interpretación original de que el pico observado de resonancia indica la frecuencia exacta de oscilación del plasma, las características esenciales del método mantienen su validez, con lo que eventualmente puede convertirse en un dispositivo de diagnóstico.

Los resultados de nuestra investigación apuntan a la conclusión de que el plasma se puede comportar de manera distinta, aunque aparentemente se encuentre en el mismo estado, con igual densidad y temperatura. Este hecho ha sugerido a los investigadores la irónica observación de que cada dispositivo de diagnóstico implica su propio plasma, y ciertamente perturba nuestros esfuerzos de obtener una imagen coherente de los resultados de los distintos proyectos de investigación. Por ejemplo, el éxito del profesor Takayama en la obtención de un notable pico de resonancia se debió esencialmente al hecho de que se utilizó un tubo de descarga grande de forma esférica, con el sistema de electrodos dispuestos

lateralmente, con lo que solamente los bordes del plasma se aproximan al centro del tubo. De esta manera se evitaron los efectos de la pared sobre el plasma y se impidieron otras perturbaciones eléctricas del sistema de electrodos. Una parte de nuestro trabajo inicial en el Instituto de Física del Plasma es la producción de plasma de parámetros conocidos y definidos, objetivo que hasta el momento no ha sido completamente realizado.

Una segunda parte del esfuerzo japonés sobre la fusión tuvo su origen en el gran estímulo que aportaron la primera y segunda conferencias de Ginebra. El Dr. Bhabha declaró en la primera de ellas, que la energía de fusión podría ser utilizable dentro de unos 20 años, y en la segunda Conferencia se facilitó simultáneamente la importante información acumulada, procedente de experiencias secretas en los países de investigación atómica más avanzada. Expertos científicos procedentes de campos análogos de investigación, como radiación cósmica y física de aceleradores, fueron atraídos por este nuevo y promisorio tema. El objetivo fue, evidentemente, más difícil de lo que se había supuesto y tras varias experiencias esos hombres de ciencia constataron que, frecuentemente, los plasmas no podían ser controlados.

Por ejemplo, yo desearía mencionar una experiencia aleccionadora que hemos tenido en la construcción del heliotrón: un dispositivo para confinar y calentar el plasma en un campo magnético especialmente ondulado. Para producir el calentamiento óhmico se utilizaron un cierto número de hilos conductores arrollados según las líneas generatrices del tubo toroidal de descarga. Tras un trabajo considerable de experimentación, se descubrió que estos conductores producían un campo transversal que dirigía el plasma hacia las paredes. El grupo de investigación citado se encuentra construyendo un segundo dispositivo en el que se confía evitar los puntos débiles del proyecto anterior. Según me han dicho, en alguna de las grandes máquinas americanas, ha habido también un olvido semejante de las ecuaciones de Maxwell.

He discutido dos aspectos del trabajo japonés, que pueden tener correspondencia con el de otros países. Siguiendo estas observaciones, desearía mencionar un problema que al menos, debería darnos que pensar. En 1961, entre la segunda y tercera conferencias de Ginebra, el Organismo Internacional de Energía Atómica convocó una conferencia internacional en Salzburgo sobre física del plasma, e investigación en fusión termonuclear controlada. En el mismo año tuvo lugar en Munich otra conferencia paralela, sobre fenómenos de ionización en gases. Al año siguiente, el Organismo intentó organizar otra conferencia sobre fusión termonuclear controlada, que resultó ser otra conferencia de fenómenos de ionización en gases. El problema, pues, consiste en lograr que estas dos

escuelas de científicos colaboren más estrechamente.

Para concluir, debo mencionar un segundo problema. Ya he descrito un caso en el que se progresó lentamente en un proyecto experimental, debido a un error trivial y elemental. Deben existir múltiples errores de esta clase en países avanzados en investigación atómica, aunque no sean fáciles de localizar en la literatura: se sabe de ellos, en efecto, gracias al intercambio del personal investigador. El problema, por tanto, es la forma de promover un intercambio completo de información de este tipo.

J. B. ADAMS (Reino Unido): Tal vez pueda contribuir eficazmente a la discusión haciendo observaciones sobre varios problemas específicos que hemos tenido en Culham. Nuestro problema de conjunto está muy bien descrito en su totalidad por el profesor Schlüter en el documento P/882.

En 1958, el trabajo en el Reino Unido se refería principalmente al experimento de constricción. Nuestro programa actual sigue tres direcciones de trabajo sobre confinamiento: experimentos de espejos magnéticos adiabáticos, en forma simple y de pozo magnético; experimentos en los que se utilizan botellas magnéticas, como los thetatrones — esto es, experimentos con plasma de β elevado (los dos primeros son sistemas abiertos por ambos extremos) y finalmente investigación con trampas magnéticas cerradas, en las que hemos concentrado la atención en experimentos de constricción y constricción inversa.

En lo concerniente a espejos magnéticos adiabáticos, indudablemente el progreso más importante en el último año ha sido la idea de los pozos magnéticos. Nuestra contribución, después de los experimentos originales de Ioffe en el Instituto Kurchatov, han versado sobre trabajo teórico. Hemos conseguido calcular la estabilidad de estos pozos, que constituyen el sistema de confinamiento, y más recientemente, hemos calculado el llamado límite β , esto es, la cantidad de plasma que se puede introducir en él antes de que el campo magnético se distorsione en tal grado que reaparezca la inestabilidad de intercambio. Hemos comprobado el experimento de Ioffe en nuestro propio laboratorio, con resultados muy similares, y esperamos extender estos experimentos, particularmente los concernientes al límite β . A juzgar por las indicaciones del Dr. Trocheris, sobre la experiencia con DECA II, parece ser que constituye realmente uno de los más importantes problemas.

Con relación a las botellas magnéticas, como los thetatrones, pienso que nuestra contribución más útil ha sido la determinación de la posición de equilibrio en tales dispositivos, lo cual parece un problema trivial, pero el hecho es que se ha presentado en muchos sistemas de confinamiento de plasma; no tiene gran objeto la discusión de inestabilidades cuando no existe equilibrio. Esto creo que se ha hecho ahora opinión general.

El verdadero problema con thetratrones y con el lóbulo abusado, que es un tipo de experimento muy similar en que se utiliza esencialmente una botella magnética con pozo, es la velocidad de fuga. Está bien determinado que en estos dispositivos se produce un plasma denso y caliente. Sin embargo, a menos que se logre eliminar las fugas, es difícil imaginar cómo podrían usarse desde el punto de vista de un reactor práctico. Tal vez en Culham hemos logrado una contribución esencial a la solución del problema, tratando de evaluar la cuantía de la fuga y hemos encontrado que es del orden del doble del radio giromagnético iónico, por consiguiente, para su aplicación en un reactor, deberá ser mucho menor, del orden del radio giromagnético del electrón. Esto, según creo, es el tipo de problema que puede adquirir una gran importancia en un futuro próximo.

En nuestro trabajo con trampas magnéticas cerradas hemos concentrado la atención en experimentos de constricción inversa. La memoria del profesor Schlüter se refiere a nuestro trabajo sobre inestabilidad resistiva. El problema de la estabilización de cizallamiento exige aún aclarar muchas incógnitas. El desarrollo reciente más interesante, a mi entender, es la posibilidad de realizar en ellos algo análogo a un pozo magnético. Aunque teóricamente es imposible conseguir un sistema cerrado con campos decrecientes en todas las direcciones a partir del centro del plasma, es posible imaginar valores medios apropiados del campo magnético tomado alrededor del sistema, por ejemplo, una integral de d/B que puedan dar un tipo de pozo magnético. Tales sistemas han sido investigados en los Estados Unidos y ofrecen una alternativa al sistema de estabilización de cizallamiento.

Para terminar, debo recalcar que desde 1958 se han realizado progresos importantes en el diagnóstico del plasma. Si conocemos mejor ahora los plasmas calientes y hablamos de ellos con gran confianza, es debido a que podemos medirlos mejor. Esto representa probablemente uno de los campos de progreso más importantes desde la última conferencia.

Finalmente, ha de tenerse presente en todo este trabajo que, en el estudio de plasmas, estamos tratando con un estado de la materia que, aunque puede sernos nuevo, es muy común en el universo. En Culham hemos emprendido programas de espectroscopia estelar, por medio de cohetes estabilizados. Un problema interesante lo constituye la medida de plasmas cósmicos mediante los instrumentos de laboratorio desarrollados para la investigación de plasmas en el laboratorio. Creo que debería insistir sobre el hecho de que el estado de plasma puede tener muchas aplicaciones, además de las conocidas de fusión termonuclear, y que constituye por sí mismo, independientemente de su propósito, una esfera de auténtica investigación.

I. N. GOLOVIN (URSS): Se ha insistido mucho sobre el desarrollo fructífero de un método específico para evitar la inestabilidad en estrías. No es difícil comprender el gran interés que tanto los hombres de ciencia teóricos como los experimentadores demuestran por este tema, pues la inestabilidad citada es, de hecho, la más seria de todas las conocidas y, si aparece, queda fuera de discusión el confinamiento de plasma denso y caliente en una trampa magnética. Los resultados alcanzados sobre inestabilidad del plasma en distintos laboratorios mundiales parecen estar a primera vista en mutua contradicción. Este hecho ha dado lugar a arduas discusiones, cuyo resultado es que el concepto de inestabilidad del plasma se ha aclarado en los últimos años, aunque se requieren aun más aclaraciones, tanto en teoría como en experimentación. Nosotros nos hemos ocupado de la supresión efectiva de la inestabilidad en estrías, mediante un campo magnético radial creciente, lo que supone una mejora considerable. Por otra parte desearía ocuparme brevemente de otros métodos de tratamiento de este problema, sobre los cuales, el futuro dirá cuál de ellos resulta más práctico para evitar dicha inestabilidad.

En la Conferencia de Salzburgo, celebrada en el otoño de 1961, se indicó que las dimensiones finitas de las órbitas iónicas (radio de Larmor) dan lugar a un efecto de estabilización. El análisis teórico rea-

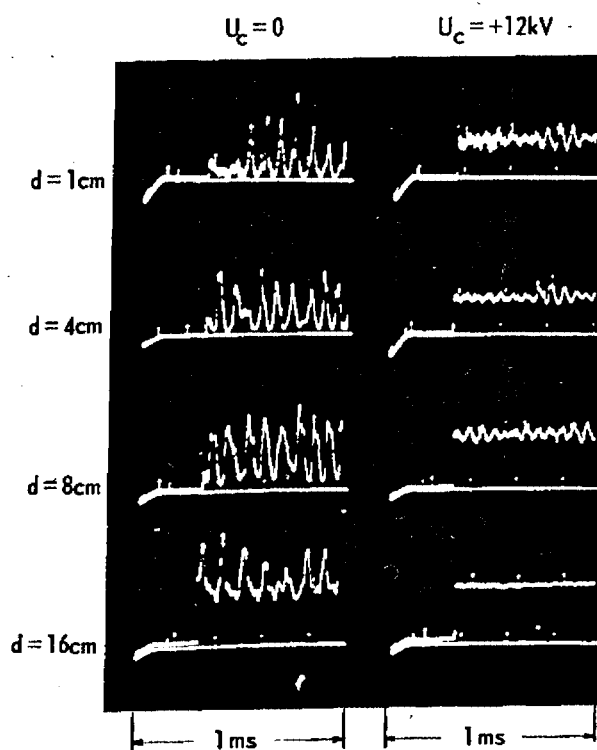


Figura 1. El flujo de iones rápidos en una sonda cubierta con hoja delgada a distintas distancias de la pared de la cámara en régimen inestabilizado ($U_c = 0$) y en régimen estabilizado ($U_c = +12$ kV)

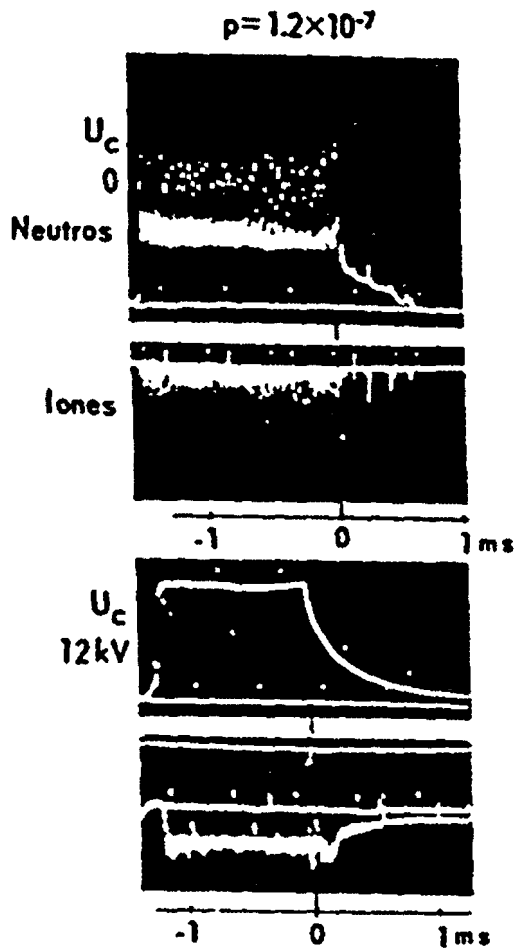


Figura 2. El flujo de átomos neutros procedentes del intercambio de carga y el flujo de iones rápidos en las paredes de la cámara del OGRA en los regímenes inestabilizados ($U_c = 0$) y estabilizado ($U_c = 12$ kV). Para $t = 0$ se interrumpe la inyección de iones rápidos

lizado a continuación en la Unión Soviética y las experiencias en OGRA, han indicado que el campo eléctrico radial de la carga del plasma tiene, según la forma de variación a lo largo del radio, bien un efecto inestabilizante sobre un plasma previamente estable o un efecto estabilizante sobre un plasma no estabilizado.

En otras palabras, un campo eléctrico radial que aumente más rápidamente que la primera potencia del radio tiene un efecto estabilizador, mientras que si el campo aumenta más lentamente o decrece, produce sobre el plasma un efecto inestabilizante. Los experimentos se han realizado hasta el momento sobre un plasma de baja densidad, hasta 10^8 iones/cm³, pero el hecho atrayente de este mecanismo estabilizador es que, según la teoría, su efectividad es independiente de la densidad del plasma.

Hemos conseguido eliminar la inestabilidad variando la distribución radial de la carga del plasma. En la figura 1 se puede apreciar la efectividad del método.

Aquí podemos observar la variación de la señal de la sonda al sumergirla a distintas profundidades

en el plasma. A la izquierda se encuentra el plasma inestabilizado y a la derecha, el estabilizado. Se puede ver que ya a una profundidad de sólo 16 cm de la superficie, el plasma es completamente estable aunque su diámetro es aproximadamente 1 m.

En la figura 2 podemos observar la dependencia del efecto estabilizador sobre el flujo de átomos neutros que escapan del plasma. El diagrama superior muestra un oscilograma del flujo de átomos neutros sin campo estabilizador: en el inferior se puede ver una línea recta horizontal completamente uniforme, y después del corte un descenso lento; en el régimen estabilizado. Han de efectuarse todavía experimentos para averiguar en qué medida este mecanismo garantizará la estabilidad en los sistemas que requieren los reactores de fusión prácticos. En esos sistemas, la vida del plasma ha de ser del orden de un segundo, pero en nuestros experimentos, en que tal duración es 0,01 s, no hemos podido detectar ninguna señal de inestabilidad en el régimen estabilizado.

Otro método importante para evitar la inestabilidad en estrías se encuentra en discusión desde la Segunda

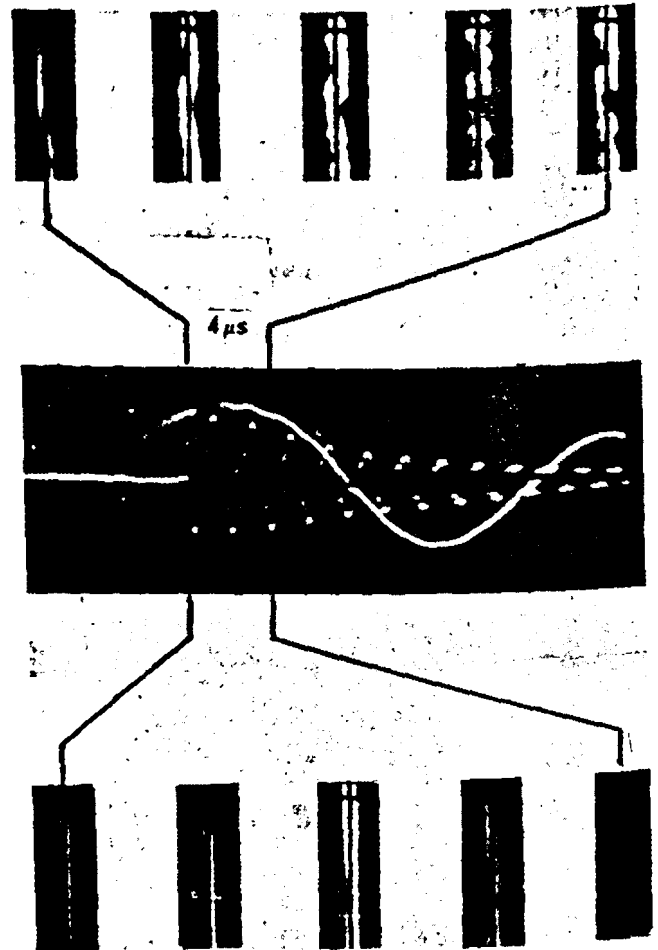


Figura 3. Fotografías de una columna de plasma sin el campo estabilizador de alta frecuencia (parte inferior). El oscilograma muestra la corriente de descarga (baja frecuencia) y la corriente en las barras de estabilización (alta frecuencia). Una de las barras de estabilización arroja una sombra longitudinal en todas las fotografías

Conferencia de Ginebra, y sobre él, llamaron nuestra atención por primera vez, Post y Rosenbluth, en los Estados Unidos. Nosotros lo consideramos altamente interesante, y está basado en el hecho de que en las máquinas de espejos se elimina esta inestabilidad si se mantiene la conductividad a lo largo del campo magnético, desde el espejo a los extremos de la cámara. El grupo de Zavoisky del Instituto Kurchatov de Energía Atómica, ha emprendido el análisis de este mecanismo. La teoría desarrollada por Rudakov, indica que hay buenas perspectivas de llegar a sistemas de importancia práctica, concretamente la condición de conductividad hasta los bordes de la cámara es totalmente suficiente si exteriormente a los espejos hay un plasma frío con densidad 1 000 veces menor que la del plasma confinado caliente. Un plasma frío de este tipo se forma inevitablemente, debido al gas residual que rodea el plasma caliente. Se ha demostrado experimentalmente que el plasma caliente es estable si el frío que le rodea tiene una densidad 40-80 veces menor. Esperamos que pueda mantenerse la estabilidad que predice la teoría, reduciendo aún más la densidad del plasma frío. Este punto será comprobado en experiencias con vacío más elevado.

S. M. Osovets y su grupo, también en el Instituto Kurchatov de Energía Atómica, han obtenido resultados interesantes sobre la supresión de la inestabilidad del plasma. Utilizan para estabilizar el plasma, un campo electromagnético de alta frecuencia, cuya presión sobre el plasma aumenta radialmente.

La figura 3 muestra la efectividad de funcionamiento del sistema. En la parte superior se observan columnas curvadas de plasma no estable, mientras que en la inferior se observa una columna uniforme de plasma estabilizado por el campo de alta frecuencia. Es aun prematuro afirmar si el sistema será utilizable para producción de energía en reactores industriales pero al menos es satisfactoria la excelente concordancia entre la teoría y la experimentación.

En los últimos años, nuestra actitud respecto al problema de la inestabilidad ha sufrido un cambio significativo. Hasta hace poco, los experimentadores se encontraban tan impresionados por las inestabilidades previstas por los teóricos, que evitaban producir las, y todos sus esfuerzos se dirigían hacia su eliminación. El grupo de Zavoisky y el Laboratorio del Instituto Novosibirsk de Física Nuclear han adoptado una postura diametralmente opuesta. Su idea es producir deliberadamente inestabilidades intensas para calentar plasmas densos. Es innecesario decir que no todas las formas de inestabilidad son adecuadas para este propósito, pues solamente son utilizables aquellas que no dan lugar a grandes fugas de plasma de la trampa. El tamaño de la zona inestabilizada debe ser pequeño respecto a las dimensiones de la trampa de plasma, y el tiempo requerido para termalizar las oscilaciones inestables debe ser lo sufi-

cientemente corto para que el plasma no entre en interacción intensa con las paredes. Parece ser que existen tipos de inestabilidad que cumplen con estas condiciones, por ejemplo, las inestabilidades en «doble flujo». El calentamiento turbulento originado se debe al hecho de que se excitan flujos intensos de partículas en el plasma, y sus ondas distribuidas caóticamente interaccionan entre sí en forma no lineal y estas ondas, que determinan la distribución de velocidades de partículas en el haz, dan lugar al calentamiento del plasma en conjunto. Como se indicó en el documento P/297, se ha probado experimentalmente la efectividad de calentamiento del plasma por este método. Las cifras citadas muestran que el plasma se calienta a cientos de millones de grados, y que los iones tienen una temperatura muy elevada: en los experimentos de Zavoisky, el plasma tiene una vida de 0,02 s, valor que no representa un límite de posibilidades. La perspectiva de desarrollos ulteriores sobre el calentamiento turbulento son realmente buenas.

En conclusión, desearía decir que muchas formas de inestabilidad de plasma previstas por la teoría, que hasta hace poco eran una nube negra en el horizonte de la investigación termonuclear, van siendo paulatinamente controladas. Se están investigando métodos efectivos para la supresión de las grandes inestabilidades que dificultan el confinamiento del plasma: las inestabilidades en pequeña escala van sirviendo ya como medio útil de calentamiento del plasma.

C. N. WATSON-MUNRO (Australia): Como se ha indicado en el documento P/881, nuestro principal esfuerzo en este campo, en Australia, se dirige hacia la investigación básica de las medidas de las propiedades del plasma y métodos de diagnóstico. Además, hemos emprendido un pequeño programa basado en el calentamiento ion-ciclotrón. Esperamos poder alcanzar, en los plasmas, temperaturas de unos pocos cientos de eV a densidades bajas, de unos 10^{12} a 10^{13} iones/cm³. Nuestra máquina está preparada para un ciclo de compresión magnética, por lo que podríamos utilizar las barras de Ioffe, que han sido tan útiles en otras experiencias del mismo tipo.

Documento P/279

DISCUSIÓN

A. SIMON (Estados Unidos de América): Usted ha mencionado que en el aparato PR-5, la disminución de la densidad del plasma, en la región de mayor densidad no es exponencial. ¿Existe alguna explicación de este hecho?

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): La naturaleza de la extinción del plasma a estas densidades elevadas ha

sido completamente aclarada gracias a experimentos recientes. Se ha puesto de manifiesto, que en el nuevo método utilizado por Ioffe, tiene lugar un aumento brusco de la presión del gas en las etapas iniciales del proceso. Por tanto, la disminución de la densidad es debida al proceso normal de intercambio de carga. Esto no tiene nada que ver con el problema de la estabilidad.

R. S. PEASE (Reino Unido): ¿Podría Vd. explicar cómo se llena la trampa PR-5 con plasma de alta densidad?

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): El nuevo método de acumulación de plasma en el PR-5 hace uso de la inestabilidad electrostática de una constricción de plasma frío. Este, que se propaga por sí mismo a lo largo del eje del sistema magnético, se vuelve inestable, por lo que se generan campos eléctricos que aceleran los iones. Este método nos permite acumular un plasma más denso que en ocasiones precedentes. Las densidades obtenidas, son del orden de 10^{21} iones/cm³; dudo que se puedan alcanzar densidades mayores, y por esta razón se están estudiando otras técnicas para aumentar la densidad 10^{22} iones/cm³.

R. S. PEASE (Reino Unido): ¿Tiene Vd. pruebas directas de la temperatura electrónica en el dispositivo TOKOMAC?

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): La temperatura electrónica en el dispositivo TOKOMAC alcanza por ahora, unos dos millones de grados. Un índice de esta temperatura es la conductividad del plasma, aunque da valores más bien demasiado bajos para la temperatura electrónica. En segundo lugar se puede medir el llamado efecto diamagnético, a partir del cual se puede determinar la presión media del plasma. Los datos espectroscópicos están en buena concordancia con los resultados obtenidos por ambos métodos.

Sr. JORDAN (República Federal de Alemania): El método de calentamiento turbulento descrito por el Sr. Artsimovich presenta cierta semejanza con la técnica de precalentamiento inductivo utilizada comúnmente en los experimentos de constricción theta. ¿Sería posible que Vd. me diera detalles adicionales sobre este nuevo método?

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): Existe una diferencia básica entre calentamiento turbulento y la técnica usada en la constricción theta, y consiste en que la velocidad de crecimiento del campo magnético es mucho mayor en el calentamiento turbulento. En las experiencias de Zavoisky, en el Instituto de Energía Atómica, y las de Nesterikhin en el Instituto Novosibirsk de Física Nuclear, se han utilizado dispositivos especiales que permiten un aumento del campo magnético de 10 kG en menos de 0,1 μ s. El hecho

esencial es que la frecuencia del impulso electromagnético debe ser máxima. Como resultado, una onda rápida atraviesa el centro dando lugar a una caída brusca del campo magnético, con la que está asociada la formación de un flujo azimutal de electrones rápidos. Este flujo es inestable, y la energía es prontamente dispersada y convertida en calor. Con ello, Vd. puede apreciar que el método descrito es ciertamente distinto, puesto que se basa en un flujo azimutal de electrones en un plasma sin colisiones, de baja densidad.

Documento P/195 (presentado por H. Roderick)

DISCUSIÓN

I. N. GOLOVIN (URSS): Al final de la parte II de esta memoria lleemos: «Se han logrado simultáneamente el quemado y el calentamiento iónico, mediante la interacción de un haz electrónico con el plasma». ¿Podría Vd. darme detalles adicionales sobre el significado de esta frase?

H. RODERICK (Estados Unidos de América): Solamente puedo contestar que el trabajo sobre interacción de un haz electrónico con un plasma está desarrollándose muy satisfactoriamente, aunque muchos problemas misteriosos permanecen sin respuesta. I. Alexeff y R. V. Neidigh han escrito una memoria sobre las medidas realizadas hasta el momento, y me complace ofrecer una copia al Sr. Golovin. El trabajo describe una serie detallada de medidas, pero su significado en lo referente al quemado, no está completamente claro.

E. PISKAREV (OIEA): ¿Se han obtenido resultados experimentales sobre la acumulación de electrones en «Astron»? Si es así, a) ¿se formó una capa E?, b) ¿cuál fué su duración? y c) ¿se alteró la dirección del campo magnético?

H. RODERICK (Estados Unidos de América): «Astron» ha estado operando aproximadamente unas 12 horas durante el mes de agosto. En las medidas preliminares sobre la inyección de electrones, se ha visto que la vida de éstos, es más bien corta. Parece ser que los electrones permanecen confinados 50 μ s mientras que la vida prevista era de 5s. La razón de este confinamiento tan corto parece deberse a que los electrones producen ruido de microondas, que actúa como un klystron, interaccionando con los electrones y expulsándolos del dispositivo. El rendimiento de captura es del 10% del haz inicial. En el momento actual, la corriente de circulación durante el impulso de electrones es de unos 1 000 A. Se espera, desde luego, que aumentará la vida a lo largo de la experiencia, cuando encontremos métodos para amortiguar las microondas producidas por los electrones.

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): En el dispositivo DCX-2 la extinción del plasma tiene lugar al principio

con mucha rapidez y sigue después una ley exponencial. ¿A qué concentración se verifica el cambio de extinción rápida a lenta?

H. RODERICK (Estados Unidos de América): Las medidas del tiempo de extinción en el DCX-2 plantean algunos interrogantes. La extinción rápida tiene lugar desde 2×10^{10} iones/cm³ hasta la mitad de este valor, a partir del cual comienza la extinción de período lento. Sin embargo, creo que se necesitan más experimentos para discernir si efectivamente hay dos períodos de extinción, o solamente uno con un punto de curvatura.

Documento P/882

DISCUSIÓN

A. N. SEVCHENKO (RSS de Bielorrusia): En su investigación sobre el espectro del plasma (párrafo 15 de la memoria) ¿estudió Vd. la isotropía de la radiación o cómo depende de la temperatura?

A. SCHLÜTER (República Federal de Alemania): No hay relación directa entre la anisotropía del plasma y su temperatura, pero sí indirecta en la forma siguiente: en un futuro reactor de fusión, habrán de tolerarse pérdidas de partículas por colisiones elásticas en una medida superior a la permisible en las máquinas de espejos, por ejemplo, y estas pérdidas adicionales, que implicarán una gran desviación de la isotropía, serán compensadas, al menos en parte, por una elevación de temperatura.

Documento P/881

Esta memoria no se discutió por separado.

DISCUSIÓN GENERAL

A. M. WEINBERG (Estados Unidos de América): En casi toda la discusión se ha supuesto que las condiciones necesarias para la fusión termonuclear son: temperatura de unos 10 keV, densidad de 10^{14} – 10^{15} iones/cm³, y un valor de β (razón de la presión del plasma a la presión magnética) de 0,1. ¿Ha considerado alguno de Vds. la posibilidad sugerida por el Dr. Post en la Conferencia de Salzburgo* de que puede ser factible producir más energía de la consumida en sistemas, con β mucho menor (por ejemplo, $\beta=0,01$), utilizando bobinas superconductoras e inyección altamente efectiva?

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): En mi opinión, se resolverá con el tiempo el problema de la construcción de un sistema de balance positivo de energía para valores de β del orden de unas décimas. Con todo,

* *Nuclear Fusion*, OIEA, Suplemento, Parte 1, pp. 99-123, Viena (1962).

no creo que estemos preparados para discutir en detalle los aspectos técnicos de un reactor termonuclear. Queda aun un largo camino ante nosotros antes de que podamos obtener los parámetros que, en principio, son esenciales para un balance de energía positivo. La primera tarea es aumentar la densidad de nuestros plasmas y asegurar la estabilidad en estas condiciones. Hasta el momento hemos conseguido estabilidad a densidades del orden de 10^{11} iones/cm³ por el método de estabilización de campos híbridos, también llamado el principio de β mínimo. Es difícil decir cuál será el rendimiento de otros métodos, pero parece seguro en todo caso que realizaremos progresos en este método. Si se consiguen alcanzar valores de β de unas décimas, (y esto ciertamente no está fuera de nuestro alcance con este método), pueden usarse conductores refrigerados o incluso superconductores con objeto de resolver el problema.

A. M. WEINBERG (Estados Unidos de América): Yo meramente deseo decir al profesor Artsimovich, opinando instintivamente, que la tarea de quemar rocas es más fácil que quemar los océanos, por lo que puede ser útil elegir en primer lugar el tema más simple y elemental. Creo que si podemos obtener una ganancia de energía para $\beta=0,01$ (y no estamos muy lejos de ello) sería lógico explotar este avance, cuanto antes mejor.

H. RODERICK (Estados Unidos de América): Con relación a los experimentos efectuados con el OGRA-1 observo que el plasma ha sido estabilizado a una densidad de 10^9 iones/cm³ por medio de potenciales electrostáticos en las paredes laterales del dispositivo. ¿Podrían Vds. darme detalles sobre el efecto de estabilización?

I. N. GOLOVIN (URSS): Hemos tratado de obtener la estabilización con campos eléctricos, pero sólo para densidades de 10^8 iones/cm³; no hemos sido capaces de efectuar estas experiencias con plasmas más densos. Para efectuar esto debemos perfeccionar nuestro dispositivo de evacuación, y aumentar la inyección de corriente. Proyectamos realizar estas experiencias este año.

S. D. WINTER (Francia): ¿Podría el profesor Golovin darnos algunos detalles sobre el método de estabilización por campos de alta frecuencia? En particular desearía conocer a) la densidad del plasma estabilizado, b) las características del campo de alta frecuencia, c) las dificultades surgidas por el acoplamiento del generador de alta frecuencia al plasma (deriva de la frecuencia de resonancia).

I. N. GOLOVIN (URSS): No me es familiar la técnica utilizada en el acoplamiento del generador al plasma: esto es un tema un tanto especializado. El principio del método consiste en la utilización

de conductores lineales, similares a los utilizados por Ioffe, en la parte externa del volumen ocupado por el plasma. La corriente de alta frecuencia atraviesa estos conductores, con lo que ejerce en promedio, una presión radial creciente sobre el plasma. La frecuencia elegida es tal que el período del campo de alta frecuencia es sustancialmente menor que el tiempo de vuelo de los iones, desde el límite del plasma, a las paredes. En el momento en que el campo pasa por cero, las regiones no tienen tiempo apreciable para derivar, con lo que el plasma contenido por el campo de alta frecuencia es, de hecho, estable.

T. CONSOLI (Francia): Desearía mencionar ciertos resultados experimentales obtenidos en Francia con un dispositivo llamado PLÉIADE, del cual puede verse un modelo en la Exposición Atómica. PLÉIADE es un dispositivo de resonancia en el que se superpone un campo estacionario de alta frecuencia a un campo magnético estático decreciente. Colocado en los extremos de un campo magnético en forma de botella, puede actuar como acelerador o como reflector de haz de plasma. La energía de los electrones es esencialmente transversal y la de los iones axial. Utilizando este dispositivo como acelerador continuo de partículas, hemos obtenido flujos de 10^{14} - 10^{15} partículas/cm²s, en el cual los iones tienen una energía paralela máxima de 30 keV y los electrones, 50 keV. En su empleo como espejo, hemos observado solamente unas 100 reflexiones, número más bien bajo debido a las pérdidas por intercambio de carga, debidas al vacío pobre.

J. B. ADAMS (Reino Unido): Desearía hacer una pregunta a los que han estudiado el confinamiento de plasma en pozos magnéticos. ¿Podemos estar seguros de que el tiempo de confinamiento, notablemente mayor, observado en estos experimentos es debido en su totalidad a la estabilidad magnetohidrodinámica intrínseca de un pozo magnético y no a otro efecto de estabilización, como el de anudamiento de líneas? En todos los experimentos, una gran parte del plasma formado inicialmente es posteriormente dirigido hacia las paredes del recipiente, y por tanto forma un medio conductor que conecta el plasma confinado por medio de conductores externos. Sabemos que estas líneas conductoras desde el plasma confinado a las paredes de metal eliminan las inestabilidades de intercambio en un espejo magnético simple. ¿Puede ocurrir lo mismo en experimentos de pozo magnético, como el de Ioffe y los efectuados en el DECA II?

M. TROCHERIS (Francia): Estoy completamente de acuerdo con el Dr. Adams, en que el plasma frío plantea problemas serios. En el caso particular del DECA II esperamos sin embargo, que no sean de gran importancia. Una columna larga separa el cañón de plasma de la cámara experimental y el plasma frío no llega a ésta hasta que el experimento está casi concluido. Por otra parte, una cierta cantidad de

plasma frío puede estar presente como consecuencia del enfriamiento del plasma caliente en las paredes. En futuros experimentos será ciertamente muy importante intentar en lo posible la eliminación del plasma frío. Se están estudiando ya un cierto número de dispositivos para este fin en Fontenay-aux-Roses, e indudablemente también en otros laboratorios.

Creo, sin embargo, que un incremento de la vida en función del campo cuadripolar es índice seguro de estabilidad. Si no existiera esta variación, no podría probarse nada. El caso es distinto cuando existe esta variación; no se puede imaginar cómo el campo cuadripolar podría influenciar en la estabilización por plasma frío.

L. A. ARTSIMOVICH (URSS): Querría decir unas palabras sobre la pregunta del Dr. Adams. Estamos seguros de que el plasma frío no dará lugar a este efecto en el aparato PR-5. Se han efectuado experimentos que indican que este efecto está asociado directamente con el campo estabilizador, en los casos en que hay un vacío extremadamente alto. El plasma frío se mantiene sólo un tiempo muy corto junto al eje de simetría, y luego desaparece.

H. RODERICK (Estados Unidos de América): Me siento inclinado a estar de acuerdo con el profesor Artsimovich. En el experimento ALICE se emplea un vacío inicial muy elevado (unos 2×10^9 torr) en el que se inyectan y capturan partículas neutras. Dudo de que se pueda tolerar la presencia de mucho plasma frío en un experimento de este tipo y la drástica variación que tiene lugar cuando se introduce el sistema de las 12 barras de Ioffe tendería a confirmar el hecho de que esto realmente es una estabilización de β mínimo. No obstante, un grupo de la Universidad de Nueva York ha realizado un cálculo teórico que tiende a demostrar que un plasma puede estabilizarse por otro frío inyectado muy cuidadosamente exteriormente al plasma caliente; sin embargo, sus cálculos sugieren que esta técnica puede vincularse con el método de β mínimo.

Sir WILLIAM PENNEY (Presidente): Como presidente de la sesión, he de hacer ahora un resumen de mis impresiones, pero estoy seguro que Vds. coincidirán conmigo en la dificultad de esta empresa. Lo que sí es obvio es que hemos logrado una colaboración internacional espléndida. Refiriéndome a la importancia del esfuerzo en función del coste, la inversión mundial total sobre investigación de fusión es equivalente hoy día a unos 100 millones de dólares (aproximadamente la misma cantidad en rublos).

Desde la Conferencia de 1958 hemos realizado un gran progreso que ha consistido en gran parte en apreciar que los problemas científicos eran más duros de lo que imaginábamos. La teoría ha realizado una contribución muy efectiva, aunque algunas de las inestabilidades previstas por los teóricos pueden ser de poca importancia. Me interesó mucho la línea

soviética: la creación de ciertas inestabilidades para calentar el plasma. No hay nada como buscar una cosa para que desaparezca. Los diferentes problemas técnicos sobre los que se han formulado preguntas, indican que existen unas incertidumbres sobre la interpretación exacta de algunas medidas y observaciones, pero indudablemente han supuesto mejoras importantes en las técnicas de diagnóstico. Los científicos están ahora más seguros de lo que miden que hace cinco años, y algunas técnicas modernas producen menos interferencias en el plasma que otras antiguas. Creo, por ejemplo, que el método interferométrico de laser tiene un gran mérito y que pueden existir de hecho, otras aplicaciones de los lasers.

El camino hacia donde nos dirigimos es aun incierto. El programa es, por ahora, tan diverso y aún así tan especializado, que constituye una rama de la física que encontrará dificultades de comunicación con otras ramas. Con el tiempo, estos problemas se simplificarán de nuevo y se eliminarán los puntos de poca importancia, pero actualmente la sola cantidad de materias (y todos estos nombres exóticos que cada persona inventa para designar su propio aparato) requiere un gran esfuerzo de memoria. Pero insisto; espero que todo se simplificará.

Después de escuchar esta sesión, creo que he de decir que este campo de ciencia no sólo es importante e interesante por sí mismo, sino que puede conducir con el tiempo al objetivo práctico que se ha mencionado frecuentemente. Evidentemente, debe pasar cierto tiempo —algunos años— antes de que podamos determinar, con seguridad, sus posibilidades. Todo lo que podemos decir ahora es que los científicos deben proseguir su trabajo y recurrir a la ayuda necesaria de su gobierno, ante la importancia del fin propuesto. Los países más desarrollados deberán soportar la carga principal, puesto que el trabajo es largo y costoso, tanto en científicos como en inversiones. Los países menos desarrollados tienen metas más inmediatas para sus científicos e inversiones.

Creo que se pueden sacar conclusiones más amplias y claras de lo que ya se ha dicho pero me parece que todo comentario sobre los avances técnicos es prematuro. Necesitamos tiempo para estudiar los distintos trabajos y discutirlos en grupos pequeños en los laboratorios. En conclusión, hemos alcanzado una etapa muy estimulante que nos conducirá a nuevas e importantes ideas y resultados y estoy seguro de que podemos mirar adelante hacia una colaboración continua, estrecha y fructífera.

Session 4.1

DIRECT CONVERSION OF HEAT TO ELECTRICITY

LIST OF PAPERS

		Page
Magnetohydrodynamics		
P/45	Etudes préliminaires sur les convertisseurs magnétohydrodynamiques fonctionnant hors d'équilibre thermodynamique P. Ricateau	81
	<i>Preliminary study of MHD converters operating in thermodynamic non-equilibrium</i>	
P/133	Nuclear magnetoplasma dynamic energy conversion B. C. Lindley	90
P/693	Thermal problems of gas-cooled reactors for magnetohydrodynamic power generation L. S. Dzung	98
Thermionic methods		
P/44	Conversion directe de la chaleur en électricité dans les piles B. Devin <i>et al.</i>	104
	<i>Direct conversion of heat into electricity in reactors</i>	
P/132	Fissionheated thermionic diodes P. D. Dunn, J. Adam	114
P/219	Thermionic diodes for direct-conversion reactors E. W. Salmi <i>et al.</i>	123
P/317	Теоретические и экспериментальные исследования, связанные с разработкой термоэлектронных реакторов-преобразователей И. И. Бондаренко <i>et al.</i>	131
	<i>Theoretical and experimental studies relating to the development of thermionic reactor-converters</i> I. I. Bondarenko <i>et al.</i>	
P/837	Высокотемпературный реактор-преобразователь «Ромашка» М. Д. Миллионщиков <i>et al.</i>	146
	<i>The high-temperature direct conversion reactor "Romashka"</i> M. D. Millionshchikov <i>et al.</i>	
Thermoelectric methods		
P/217	Isotopic power sources coupled with thermoelectric converters J. G. Morse, D. G. Harvey	155
P/218	Reactor direct-conversion units H. M. Dieckamp <i>et al.</i>	164
P/318	Термоэлектрические генераторы с изотопным источником тепла А. Н. Воронин <i>et al.</i>	176
	<i>Radioisotope-fuelled thermoelectric generators</i> A. N. Voronin <i>et al.</i>	

Études préliminaires sur les convertisseurs magnétohydrodynamiques fonctionnant hors d'équilibre thermodynamique

par P. Ricateau *

Le terme de conversion magnétohydrodynamique recouvre les procédés visant à extraire de l'énergie électrique d'un fluide en mouvement par interaction directe entre un champ magnétique et les porteurs de charge contenus dans ce fluide. Ce principe tout à fait général s'applique aussi bien à un liquide qu'à un gaz ionisé dense ou raréfié bien que les phénomènes élémentaires à l'échelle moléculaire soient dans chaque cas nettement différents.

En dehors de l'intérêt scientifique du phénomène il est évident que la conversion MHD est un moyen de transformer la chaleur des sources thermiques nucléaires ou non nucléaires en électricité. Il a été inscrit, en même temps que d'autres procédés nouveaux, dans les programmes de recherche du Commissariat à l'énergie atomique et de l'Electricité de France.

* Commissariat à l'énergie atomique.

La mise en œuvre du procédé peut se faire de deux manières:

La conversion magnétohydrodynamique en cycle ouvert (fig. 1a) cherche à utiliser directement les gaz issus de la combustion des combustibles courants: fuel ou charbon. La conversion en cycle fermé (fig. 1b) opère par échange thermique avec deux sources, la source chaude pouvant être ou non nucléaire. Bien que l'objet essentiel de cette communication soit ce dernier type de conversion, la conversion en cycle ouvert présente avec elle suffisamment de phénomènes d'intérêt commun pour qu'on dise brièvement les directions suivies par le CEA et l'EDF en cette matière.

Le CEA s'est associé pour cette étude avec l'Institut français du pétrole. Il a étudié avec lui sur un banc d'essai à kérosène d'une puissance thermique de l'ordre de 200 kW les propriétés électriques des gaz de

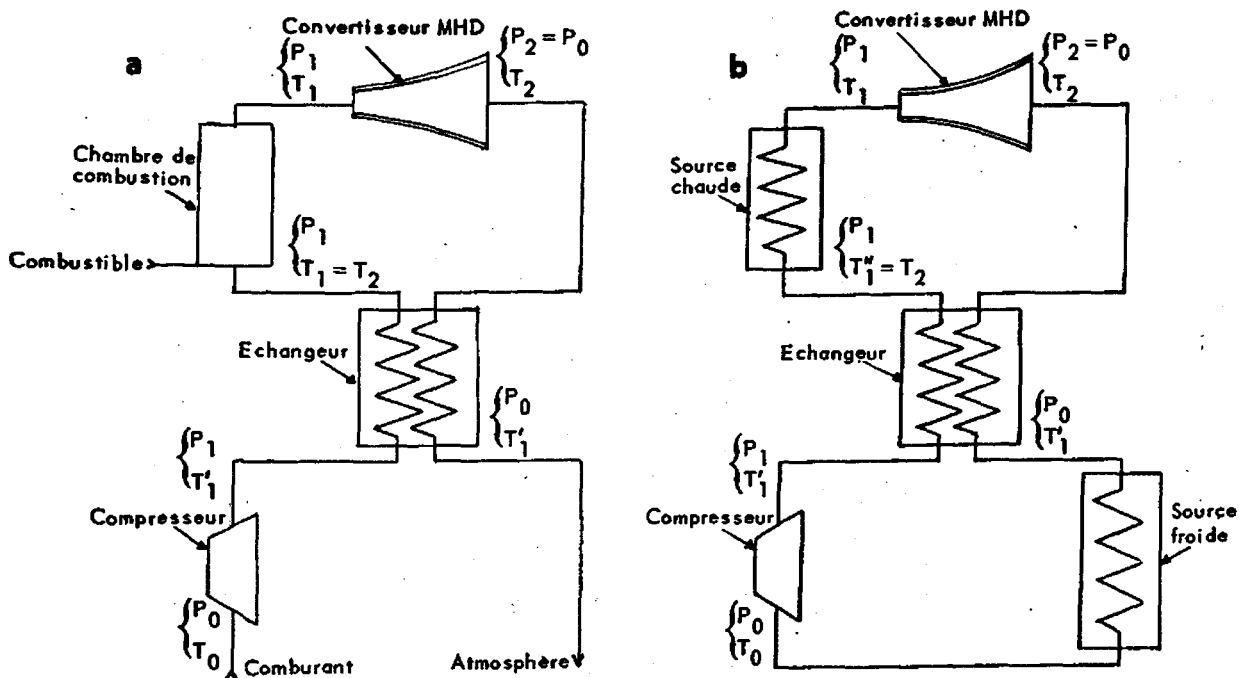


Figure 1. a) Cycle ouvert MHD idéal. Schéma de principe;
b) Cycle fermé MHD idéal. Schéma de principe

combustion convenablement ensemencés en potassium.

Devant les difficultés rencontrées pour obtenir un gaz de conductivité suffisante on en est venu à explorer les possibilités des écoulements non uniformes.

Un procédé consistant à utiliser une veine fluide constituée d'une succession de zones chaudes ($T_1 \approx 3\,000^\circ\text{K}$) et moins chaudes ($T_2 \approx 2\,000^\circ\text{K}$) permet d'obtenir une conductivité apparente très supérieure à la conductivité du gaz uniforme équivalent. En effet la croissance très rapide de la conductivité σ en fonction de la température entraîne:

$$\frac{\sigma(T_1) + \sigma(T_2)}{2} > \sigma\left(\frac{T_1 + T_2}{2}\right)$$

Des essais visant à mettre au point des procédés de modulation et à étudier la stabilité de la veine ainsi obtenue, se poursuivent sur des écoulements de cette nature. Un deuxième banc d'une puissance thermique de 5 MW permettra, le cas échéant, de développer ces essais dans des conditions plus satisfaisantes.

Toutes ces expériences permettent en outre d'étudier la tenue des matériaux isolants et conducteurs (électrodes) à la température de fonctionnement (jusqu'à $2\,700^\circ\text{C}$).

L'EDF a procédé à ses premiers essais sur un banc à kérosène d'une puissance thermique de 1 MW. Elle a spécialement étudié la tenue des matériaux, les méthodes d'introduction et de récupération de la semence alcaline. Elle procède maintenant à la mise en route d'une installation plus importante de 10 MW de puissance thermique mieux adaptée pour l'étude des structures. Les parois isolantes, constituées par des matériaux céramiques (silico-alumineux) projetés en couche mince sur des plaques d'acier refroidies à l'air atteignent en surface $1\,300^\circ\text{C}$. Les pertes thermiques qui en résultent seront évidemment importantes, mais on peut montrer que pour de très grosses installations (puissances thermiques > 100 MW) cette technique de parois refroidies n'entraîne pas de pertes trop importantes par rapport à la puissance de la veine (rapport surface de paroi/volume petit).

Ce banc d'essai permettra également d'expérimenter la technique des échangeurs à haute température.

Le convertisseur à cycle fermé utilise des gaz rares, argon ou hélium, ensemencés d'un élément alcalin, potassium ou césium à très faible concentration. Ces gaz atteignent plus facilement un haut degré d'ionisation à très basse pression, mais des considérations d'échange thermique font retenir des pressions voisines de la pression atmosphérique. Le principe du convertisseur à cycle fermé est illustré par la figure 1b.

Les perspectives de ces générateurs à gaz rares seront largement fonction des températures du gaz à l'entrée de la tuyère de conversion et de la conductivité du gaz. On peut résumer la situation de la façon suivante:

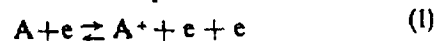
a) La température d'entrée est nécessairement limitée par les possibilités technologiques de la source chaude.

b) La densité de puissance est proportionnelle à la conductivité du gaz.

Il s'agit donc d'obtenir d'abord une conductivité aussi élevée que possible dans un domaine de température concevable pour la source par exemple $1\,500$ à $2\,300^\circ\text{K}$. Ceci semble pouvoir être obtenu dans un gaz ensemencé en alcalin grâce au phénomène de chauffage électronique sous l'effet du champ électrique propre du convertisseur (effet Kerrebrock). C'est essentiellement cette question qui a été étudiée par les deux laboratoires.

IONISATION PAR ÉCHAUFFEMENT ÉLECTRONIQUE

a) L'ionisation naturelle d'un gaz ensemencé non soumis à un champ électrique est liée à la micro-réversibilité des mécanismes d'ionisation et de recombinaison des atomes de semence. Elle est déterminée par la pression partielle de semence et par la température du gaz. On a fait observer que dans le domaine propre à la conversion MHD le mécanisme dominant était l'équilibre d'ionisation par collision électronique.



Etant donné le rapport des vitesses entre électrons et atomes (ou ions) de même température, les paramètres d'impact ne dépendent pratiquement que de l'énergie électronique. On peut donc présumer que l'équilibre peut être calculé à l'aide de la température électronique même si celle-ci s'écarte de la température du reste du gaz.

b) Dans les gaz moléculaires des valeurs élevées de E/p (rapport du champ électrique à la pression) sont nécessaires pour échauffer les électrons à une température supérieure car les électrons cèdent facilement de l'énergie aux niveaux d'excitation moléculaires relativement bas. Dans les gaz mono-atomiques au contraire on calcule que même à pression atmosphérique les électrons peuvent acquérir une énergie supplémentaire comparable à l'énergie thermique du gaz neutre sous l'action de champs électriques peu élevés, de l'ordre de quelques centaines de volts par mètre.

On se trouve sensiblement dans cette situation dans le convertisseur MHD à gaz rare où la théorie simple donne la formule suivante:

$$\frac{T_e - T_g}{T_g} = \frac{5}{9} (1 - K)^2 \mu^2 B^2 M^2 \quad (2)$$

avec les significations suivantes:

T_g, T_e : température du gaz, des électrons;
 K : facteur de charge (rapport de la tension aux bornes à la fem interne — de l'ordre de 0,5 à 0,8);

μ : mobilité électronique;
 B : induction magnétique;
 M : nombre de Mach.

B n'apparaît ici que dans le produit μB . On montre que cette quantité est aussi le rapport de la pulsation cyclotron électronique $\omega_c = \frac{eB}{m}$ à la fréquence ν de

collision électron-neutre. L'équation (2) montre que, pour obtenir un écart significatif de température entre T_e et T_p , le produit de μB par le nombre de Mach doit être notablement supérieur à 1.

La théorie du chauffage électronique, esquissée ici, peut être vérifiée par deux types d'expériences:

1) En l'absence de champ magnétique, en vérifiant un à un chacun des facteurs qui pourraient intervenir dans le mécanisme du chauffage: distribution électronique non maxwellienne, présence d'impuretés moléculaires, intervention de processus de recombinaison différents de celui de l'équation (1).

2) En présence de champ magnétique, car $\mu B > 1$ implique une modification importante de l'écriture de la loi d'Ohm (effet Hall). En effet, dans ce cas, $\omega_c > \nu$ et l'électron décrit un arc de cercle relativement grand entre deux collisions. En l'absence totale de collisions l'électron se déplacerait en moyenne dans une direction perpendiculaire à la fois à \vec{E} et à \vec{B} . En présence de collisions nombreuses ($\nu \gg \omega_c$) il se déplace dans la direction de \vec{E} ; dans le cas intermédiaire où nous nous plaçons, la direction qu'il prend fait un angle θ avec le champ \vec{E} et on montre que $\text{tg } \theta = \mu B$. Il en résulte que la loi d'Ohm doit s'écrire alors: $\vec{j} = \|\sigma\| \vec{E}$; le tenseur $\|\sigma\|$ ayant la forme (système d'axes où $\vec{Oz} \parallel \vec{B}$):

$$\|\sigma\| = \begin{vmatrix} \sigma^1 & -\sigma^2 & 0 \\ \sigma^2 & \sigma^1 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_0 \end{vmatrix} \quad (3)$$

où la théorie élémentaire donne à σ_1 et σ_2 les formes:

$$\sigma_1 = \sigma_0 \frac{1}{1 + \mu^2 B^2} \quad (4)$$

$$\sigma_2 = \sigma_0 \frac{\mu B}{1 + \mu^2 B^2} \quad (4')$$

Nous allons décrire brièvement ici les études faites en France sur cette ionisation par échauffement électronique et sur son application à la conversion magnétohydrodynamique.

ÉTUDE DE L'ÉCHAUFFEMENT ÉLECTRONIQUE SOUS L'EFFET D'UN CHAMP ÉLECTRIQUE

a) L'Electricité de France a mis en œuvre au Centre de Fontenay un chalumeau à plasma [1] alimenté en courant industriel par un transformateur

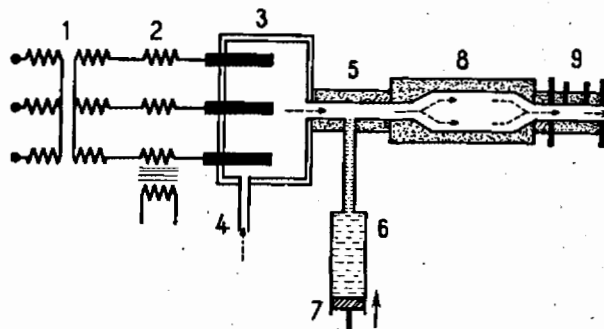


Figure 2. Schéma de principe de l'installation d'étude de la conductivité des gaz

1: Transformateur; 2: Inductance réglable; 3: Plasmatron; 4: Arrivée du gaz; 5: Chambre de vaporisation; 6: Réservoir de semence; 7: Piston; 8: Chambre de mélange; 9: Cellule de mesure

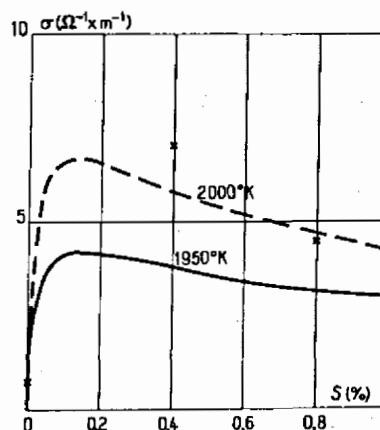


Figure 3. Conductivité électrique d'argon ensemené au potassium en fonction du taux d'ensemencement

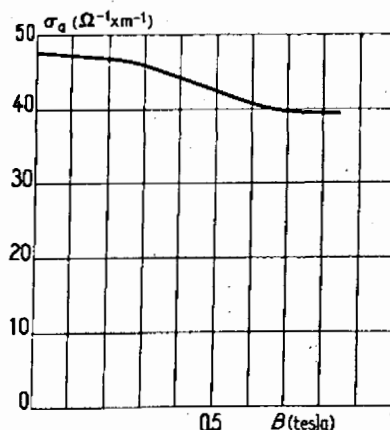


Figure 4. Variation de la conductivité apparente σ_a en fonction de l'induction magnétique

triphasé de 500 kVA (fig. 2). Alimenté en argon, il débite environ 7 g par seconde à une température de quelques milliers de degrés. On ensemenç ce gaz

à la sortie de l'appareil par un mélange sodium-potassium à 85% de potassium injecté à l'état de vapeur. Une chambre à turbulence en aval de l'injecteur régularise à la fois la concentration de semence et les fluctuations de température dues au fonctionnement triphasé du plasmatron.

Pour étudier la conductivité du gaz on a adapté à cette source de gaz chauds une cellule de mesure: deux électrodes injectent dans le canal de mesure un courant alternatif parallèle à l'écoulement et deux sondes de potentiel permettent de déterminer le champ électrique. Lorsqu'on désire apprécier l'importance de l'effet Hall sous l'effet d'un champ magnétique une troisième sonde peut mesurer la composante transversale du champ électrique.

La température peut être mesurée optiquement en sortie de cellule par comparaison de l'intensité d'une des raies du doublet du sodium à une source de référence.

La conductivité σ_0 doit présenter un maximum lorsqu'on fait croître le taux de semence par suite de deux effets contraires: augmentation de la densité électronique et baisse de mobilité due à la forte section efficace de collision entre électron et atome de potassium. On constate expérimentalement cet effet sur la figure 3 où les points expérimentaux sont mesurés à une température de $1950 \pm 100^\circ\text{K}$.

Les mesures effectuées en présence de champ magnétique ont permis de montrer que la quantité $\sigma_s = \frac{\sigma_1 + \sigma_2^2}{\sigma_1}$ qui d'après la théorie simple (équations 4 et 4') serait égale à σ_0 , varie en fait avec l'intensité du champ magnétique (fig. 4). Ceci est conforme à une étude théorique un peu plus élaborée [2].

Enfin, on a cherché dans cette cellule à mettre en évidence l'échauffement électronique prévu par la théorie énoncée dans le premier paragraphe. On a

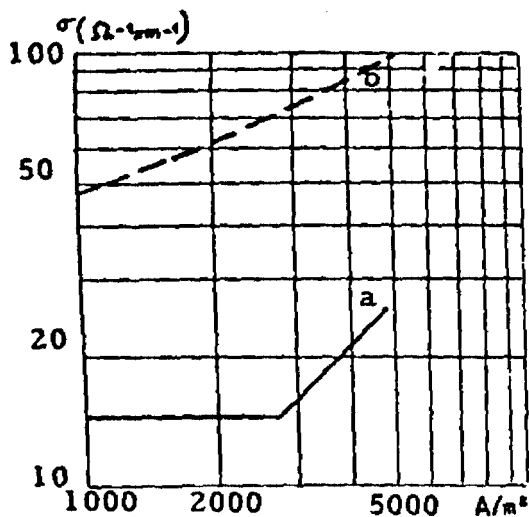


Figure 5. Variation de la conductivité en fonction de la densité de courant:

a) courbe expérimentale; b) courbe théorique

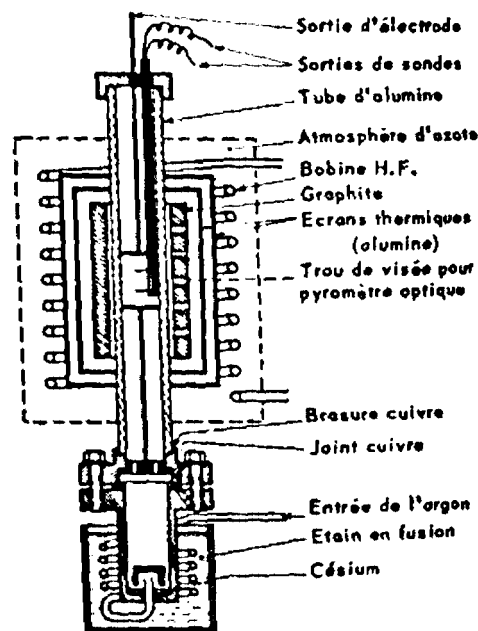


Figure 6. Enceinte de mesure

donc relevé le champ électrique E pour différentes valeurs du courant injecté J . La figure 5 donne les variations de $\sigma = J/E$ en fonction de J . On note une brusque augmentation à partir d'une certaine valeur du courant.

b) L'expérience de mesure de conductivité entreprise à Saclay [3] a spécialement pour but d'étudier, en l'absence de champ magnétique, les circonstances physiques de l'échauffement électronique de l'argon ensemencé au césium. L'enceinte de mesure (fig. 6) est un tube d'alumine pure maintenu dans un manchon de graphite chauffé par HF et soigneusement isolé thermiquement. L'argon est ensemencé par borbottage dans un bain de césium thermostaté à la température donnée par la pression partielle désirée. On maintient dans le tube de mesure un écoulement laminaire de très faible débit pour balayer les impuretés désorbées tout en permettant à l'équilibre thermique de s'établir. Deux électrodes plates en tungstène amènent le courant, deux fils de tungstène mesurent le champ électrique.

Un pulseur applique aux électrodes une impulsion rectangulaire de courant de durée variable superposée à un courant constant de très faible valeur (le courant I et les tensions entre sonde U_s sont relevés à l'oscilloscope (fig. 7). Par ce procédé on mesure 4 paramètres:

- La conductivité à l'équilibre entre les impulsions $\sigma (t > t_3)$
- La conductivité hors d'équilibre entre les impulsions σ (au temps t_2)
- Le temps d'établissement du régime hors d'équilibre $\tau = t_2 - t_1$
- Le temps de relaxation après impulsion $\tau' = t_3 - t_2$

La température, 1790°K dans les présents essais, est mesurée par pyrométrie de la paroi d'alumine au centre de l'appareil.

Les principaux résultats sont les suivants:

a) La conductivité à l'équilibre varie avec le taux d'ensemencement.

b) On a tracé la courbe $\frac{P_{cs}^{1/2}}{\sigma}$ en fonction de la pression partielle de césium P_{cs} . La théorie montre que cette courbe doit être en fait une droite dont la pente et l'ordonnée à l'origine dépendent de Q_A et Q_{cs} valeurs apparentes moyennes des sections efficaces de collision de l'électron avec les atomes d'argon et de césium. Les points relevés s'alignent effectivement et on a pu en déduire les valeurs de Q_A et Q_{cs} pour 1790°K:

$$Q_A = 0,33 \cdot 10^{-20} \text{m}^2$$

$$Q_{cs} = 420 \cdot 10^{-20} \text{m}^2$$

c) De la mesure du temps de relaxation τ' on déduit la valeur du coefficient de recombinaison à 1790°K et 0,184% d'ensemencement correspondant à une densité électronique de $4 \cdot 10^{18} \text{m}^{-3}$

$$\alpha = 1,5 \cdot 10^{-16} \text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$$

Cette valeur est en bon accord avec l'expression théorique donnée par McNabb [4] du coefficient de recombinaison pour le processus décrit par l'équation (1).

d) Enfin on a porté sur un graphique (fig. 8) les caractéristiques $J(E)$ déduites des mesures (au temps t_2) pour différentes valeurs de $\alpha = P_{cs}/P$. L'échauffement électronique apparaît très nettement sur ces courbes. On constate d'autre part que la conductivité s'améliore lorsqu'on baisse α jusqu'à $3 \cdot 10^{-4}$. Pour la concentration la plus basse ($7 \cdot 10^{-5}$) on remarque deux changements de concavité, le premier (vers

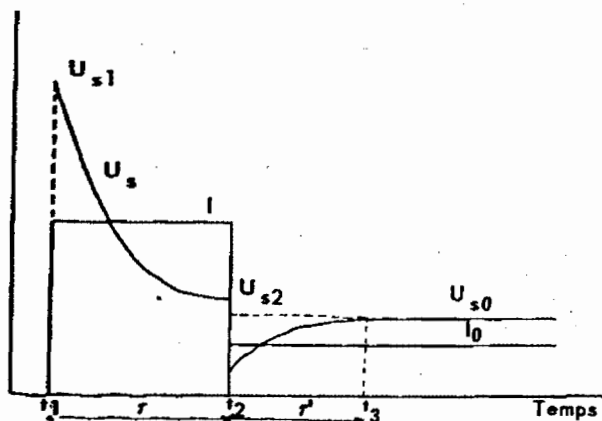


Figure 7. Méthode de mesure. Entre les temps t_1 et t_2 on applique une impulsion de courant d'amplitude constante. À partir de t_2 on fait passer dans le gaz un courant constant $I_0 \ll I$.

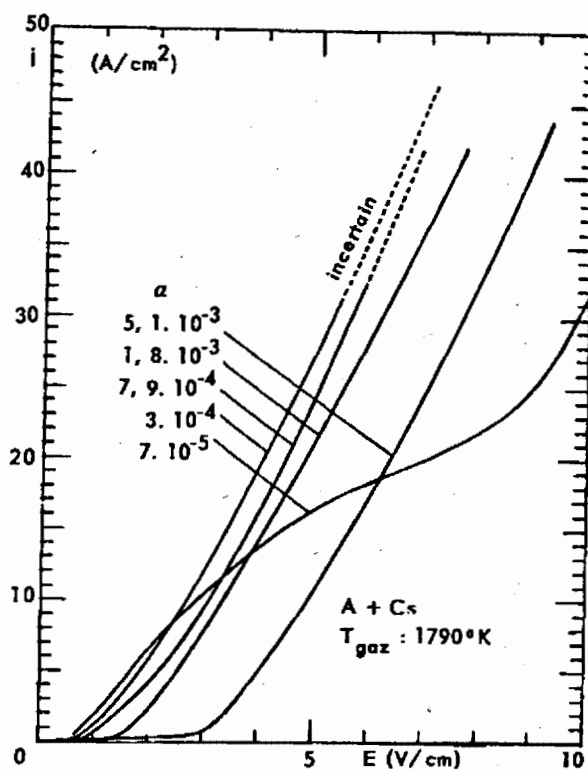


Figure 8. Densité de courant en fonction du champ électrique, hors d'équilibre (valeurs mesurées)

300 V/m) correspondant à l'ionisation complète du césium, le deuxième (vers 700 V/m) à un début d'ionisation de l'argon lui-même.

Ces résultats, en bon accord avec la théorie, sont jusqu'ici assez encourageants; ils permettent d'espérer une conductivité acceptable à une température raisonnable. Mais on peut craindre que la présence d'impuretés moléculaires au sein du gaz n'entrave l'échauffement électronique et c'est sur ce point très important que doivent porter les prochaines expériences.

L'application du principe de non-équilibre aux convertisseurs suppose en fait d'après la formule (2) un effet Hall important ($\mu B > 1$). La structure du convertisseur doit être adaptée à ces conditions particulières. On rétablit une distribution convenable du courant en annulant la composante transversale du champ électrique (on annule ainsi la composante du courant qui ne travaille pas). On obtient ce résultat par une subdivision convenable des électrodes et par des connexions équipotentielles entre les électrodes élémentaires se faisant face. Il est évident que le paramètre important est le rapport λ entre le pas des électrodes et la dimension transversale du canal.

Dans une étude théorique, faite au Centre de Fontenay, on a cherché à déterminer l'importance de ce paramètre de subdivision sur les performances du convertisseur à argon ensemencé de potassium compte tenu de la théorie simple de l'échauffement

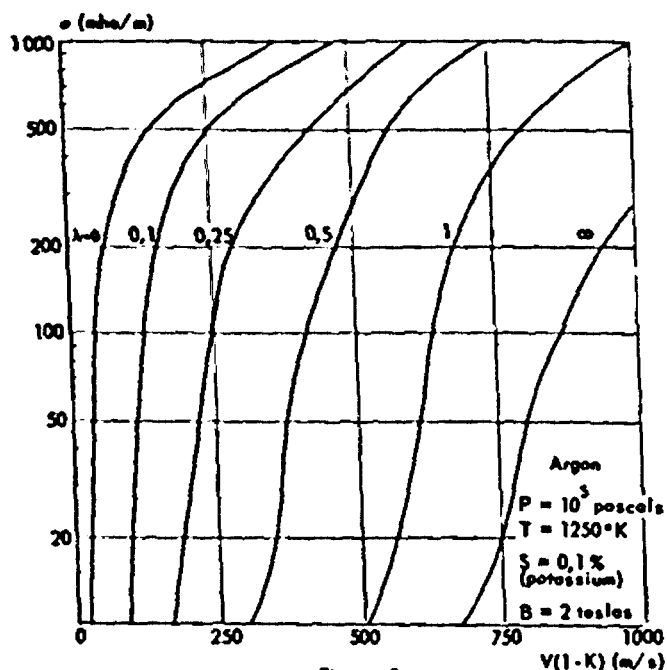


Figure 9

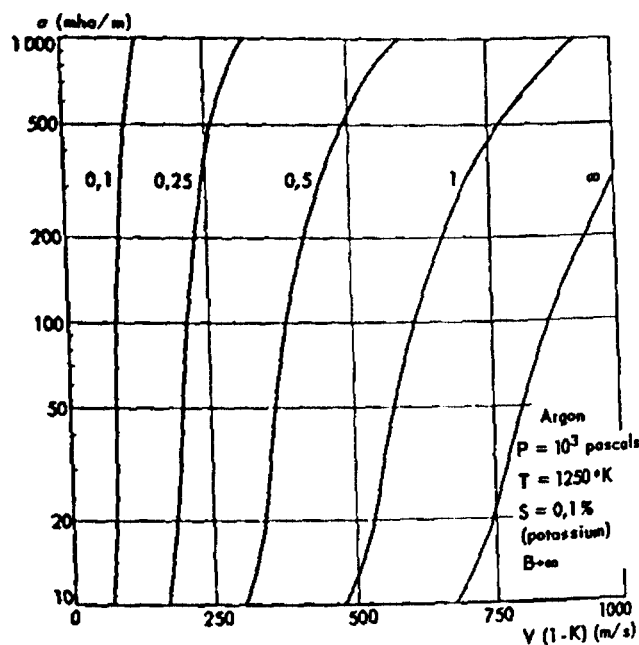


Figure 10

électronique. Le résultat de cette étude apparaît dans les figures 9 et 10. L'abscisse est ici le produit de la vitesse du gaz par le facteur $(1-K)$, K étant le paramètre de charge. Les figures correspondent respectivement à une induction de 2 teslas et à une valeur infinie (qui correspond pratiquement à des cas de bobinages supraconducteurs). On peut remarquer que pour des valeurs élevées du pas relatif il ne sert à rien d'appliquer des inductions d'intensité élevée.

Il est clair que les études de conductivité d'une part, les études de fonctionnement théorique et de structure du convertisseur à électrons chauffés sont des études partielles qui laissent un certain nombre d'incertitudes. Il est indispensable de contrôler le mécanisme réel de la conversion dans une expérience d'ensemble représentant aussi fidèlement que possible les conditions physiques de fonctionnement du convertisseur projeté. Une expérience de ce genre est en cours de montage au Centre de Saclay [5].

On a choisi comme gaz l'hélium ensemencé au césium. On a cherché à obtenir à la fois un grand débit de gaz de façon à minimiser l'influence perturbatrice des parois et une très grande pureté pour éviter un blocage de l'échauffement électronique par les impuretés moléculaires. L'appareil est conçu comme une soufflerie à rafale (fig. 11 et 12) le gaz étant transféré d'un récipient haute pression à un récipient vide. L'écoulement peut être considéré comme permanent pendant 0,1 s. Ce procédé a été choisi parce qu'il permet l'étude directe de la conversion en régime établi sans avoir à s'embarrasser des nombreux problèmes technologiques du cycle fermé réel.

Le gaz est ensemencé à une concentration précise dans le récipient amont de 4 m^3 puis libéré par l'ou-

verture d'une vanne d'échappement à action rapide (0,01 s). Il est porté au passage à 1700°K par un échangeur en tungstène à chauffage électrique, puis surchauffé à 2200°K par effet Joule dans le gaz lui-même avant d'entrer dans la tuyère de conversion. La puissance thermique traversant la tuyère de conversion atteint 1 MW pour un débit de 100 g/s. Grâce aux précautions prises — étuvage à 400°C des enceintes métalliques, ligne de purification du gaz, ligne de purification du césium — on compte maintenir un taux d'impureté inférieur à 10 ppm.

BIBLIOGRAPHIE

1. Croitoru, Z., et de Montardy, A., *Phénomènes de contact, senseur de conductivité et température des électrons dans un gaz ionisé*, Revue générale de l'Electricité, 72, 429-438 (1963).
2. Croitoru, Z., Proc. of the Intern. Conf. on Gas discharges and the electricity supply industry, CERL, Leatherhead, publiés chez Butterworths, Londres (1962).

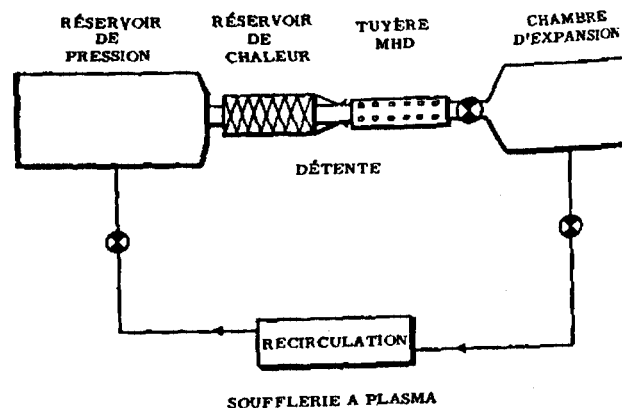


Figure 11. Soufflerie à plasma. Schéma de principe

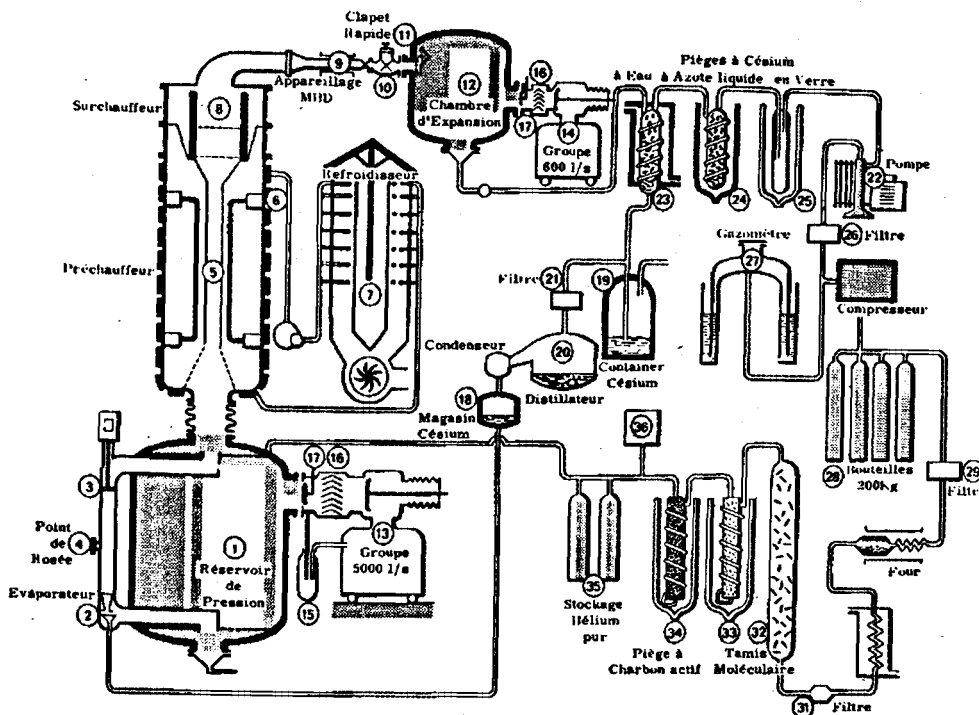


Figure 12. Schéma général

3. Labois, E., et Lemaire, A., *Conductivité électrique à l'équilibre et hors d'équilibre d'un gaz ensemené*, CR du symposium intern. sur la production MHD d'énergie électrique, Paris (juillet 1964).
4. McNabb, I. R., et Robinson, C. A., *Electron-ion recombination in MDH generators*, C.R. du symposium de New-

castle, Magnetoplasmadynamic electrical power generation, The Black Friars Press Ltd., Leicester, 153-156 (1963).

5. Le Blan, L., et Zettwoog, P., *L'installation de conversion MHD en cycle fermé du Commissariat à l'énergie atomique*, C.R. du symposium intern. sur la production MHD d'énergie électrique, Paris (juillet 1964).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/45 France

Preliminary study of MHD converters operating in thermodynamic non-equilibrium

By P. Ricateau

In addition to the open-cycle magnetohydrodynamic (MHD) converters, which convert the thermal energy of combustion gases, a closed-cycle converter which can work off any high-temperature source of heat, especially nuclear sources, is being carefully studied.

Before proceeding to a practical study of the power station as a whole, the performance of the converter itself must be fully defined. This largely depends on the conductivity of the gas used, but conductivity must not be achieved at the price of a temperature which is technically unacceptable from the point of view of the heat-exchanger.

In the conversion fluid, a readily ionisable seeding vapour, such as that of caesium or potassium, is

mixed with a carrier gas, helium or argon. Purely thermal ionisation is efficient only at temperatures above 2 500 °K, whereas the electric field created by induction in the converter can, under certain conditions, raise the electron temperature and give rise to an ionisation rate well above the equilibrium value. The gas can then be ionised at a moderate temperature. Studies are at present being carried out to clarify the conditions required to induce extra-thermal ionisation in seeded rare gases.

Measurements have been made with the help of a 3-phase, 500-kVA plasmatron fed with potassium-seeded argon. The gas leaving the apparatus is fed into a channel in which tensor components of conductivity in the presence of a magnetic field can be measured. The values found under conditions of thermodynamic equilibrium confirm the simple theory. This is not the case when the electrons are heated.

Measurements of the same kind were also made by another method in caesium-seeded helium contained

in an isothermal vessel at 1 900 °K. In this case, too, the equilibrium values are in good agreement, but the extent of non-equilibrium ionisation seems to be lower than expected.

The effect of heating the electrons inside the converter using an argon-potassium mixture was considered theoretically. It was shown that the electrode-set must be accurately and closely spaced along the channel, and that in an argon-potassium mixture electron heating can be induced by magnetic fields of from 1 to 2 Ts.

It is intended to build a large test-bench working on the hot-shot principle. The gas generator will deliver shots of caesium-seeded helium at a temperature of 2 100 °K. The shot will last for one-tenth of a second, and the instantaneous thermal power will reach 1 MW.

A/45 Francia

Предварительное изучение магнитоаэродинамического преобразователя, работающего в замкнутом цикле

П. Рикато

Наряду с изучением магнитоаэродинамических преобразователей с открытым циклом, которые преобразуют тепловую энергию, выделяющуюся при сгорании газом, ведутся исследования преобразователей с закрытым циклом, в которых можно использовать любой высокотемпературный источник тепла, в том числе ядерного источника.

Прежде чем заниматься практическим изучением электростанции в целом необходимо исследовать характеристики самого преобразователя. Эти свойства в значительной степени зависят от проводимости используемого газа. Однако эта проводимость должна достигаться не за счет температуры, технически непримлемой для теплообменника.

Необходимую степень ионизации рабочего тела удалось получить за счет добавки в гелий или аргон легко ионизируемых материалов, таких, как цезий или калий. Чисто термическая ионизация становится эффективной выше 2500° K, и, наоборот, электрическое поле, введенное индукцией в преобразователе, может при определенных условиях повысить электронную температуру и вызвать значительно более высокую ионизацию по сравнению с равновесной ионизацией. Это позволяет получать ионизированный газ при умеренной температуре. Целью настоящей работы является определение условий, позволяющих создавать такую неравновесную ионизацию инертных газов с добавкой ионизирующих веществ.

Измерения были произведены с помощью трехфазного плазматрона в 500 квв на аргоне с добавкой калия. Этот аппарат работал в камере, позволяющей производить измерения тензорных компонентов проводимости при наличии магнитного поля. Полученные в условиях термодинамического равновесия значения подтверждают простую теорию. В случае электронного нагрева дело обстоит иным образом.

Производились аналогичные измерения в гелии с добавкой цезия в изотермическом корпусе при 1900° K. В этом случае значения равновесия совпадают очень точно, однако неравновесная ионизация была ниже ожидаемых значений.

Теоретически был изучен эффект электронного нагрева внутри преобразователя при наличии аргона и калия. Это исследование показало необходимость тщательного разделения электродов вдоль канала, а также, что электронный нагрев в аргоне — калии может быть вызван магнитными полями порядка 1—2 тесла.

Предусмотрено создание экспериментальной установки, основанной на принципе, аналогичном принципу струи с неравномерным потоком. Газовый генератор будет давать потоки гелия с добавкой цезия при температуре в 2100° K. Скорость прохождения газа составит 0,1 сек, а мгновенная тепловая мощность достигнет 1 Мвт.

A/45 Francia

Estudios preliminares sobre los convertidores magnetohidrodinámicos que funcionan fuera del estado de equilibrio termodinámico

por P. Ricateau

A la par de los convertidores magnetohidrodinámicos de ciclo abierto que transforman la energía térmica contenida en los gases de combustión, merece un detenido estudio el convertidor de ciclo cerrado, capaz de extraer su energía de cualquier fuente de calor a alta temperatura y, en particular, de las fuentes nucleares.

Antes de proceder a un estudio práctico de la instalación en conjunto, es preciso delimitar exactamente las características de funcionamiento del propio convertidor. Dichas características dependen en gran medida de la conductividad del gas utilizado. Sin embargo, esta conductividad no debe alcanzarse a expensas de una temperatura técnicamente inadmisibles en el intercambiador de calor.

Para constituir el fluido de conversión, es necesario acudir a una asociación de gas portador (helio o argón) con un elemento «germen» fácilmente ionizable (cesio o potasio). La ionización puramente térmica sólo adquiere eficacia a partir de los 2 500 °K, mientras que el campo eléctrico creado por inducción en el convertidor puede, en ciertas condiciones, acre-

centar la temperatura electrónica y provocar una ionización muy superior al valor de equilibrio. Resulta entonces factible ionizar el gas a temperatura moderada. Actualmente se procura precisar cuáles son las condiciones que permiten esta ionización, fuera del estado de equilibrio, en los gases raros sembrados.

Se han efectuado mediciones mediante un plasma-trón trifásico de 500 kVA, alimentado mediante argón sembrado con potasio. El aparato alimenta a su vez una célula que permite medir las componentes tensoriales de la conductividad en presencia del campo magnético. Los valores hallados en estas condiciones de equilibrio termodinámico confirman los resultados de la teoría simple. No ocurre lo mismo cuando interviene el efecto del calentamiento electrónico.

Aplicando otro método, se efectuaron determinaciones de la misma índole en el helio sembrado con cesio contenido en un recinto isotérmico cuya temperatura se elevó hasta los 1 900 °K. También en este

caso, los valores de equilibrio concuerdan muy satisfactoriamente, pero la ionización fuera del estado de equilibrio es inferior, al parecer, a los valores previsibles.

En un estudio teórico, se examinó el efecto del calentamiento electrónico en el interior del convertidor, para el caso del argón y el potasio. Los resultados indican que es importante que los electrodos estén finamente fraccionados a lo largo del canal. Además, demuestran que es posible provocar el calentamiento electrónico de la mezcla argón-potasio mediante campos magnéticos con inducciones de 1 a 2 teslas.

Se ha proyectado instalar un gran banco experimental cuyo funcionamiento se basaría en un principio análogo al de las máquinas soplantes de ráfagas. El generador de gas producirá ráfagas de helio sembrado con cesio a una temperatura de 2 100 °K. El paso del gas durará $\frac{1}{10}$ de segundo y la potencia térmica instantánea ascenderá a 1 MW.

Nuclear magnetoplasmadynamic energy conversion

By B. C. Lindley *

PRINCIPLES

If a stream of electrically-conducting fluid flows through a transverse magnetic field, an electric field is induced in a direction mutually perpendicular to the flow and magnetic field, with a consequent possibility of extracting electrical power. In principle the MPD generator is exactly analogous to a conventional alternator in which the directed kinetic energy of the metallic conductors in the rotor is converted to electrical power. The requirement for transforming thermal to directed energy means that the working fluid, which becomes the prime mover, must be a gas.

For the gaseous working fluid to conduct electricity, a high concentration of free electrons must be present to act as current carriers. Gaseous coolants for high temperature (say, above 900 °K) reactors, such as helium or nitrogen, are electrical insulators even at substantially higher temperatures, the concentration of free electrons being negligible. High temperature and low pressure enhance dissociation of gas atoms to ions and free electrons, but it is only at extremely high temperatures (above 10 000 °K) that most gases become appreciably ionized.

Gas temperatures produced by solid-core fission reactors are unlikely to exceed about 2 500 °K, if only on materials considerations. Consequently, for MPD generation to be feasible, electrically charged particles must be introduced by auxiliary means. Probably the most important method is to inject ('seed' with) a small concentration of a substance which is readily ionized (such as the alkali metals: sodium, potassium, rubidium, caesium) resulting in a disproportionately high increase in electrical conductivity. At temperatures up to 3 000 °K, the electrical conductivity increases very rapidly with the temperature (approximately as the tenth or eleventh power) and also inversely as the square root of the absolute pressure.

MPD GENERATOR

The generator configuration at present considered to be the most suitable for electrical energy extraction

* International Research & Development Co, Ltd., Newcastle-upon-Tyne.

from a plasma flow consists of a rectangular section duct with a magnetic field transverse to the flow direction. The power output is taken off via electrodes mounted in the duct walls. Several arrangements of electrodes and electrical connections to the external load are possible [1, 2].

In the simplest generator concept, consisting of two insulating walls and two electrodes, performance is limited by the Hall effect ** which gives rise to axial currents, although there should be no electric field parallel to the flow. The parameter $\omega_e \tau_e$ (where $\omega_e = eB/m$ is the electron cyclotron frequency and τ_e is the time interval between collisions of electrons with heavy particles in the plasma flow) is a measure of the preponderance of the Hall effect; thus, if $\omega_e \tau_e > 1$, the Hall effect becomes significant. High values of $\omega_e \tau_e$ correspond to high magnetic fields and/or low gas pressures.

In one type of generator, axial current flow (and hence the Hall effect) is suppressed by segmenting the electrodes (Fig. 1). An axial electric field is present, and pairs of electrode segments are connected through separate electrical loads. The sub-division of the electrical load into a large number (100 or more in a practical generator) of sub-loads represents a serious disadvantage although, in principle, operation at any value of $\omega_e \tau_e$ is feasible.

Table 1 shows performance parameters for a segmented-electrode generator with constant velocity plasma flow, an operating condition which is desirable for a number of practical reasons. The electric field set up in the plasma is proportional to uB and the power density of $\sigma u^2 B^2$. As the plasma flow is accelerated to give a high value of u , the gas temperature falls, with a consequent decrease in electrical conductivity. It is thus possible to maximize σu^2 and so obtain the highest power density. A flow Mach number of about 0.6 is found for helium under typical conditions. The power density is also proportional to B^2 so that there is a considerable incentive to go

** The Hall effect occurs when electric currents flowing in a conductor are subjected to a magnetic field. The components of the electric field and current density in the plane perpendicular to the magnetic field are then not parallel but displaced by an angle characteristic of the magnetic flux and the properties of the conductor.

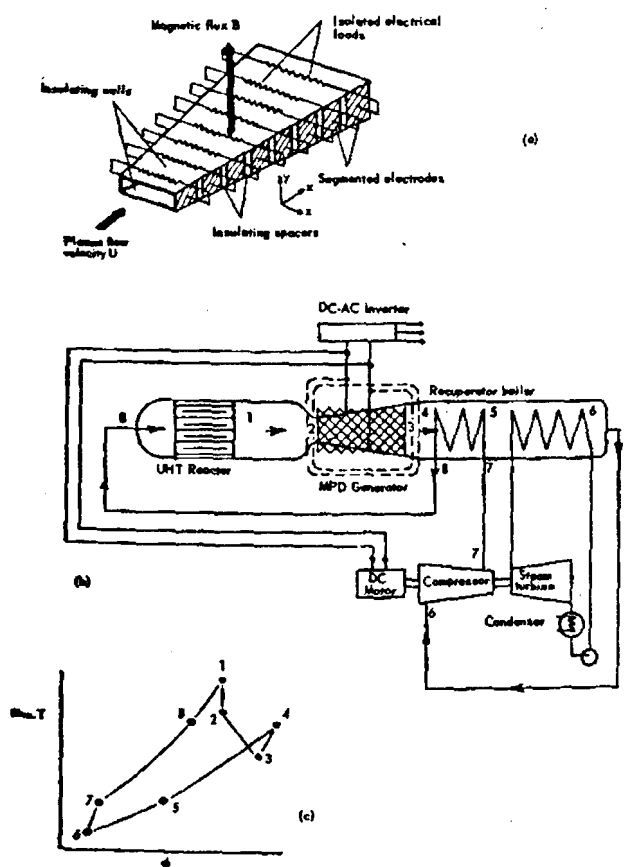


Figure 1. MPD generator systems: (a): segmented-electrode generator; (b): recuperative nuclear-MPD-steam cycle; (c): temperature-entropy and enthalpy-entropy diagram

- 1-2 MPD generator inlet nozzle
- 2-3 MPD generator
- 3-4 Diffuser
- 4-5 Recuperator (hot side)
- 5-6 Steam-raising unit
- 6-7 Compressor
- 7-8 Recuperator (cold side)
- 8-1 UHT reactor

to superconducting field coil systems which may allow B values of 10 Wb/m^2 or higher. The technical feasibility and capital cost of building large superconducting field coil systems have not yet been demonstrated.

EXPERIMENTAL INVESTIGATIONS

General

Research on closed cycle MPD generators is in progress, in the United States at Westinghouse Research and Development Center [3], the NASA Lewis Research Center, the Allison Division of General Motors Corporation and the Martin Marietta Corporation, and in the United Kingdom at International Research and Development [4-7] and at the Atomic Energy Research Establishment, Harwell.

In small-scale experimental generators the materials problem is particularly acute: if duct cooling is employed, the heat loss from the flow is so great that the temperature (and hence the electrical conductivity) falls extremely rapidly and very little electrical power can be extracted. As the size of duct increases the surface-to-volume ratio decreases and the heat losses become relatively less. The size factor is thus the main difficulty in undertaking experimental development. For reasons of cost, the early experimental units are limited in size: the duct walls must operate at nearly the gas temperature to reduce heat losses with the attendant materials deterioration which limits the duration of the experiment and makes the results suspect. Another factor is that the ratio of electrical output to heat input is very small and the flow conditions are so little altered by electrical energy extraction that the experiment does not prove whether plasmadynamic stability is assured if a large fraction of the power is extracted. Consequently, although small-scale experiments are of value, units of appreciable size must be demonstrated before MPD power is considered a realistic proposition.

Plasma properties

At the particle energies which apply (usually less than 1 eV), data on thermal ionization and the corresponding charged particle concentrations, collision cross sections for electrons, ions, atoms and molecules, and ionization, recombination and attachment coefficients are either non-existent or conflicting.

Table 1. Performance parameters for a segmented-electrode MPD generator
(See nomenclature on page 95 for symbols)

Parameter	Unit	Equation
$J_x = 0$	A/m^2	(1)
$J_y = 0$	A/m^2	(2)
$J_z = -\frac{1}{1+(\omega_1\tau_1)(\omega_e\tau_e)} \sigma u B(1-n)$	A/m^2	(3)
$J_{L_{ss}} = -\frac{1}{1+(\omega_1\tau_1)(\omega_e\tau_e)} \sigma u B$	A/m^2	(4)
$E'_x = E_x = -\frac{\omega_e \tau_e}{1+(\omega_1\tau_1)(\omega_e\tau_e)} u B(1-n)$	V/m	(5)
$E'_y = E_y = 0$	V/m	(6)
$E_x = -uBn$	V/m	(7)
$E_z = uB(1-n)$	V/m	(8)
$E_{Loc} = uB$	V/m	(9)
$\frac{dp^a}{dx} = \sigma u B^2(1-n)$	newton/m^2	(10)
$P = \frac{1}{1+(\omega_1\tau_1)(\omega_e\tau_e)} \sigma u^2 B^2 n(1-n)$	W/m^2	(11)
$\eta = n$	—	(12)

^a $\frac{dp}{dx} = J_z B$ neglecting inertial and friction forces; $\omega_1 \tau_1 (\omega_e \tau_e) \ll 1$ is also assumed.

A series of experiments was designed at IRD for measurements of these parameters in static plasmas, both under thermal equilibrium and non-equilibrium conditions, and to establish diagnostic techniques which could also be applied to the closed-cycle loop, discussed below. There are four principal plasma physics experiments: microwave studies of thermally-excited plasmas; an atomic beam experiment; microwave studies of photo-ionization and recombination; and electrical conductivity studies (in which evidence of non-equilibrium ionization has been found).

At AERE, Ralph [8] is working on voltage-current characteristics of static seeded argon plasmas and has obtained evidence of non-equilibrium ionization.

Generator systems

The IRD closed cycle helium-caesium loop (Fig. 2) was the first of its kind to be initiated; the nuclear reactor is simulated by a graphite high temperature electrical resistance heater. When fully operational, the power generation experiment will yield data on

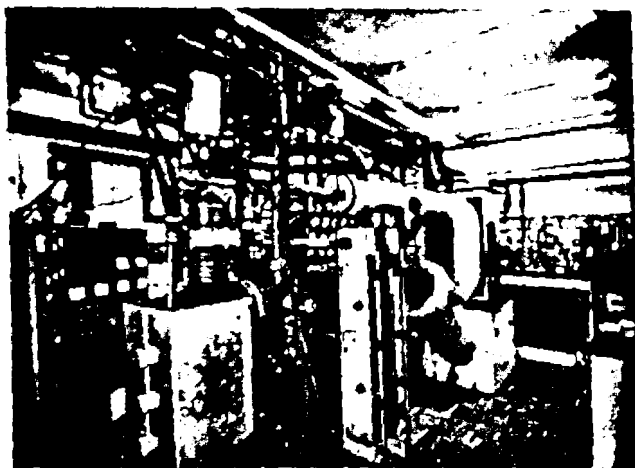


Figure 2. IRD closed cycle helium-caesium MPD generator loop

MPD power processes for a wide range of experimental variables. In particular, closed-cycle steady state operation allows the investigation of different working fluids (for example, the various inert gas-alkali metal vapour combinations) under controlled purity conditions, and should establish conclusive evidence whether non-equilibrium ionization can be promoted by elevation of the electron temperature and other techniques. Additional major variables in the experiment are: pressure, pressure ratio, temperature, Mach number, fractional seed concentration, controlled concentrations of other gases, generator duct configuration and magnetic field (up to 5 Wb/m^2). In the present arrangement the generator duct is approximately $4 \times 1.5 \times 20 \text{ cm}$ and has 18 pairs of electrodes; the plasma flow velocity is about 4000 m/s . The open circuit voltage is expected to be 200 V and,

with non-equilibrium ionization, the power output could be as high as 3 kW .

Several hundred operating hours at temperatures up to $2500 \text{ }^\circ\text{K}$ have been accomplished with unseeded helium; seeded operation was due early in 1964. Design and constructional techniques have been established for complex refractory metal (tungsten, tantalum, molybdenum and tantalum — 8% tungsten alloy) duct and heat exchange system, while a novel sapphire window arrangement facilitates the application of optical and microwave diagnostics to the plasma region. Other achievements are: the development of a helium circuit, having both static and rotating components, with an extremely low leak rate ($< 10^{-8} \mu\text{l/s}$); the development of a high-efficiency oil filtration system; considerable advances in the techniques for purifying and analysing helium in flowing systems; and the development of an electrical resistance heater for gas temperatures up to $2500 \text{ }^\circ\text{K}$, which has demonstrated excellent heat transfer performance and reliability. A caesium injection and handling system, for pumping and accurate metering of pure caesium seed, has been designed and constructed, utilizing an electromagnetic pump and flow-meter.

An experiment based on 200 g/s flow of an argon-potassium plasma has recently been initiated at AERE, Harwell. At the time of the Conference the rig had operated with argon flow at a thermal input power of 250 kW and temperature up to $1200 \text{ }^\circ\text{C}$. Operating with potassium seeding to produce electrical power output from the MHD generator was expected in a few months' time.

THE NUCLEAR MPD PLANT

Power cycle

Thermodynamically, if MPD power were not in prospect, there is no incentive to produce reactor coolant temperatures higher than would match the most efficient steam cycle; $1000 \text{ }^\circ\text{K}$ would be sufficient. The Carnot limiting efficiency is then 0.7 for heat rejection at $300 \text{ }^\circ\text{K}$. If, with an MPD stage before the steam cycle, higher temperatures could be employed, the limit would be higher (for example, 0.9 at $3000 \text{ }^\circ\text{K}$), allowing a substantial margin for increased thermal efficiency.

Figure 1 b, c shows a simple recuperative cycle and the corresponding temperature-entropy or enthalpy-entropy diagram. The important feature of the cycle is the recuperative heat exchanger transferring heat from the MPD generator exhaust flow to the gas flowing to the nuclear reactor; this is necessary because the temperature of the gas leaving the MPD generator will generally be much higher than can be used efficiently in the steam raising unit. Efficiencies of recuperative and non-recuperative cycles are com-

pared in Table 2, using assumed but realistic parameters.

Table 2. Comparison of recuperative and non-recuperative MPD cycles

Cycle	Recuperative		Non-recuperative	
	T_1	η	T_1	η
	3 000 °K	2 200 °K	3 000 °K	2 200 °K
	0.61	0.47	0.52	0.42

Nuclear reactor

A nuclear fission reactor designed for gas temperatures above 1 000 °K would have an all-ceramic core. In its simplest form, the reactor core consists of a nuclear fuel and a moderator material, the two components disposed homogeneously or nearly so, and in the form of a cylinder through which the coolant gas (working fluid) flows and in which heat is transferred.

It is probable that only two materials warrant consideration as the moderator: graphite and beryllium oxide. The ultimate limits of temperature for these two materials will be the melting points of 3 950 °K (actually sublimates) for graphite and 2 850 °K for beryllium oxide. Conceivably, operating temperatures might be as high as 2 900 and 2 100 °K respectively, with corresponding gas temperatures of 2 500 and 1 700 °K.

The nuclear fuel would probably be uranium or plutonium as carbide or oxide, with melting points of about 2 800 °K, although there is a tendency to volatilize at temperatures well below the melting point. If the retaining structure for the fuel elements were impermeable and sufficiently strong, the fuel might be allowed to melt in the highest temperature sections of the reactor core. The fuel-moderator sections must be thin to ensure small temperature differences within the fuel element at high heat ratings and to reduce thermal stresses. Rods, spheres and plates are possible fuel element geometries.

The working fluid in a closed-cycle nuclear MPD-steam plant has to satisfy a number of requirements associated with different parts of the circuit. The most important of these are the chemical compatibility with the materials used in the circuit, the heat transfer properties which govern the size of heat exchange surfaces (in the reactor, recuperator and steam-raising unit), the thermodynamic properties which link the enthalpy and flow conditions in the MPD generator duct, and the properties which control the electrical conductivity and energy transfer processes in the MPD generator. Less significant are the neutron absorption properties of the fluid, which could affect the criticality and control of the reactor, and the availability and cost.

For the temperatures of interest and with a ceramic-coated reactor, the choice of gases is narrowed immediately to those which are chemically inert: the monatomic gases, helium, neon, argon, krypton and xenon. Thus, in selecting the working fluid, consideration need only be given to alkali-metal-seeded inert gases. A fast reactor might employ a pure alkali metal as coolant, dictating relatively low operating temperature but facilitating a rankine cycle, which is attractive in projected space power applications [9].

The thermal power density from a nuclear reactor core depends on the friction pressure loss (and hence pumping power) which can be tolerated in forcing the coolant through heat-transfer passages. In the type of reactor being considered, it may be demonstrated that the core power density will be in the region of 1 MW(th)/m³ per atmosphere absolute operating pressure. Consequently, to achieve a high power density and acceptable capital cost, the nuclear reactor must operate at high coolant pressure. In the MPD generator, low-pressure operating brings an increase in the electrical conductivity of the plasma. The final optimization will depend significantly on the relative capital cost of these two major circuit components, the pressure being chosen to favour the unit with highest specific cost (the reactor on present indications).

MPD GENERATOR PERFORMANCE

Plasma electrical conductivity

The scalar electrical conductivity of a plasma is

$$\sigma = N_e e \mu_e + N_i e \mu_i \quad (13)$$

according to simple theory [10, 11]. In most cases the contribution from the ions may be neglected because of their large mass and consequent low mobility compared with that of the electrons. Thus Eq. [13] becomes

$$\sigma = N_e e \mu_e = \frac{N_e e^2}{m \nu_r} = 2.814 \times 10^{-8} \frac{N_e}{\nu_r} \text{ mho/m} \quad (14)$$

The free electron concentration is given by

$$N_e = \frac{p_s \varepsilon}{k T} = 7.338 \times 10^{27} \cdot \frac{p_s \varepsilon}{T} \text{ (m}^{-3}\text{)} \quad (15)$$

in which ε may be calculated from the Saha equation [12], which for alkali metal seeding becomes:

$$\log_{10} \left\{ \frac{\varepsilon^2}{1 - \varepsilon^2} \right\} \cdot p_s = \frac{5}{2} \log_{10} T - \frac{5040 V_i}{T} - 6.49 \quad (16)$$

For a gas mixture containing j atomic species:

$$\nu_r = \sum_j \nu_{e_j} \quad (17)$$

Thus, taking helium-caesium as an example:

$$\nu_r = \nu_e - He + \nu_e - Cs + \nu_e - Cs^+ \quad (18)$$

According to Hurwitz *et al.* [13], the electric field induced by the magnetic field in an MPD generator

channel will cause an elevated electron temperature. For a segmented-electrode generator the relative temperature is:

$$\frac{T_e}{T} = 1 + \frac{\gamma(1-\eta)^2 M^2 (\omega_e \tau_e)^2}{3\delta(1 + \omega_1 \tau_1)^2} \quad (19)$$

where, in general:

$$\omega_1 \tau_1 < 1 \quad (20)$$

δ is a factor accounting for possible inelastic collisions, deviations from the Maxwellian distribution function, and non-constant collision frequency. For a monatomic gas $\delta \sim 1$ and an elevated electron temperature is fairly readily achieved. (This represents an inherent advantage of the nuclear closed cycle over open cycle combustion systems in which δ may be 10^2 or 10^3 , owing to inelastic collisions.) The electron concentration is obtained from the Saha equation at the electron temperature [14]. Elevated electron temperature can be produced by processes such as photo-ionization [15], electron beams [16, 17] or other electromagnetic or particle irradiation, or the induced electric field in the MPD generator. Any electron non-equilibrium condition will be recombination-controlled; electron-ion recombination in MPD generators has been studied by McNab and Robinson [18].

Generator specific power

The power density of an MPD generator is proportional to $\omega_e^2 B^2$. The results of such an optimization for the various inert gas-alkali metal combinations are given in Table 3 for thermal equilibrium ionization; on this basis helium-caesium is the best choice.

Table 3. Relative specific power for inert gas-alkali metal vapour combinations

Alkali metals	Inert gases				
	Helium	Neon	Argon	Krypton	Xenon
Sodium	0.003	0.001	0.001	0.0003	0.0001
Potassium	0.09	0.04	0.04	0.01	0.005
Rubidium	0.24	0.11	0.10	0.03	0.01
Caesium	1	0.45	0.43	0.11	0.05

The first link in the process by which energy is transferred from the plasma flow to an external electrical circuit through interaction with a transverse magnetic field (and hence the $J_r B$ body force) is the deceleration of the electrons; the relatively massive positive ions are then decelerated via the electron-ion Coulomb forces. Since only about 10^{-3} or less of the energy of the flow is carried by these charged particles, the neutral particles must transfer their energy by elastic collisions with the ions (and to a very much lesser extent with the electrons): each ion must collide with at least 10^3 neutral gas particles in transit through

the MPD generator region, and the ion mobility must be extremely low. Weak coupling is represented by a high value of $(\omega_e \tau_e)(\omega_1 \tau_1)$ and the phenomenon known as ion slip' occurs; the effects on performance are clear from Eqs. (3), (4), (5), (11) and (19).

In the MPD generator duct, if inertial and friction forces are neglected and if the fractional pressure change through the duct is small, the thermodynamic process may be represented by

$$\frac{T_2}{T_3} = \left\{ \frac{P_2}{P_3} \right\}^{\eta(\gamma-1)/\gamma} \quad (21)$$

At low values of the MPD generator isentropic efficiency, η , the compressor pressure ratio (and compressor size) becomes very large and the over-all efficiency falls very substantially. The power density, P (Eq. (11)), assumes a maximum value for $\eta = \gamma = 0.5$; high efficiency ($\eta > 0.8$) generators are thus considerably larger than generators operated at maximum power density.

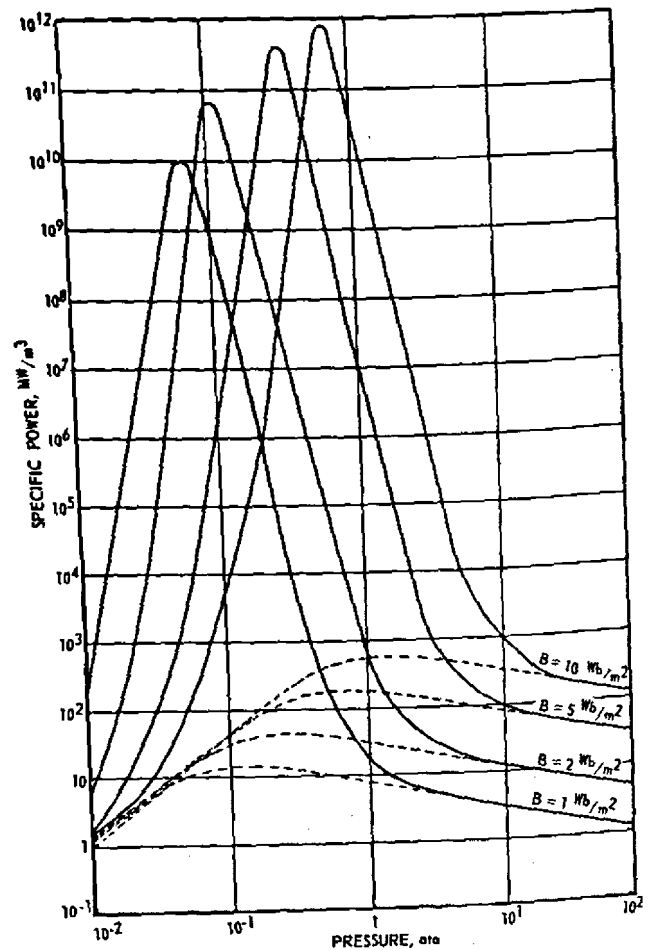


Figure 3. Specific electrical output power of large-scale closed cycle MPD generators as a function of reactor operating pressure p and MPD generator magnetic field B . Helium - 1% caesium; reactor gas outlet temperature, 2500°K; flow Mach number, 0.7. Full lines denote values for magnetically-induced non-equilibrium ionization; dashed lines are for thermal ionization.

DISCUSSION

Almost all electricity is at present produced by steam turbo-alternator plant, the performance of which is being improved through higher steam conditions and cycle refinements. Increasing capital cost, and a continuous rise in fuel and operating costs, are offset by building larger units which are more economic in these respects. The ultimate development of steam plant might be exemplified by 2 000 MW(th) paired units operating on an air-steam binary cycle, with over-all thermal efficiencies approaching 45 per cent.

The introduction of nuclear power has been accompanied by reduced thermal efficiency on account of the poorer steam conditions obtained with present reactor systems. Development of high temperature systems, based on such experimental reactors as the Windscale AGR, the OECD Dragon Project, the General Atomics HTGR and advanced forms of fast reactor, should eventually allow reactor plant to demonstrate as high a thermal efficiency as fossil fuel plant.

Assuming the ultimate performance of conventional plant (both fossil fuel and nuclear), any further improvement must be achieved through a radical change in technique, directing interest towards higher temperatures and energy conversion without highly-stressed rotating parts. For a nuclear MPD generator the over-all efficiency is in theory as high as 60 per cent.

Granted the technical feasibility of a suitable UHT (*ultra-high temperature*) nuclear reactor, probably the most interesting aspect in performance optimization is the selection of B and p . Both these variables have a major influence on non-equilibrium ionization ($\omega_e \tau_e$ and $\omega_i \tau_i$ are proportional to B/p) and specific power in the generator; p must be high for high specific thermal power in the reactor. The specific power is given in Fig. 3 for helium-caesium and typical operating conditions; in no case is $(\omega_e \tau_e)(\omega_i \tau_i) > 0.1$.

CONCLUSIONS

Research on closed-cycle MPD generator systems, employing alkali metal-seeded inert gases as the working fluid, is at an early stage. The nuclear heat source is the most difficult problem, but a direct gas cooled reactor may be technically feasible. If conclusive evidence for non-equilibrium ionization, due to elevation of the electron temperature, was established the reactor could operate at temperatures as low as 1 800 °K. The nuclear MPD generator system is potentially of great importance in planning for long-term power needs.

ACKNOWLEDGEMENTS

The author is indebted to the Directors of International Research and Development Company for permission to present this paper. The research programme

at IRD on MPD power generation is sponsored jointly by C. A. Parsons and Company and the Advanced Research Projects Agency of the US Department of Defense under US Navy Contract No. N62558-3127.

NOMENCLATURE

B	: magnetic flux
E'	: electric field in fluid reference frame
E	: electric field in stationary reference frame
J	: electric current density
M	: Mach number
N	: particle concentration
P	: electrical power per unit volume
T	: absolute temperature
V_i	: ionization potential
a	: atomic seeding fraction
e	: electronic charge
k	: Boltzmann's constant
j	: number of atomic species
m	: electronic mass
n	: loading ratio of MPD generator
p	: absolute pressure
q	: collision cross section
t	: time
u	: plasma flow velocity
v	: particle velocity
α	: recombination coefficient
γ	: ratio of specific heats
ϵ	: fractional ionization of seed element
η	: MPD generator isentropic efficiency
η_o	: over-all thermal efficiency
ν	: collision frequency
σ	: electronic conductivity
τ	: time interval between collision of particles
ω	: cyclotron frequency

Subscripts

L	: load
e	: electrons
g	: gas (ions and neutrals)
i	: ions
oc	: open circuit
o	: initial value
opt	: optimum
rel	: relative
s	: seed
sc	: short circuit
x	: component in x-direction
y	: component in y-direction
z	: component in z-direction
1-8	: state points

REFERENCES

1. Harris, L. P., and Cobine, J. D., *The significance of the Hall effect in three MHD generator configurations*, ASME Paper 60-Wa-329 (1960).

2. Lindley, B. C., *Closed cycle magnetoplasmadynamic electrical power generation*, Proceedings of the International Conference on Gas Discharges and the Electricity Supply Industry. Butterworth (1962).
3. Emmerich, W. S., et al., *A closed loop MHD device with cesium seeded helium*, in *Magnetoplasmadynamic Electrical Power Generation*, IEE Conference Report Series No. 4 (1963).
4. Lindley, B. C., *A magnetoplasmadynamic power generation experiment*, in *Advances in Magnetohydrodynamics*, Pergamon Press (1963).
5. Lindley, B. C., *A magnetoplasmadynamic power generation experiment using helium-cesium*. Third Symposium on Engineering Aspects of Magnetohydrodynamics. University of Rochester (1962).
6. Lindley, B. C., *A closed-cycle MPD experiment*, in *Magnetoplasmadynamic Electrical Power Generation*, IEE Conference Report Series No. 4 (1963).
7. *Research programme on magnetoplasmadynamic power generation*. Technical summary report for 1 December 1961 to 30 November 1962. IRD 63-1 (1963) [Available from US Defense Documentation Center].
8. Ralph, J. C., *Low-voltage glow discharge in atmospheric pressure argon with small additions of cesium or potassium*, *J. Appl. Phys.*, 34 (8) (1963).
9. Lindley, B. C., *The application of nuclear energy for large-scale space power*. *J. Brit. Interplanet. Soc.*, 19, 92-98 (1963-1964).
10. Allis, W. P., *Motions of ions and electrons*, in *Handbuch der Physik*, XXI, 383. Springer-Verlag, Berlin (1956).
11. Chapman, S., and Cowling, T. G., *The mathematical theory of non-uniform gases*, Cambridge University Press, London (1958).
12. Saha, M. N., and Saha, M. K., *A treatise on modern physics*, I, 630, Indian Press, Calcutta (1934).
13. Hurwitz, H., Sutton, G. W., and Tamor, S., *Electron heating in MHD power generators*, ARS (Amer. Rocket Soc.), I., 32 (8) 1237 (1962).
14. Ben Daniel, D. J., and Tamor, S., *Non-equilibrium ionization in MHD generators*, GE Report 62-RL-(29 22E) (January 1962).
15. Maitland, A., *A criterion for assessing methods of producing non-equilibrium ionization*, in *Magnetoplasmadynamic Electrical Power Generation*, IEE Conference Report Series No. 4 (1963).
16. Sierglass, D. J., et al., *MHD power generation by non-thermal ionization and its application to nuclear energy conversion*. Third Symposium on Engineering Aspects of Magnetohydrodynamics. University of Rochester (1962).
17. Gunson, W. E., et al., *Gas cooled reactors for magnetohydrodynamic generation*. American Nuclear Society Winter Meeting (1962).
18. McNab, I. R., and Robinson, C. A., *Electron-ion recombination in MPD generators*, in *Magnetoplasmadynamic Electrical Power Generation*, IEE Conference Report Series No. 4 (1963).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/133 Royaume-Uni

Conversion de l'énergie nucléaire magnétoplasmodynamique

par B. C. Lindley

Les recherches sur les systèmes de générateurs magnétoplasmodynamiques en circuit fermé, utilisant des gaz inertesensemencés de métal alcalin, en sont à leur début. La source de chaleur nucléaire pose le problème le plus difficile, mais un réacteur direct à réfrigérant gazeux peut être techniquement réalisable. Pour l'ionisation thermique, les conductivités électriques des gaz inertesensemencés au césium sont comparables à celles des gaz de combustionensemencés au potassium à des températures d'environ 500 °C plus élevées, si bien que le circuit fermé présente un avantage immédiat sur le cycle ouvert à chauffage au charbon ou au mazout. Il existe aussi la possibilité, dans les plasmas de gaz inertes, d'arriver à de hautes conductivités électriques par ionisation non équilibrée à des températures de gaz relativement modérées (1 200-1 800 °C). Si le fonctionnement à des températures aussi basses se révèle possible, le projet de cycle fermé nucléaire devient beaucoup plus attrayant.

On essaie d'évaluer le concept magnétoplasmodynamique en circuit fermé du point de vue de ses possibilités techniques et économiques, et les incidences

à long terme qui en découlent pour la production d'énergie électrique. Un vaste programme de recherches, ayant pour base une installation pilote à hélium-césium en circuit fermé et une série d'expériences sur la physique des plasmas, a été entrepris dans les laboratoires de l'International Research and Development. On décrit les techniques de construction pour des circuits fonctionnant à des températures de gaz allant jusqu'à 2 250 °C et les progrès réalisés dans l'évaluation des processus physiques de la production d'énergie magnétoplasmodynamique. Une estimation des paramètres critiques de fonctionnement, tels que le rendement total du cycle et la puissance spécifique du générateur, est donnée dans le mémoire.

A/133 Соединенное Королевство

Магнитоплазодинамический способ преобразования ядерной энергии

Б. К. Линдли

Исследования систем магнитоплазодинамического генератора с замкнутым циклом, использующих добавку щелочного металла к инертному газу как рабочему телу, находятся в начальной стадии развития. Наиболее трудной проблемой является ядерный источник тепла, однако прямоточные реакторы с газовым

охлаждением технически осуществимы. Для случая термической ионизации электропроводность, обусловленная добавкой цезия к инертному газу, сравнима с электропроводностью, обусловленной добавкой калия к выхлопным газам при температуре выше 500°C . Это указывает на то, что замкнутый цикл имеет непосредственное преимущество перед открытым циклом, в котором в качестве топлива используется уголь или нефть. Существует также возможность достижения высокой электропроводности в инертном газе за счет неравновесной ионизации при средних температурах газа ($1200\text{--}1800^{\circ}\text{C}$). Если работа при таких сравнительно низких температурах возможна, то замкнутый цикл с ядерным источником тепла становится гораздо более предпочтительным.

Делается попытка оценить магнитоплазменодинамический генератор с замкнутым циклом как с точки зрения технической осуществимости, так и с точки зрения экономики и связанной с этим возможности длительной генерации электроэнергии. В лабораториях фирмы «Интернейшнл рисерч энд девелопмент» ведется обширная программа исследований с использованием больших опытных установок с замкнутым гелий-цезиевым контуром, включая серию экспериментов по физике плазмы. Описывается оборудование контуров, работающих при температурах газа до 2250°C , а также прогресс, достигнутый в оценке физических процессов магнитоплазменодинамического способа преобразования. Дается оценка критических рабочих параметров, таких, как общий к. п. д. цикла и плотность генерируемой мощности.

A/133 Reino Unido

Conversión magnetoplasmadinámica de la energía nuclear por B. C. Lindley

Los estudios acerca de los sistemas de generación magnetoplasmadinámicos (MPD), en ciclo cerrado,

en los que se utiliza como fluido de trabajo un gas inerte sembrado con un metal alcalino, se encuentran en una etapa preparatoria. El problema más arduo reside en la elección de la fuente nuclear de calor, pero quizás sea técnicamente factible utilizar un reactor directamente refrigerado por gas. En lo que respecta a la ionización térmica, las conductividades eléctricas de los gases inertes sembrados con cesio pueden compararse con la correspondiente a los gases de combustión sembrados con potasio, a temperaturas superiores en unos 500°C , de modo que el ciclo cerrado ofrece una ventaja inmediata con respecto al ciclo abierto que consume carbón o petróleo como combustible. Los plasmas de gases inertes se prestan asimismo para alcanzar conductividades eléctricas elevadas mediante una ionización de equilibrio inestable a temperaturas bastante moderadas (1200° a 1800°C) del gas. De comprobarse la posibilidad de trabajar a temperaturas tan bajas, el esquema nuclear, de ciclo cerrado, se tornaría mucho más atractivo.

El autor ha procurado evaluar el concepto del sistema MPD, en ciclo cerrado, en función de sus posibilidades técnicas y económicas y de prever las consecuencias que a largo plazo puede tener para la generación de energía eléctrica. En los laboratorios de la International Research and Development Co. Ltd. se ha emprendido la realización de un extenso programa de investigaciones, basado en una instalación helio-cesio de circuito cerrado en escala piloto, y de una serie de experimentos conexos de física del plasma. El autor describe las técnicas de construcción de circuitos que trabajan con gases a temperaturas del orden de 2250°C y expone los adelantos logrados en el estudio de los procesos físicos de la generación por el sistema MPD. Concluye con una evaluación de la influencia de los parámetros funcionales críticos, tales como el rendimiento global del ciclo y la densidad de potencia en el generador.

Thermal problems of gas-cooled reactors for magnetohydrodynamic power generation

By L. S. Dzung *

The use of the magnetohydrodynamic (MHD) principle for the large-scale generation of electrical power has recently been proposed [1]. One of the difficulties is the exceedingly high gas temperature, of the order of 3 000 °K, necessary for sufficient electrical conductivity. A reduction in the required gas temperature seems possible by using the inequilibrium elevation of electron temperature over gas temperature [2].

If an electric field is applied to a partially ionized gas, the electrons are first accelerated to a high kinetic energy until collisions redistribute the energy to other particles. If the attainment equilibrium is prevented, a steady state may exist and the temperature of the electrons will be higher than that of the gas particles. Since the degree of ionization depends mainly on the electron temperature, the electron concentration and the electrical conductivity will be greatly increased.

The difference between the electron temperature and the gas temperature depends on the rapidity of energy redistribution. Mono-atomic particles can absorb energy only by an increase in the translational speed or by electronic excitation. In case of poly-atomic particles, energy can also be absorbed by rotation and vibration. The fraction of electron energy transferred after one collision is on average much larger for poly-atomic particles and the attainment of equilibrium much more rapid. Hence poly-atomic gases are unsuitable for ionization enhancement.

In only mono-atomic gases can be used, internal combustion as the heat source is ruled out. External combustion involves the same difficulty as for the high-temperature air preheater in an open loop. Hence a nuclear reactor in a closed loop is the immediate choice.

REACTOR REQUIREMENTS

As a heat source for the MHD plant, a reactor must fulfil a number of conditions. Of primary importance

is the power required to drive the gas stream through the reactor. This power is proportional to the frictional power P lost by the gas stream. The ratio P/Q of the friction loss to the heat production rate should not be more than a few per cent.

Now it is always possible to design the reactor with a small ratio P/Q , for instance by choosing a very flat core. This is neither convenient in the plant layout nor permissible due to reactor criticality requirements. Denoting the length of the active reactor core in the direction of the gas flow by L and the diameter of the cylindrical core by D_c , the ratio L/D_c should not deviate much from unity.

A third requirement refers to the shape of the heat transfer matrix. This may be composed of straight-through channels or other types of surfaces distributed irregularly, e.g., as in a "pebble bed". Then the scale of the matrix represented by an arbitrarily chosen characteristic length must not vary over a wide range. The exact range depends on the type of matrix and on the definition of D .

FRICIONAL POWER AND HEAT RATE

The frictional power P is the integral $-\int \dot{V} dp$ along the flow path, where \dot{V} is the volume flow rate and p the pressure. For a given matrix the friction power loss can be expressed as

$$P = (1/2) f G w^2 (A/S) \quad (1)$$

where the coefficient f depends only upon the Reynolds number $Re = GD/\mu S$. G is the mass flow rate, S a suitably defined flow cross section, $w = \dot{V}/S$ the corresponding flow velocity, A the boundary surface of the flow and μ the viscosity.

The heat rate Q is given by

$$Q = c G \Delta T = \alpha \theta A \quad (2)$$

where c is the isobaric specific heat, ΔT the temperature rise of the gas, θ the mean temperature difference between the matrix wall and the gas bulk. This equation defines α , the heat transfer coefficient.

* Brown Boveri & Co. Ltd., Baden.

For a given matrix the Colburn number j is:

$$j = \left(\frac{\alpha}{\rho w c} \right) \times \left(\frac{\mu c}{\lambda} \right)^{1-x} = St \times Pr^{1-x}$$

depends only on the Reynolds number. Here ρ is the gas density, λ the thermal conductivity and x a constant. The first fraction within the parentheses is the Stanton number, the second the Prandtl number.

The behaviour of a matrix is completely determined once f and j as empirical function of Re are known.

We define two more non-dimensional numbers [3]:

$$z = (f/2j) Re^2, \quad i = j \times Re = Nu/Pr^x \quad (3)$$

where $Nu = \alpha D / \lambda$ is the Nusselt number. Both z and i are again functions of Re alone. The functional relations of z and i to Re will be approximated in the following form:

$$z = B \cdot i^m, \quad i^n = C \cdot Re \quad (4)$$

where B, C, m, n are constants within limited ranges.

In Eq. (2), the temperature rise ΔT and the mean temperature difference θ were introduced. Let θ be the difference between the maximum wall temperature of the reactor core matrix and the entrance gas temperature. Defining the effectiveness ε and the number of transfer units φ by

$$\varepsilon = \Delta T / \theta, \quad \varphi = \Delta T / \theta, \quad (5)$$

it can be shown that there is a unique relation between ε and φ [3]. In case of a reactor with a sinusoidal heat-flux distribution in the flow direction, the relation is [4]:

$$\varphi = \frac{\pi}{2} \frac{\varepsilon}{\sqrt{1-\varepsilon}} \quad (6)$$

Let V_h denote the flow volume; V, S_c, D_c the volume, cross section, diameter respectively of the reactor core. We now define the hydraulic diameter D_n , the porosity ξ and the quantities β, ξ_r by:

$$D_n = 4 V_h / A; \quad \beta = D / D_n; \quad (7)$$

$$\xi_r = S / S_c; \quad \xi = V_h / V.$$

Evidently, $V = S_c \times L$; $S_c = (\pi/4) \times D_c^2$

Introducing the ideal gas equation $p = \rho RT$, R being the gas constant, it is possible to derive the ratio P/Q and L/D_c by algebraic manipulation of Eq. (4). The result is, using any coherent set of units [5]:

$$\frac{P}{Q} = \left(\frac{Q}{V} \right)^m \cdot D_c^{2(m-1)} \cdot \left(\frac{\varphi}{\Delta T} \right)^{m+1} \cdot \left(\frac{T}{p} \right)^2 \cdot \frac{K}{\gamma}; \quad (8)$$

$$\frac{L}{D_c} = \left(\frac{Q}{V} \right)^{\frac{3n}{2}-1} \times D_c^{3n-\frac{3}{2}} \times \left(\frac{\varphi}{\Delta T} \right)^{\frac{3n}{2}} \times \frac{(\Delta T)^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{Q}} \times \kappa \quad (9)$$

where the matrix parameters and material constants are lumped together into:

$$\gamma = \frac{(4\beta\xi)^m R \lambda^{m-2}}{B Pr^{3-(m+1)x}} \cdot \left(\frac{C}{R} \right)^3, \quad \kappa = \left[\frac{\xi_r Pr^{1-x}}{(4\beta\xi)^2 C \lambda^{x-1}} \right]^{\frac{3}{2}} \cdot \frac{\sqrt{\pi}}{2} \quad (10)$$

The factor K does not follow from Eq. (4). Its meaning will be explained later.

Eqs. (8) and (9) contain all the information needed to fulfil the requirements discussed earlier. However, it is more convenient to eliminate Q/V :

$$\frac{L}{D_c} = \left[\frac{P}{Q} \right]^{\frac{3n-2}{2m}} \times D_c^{\frac{m+6n-4}{2m}} \times \varphi^{1-\frac{3n-2}{2m}} \times (\Delta T)^{\frac{1}{2} + \frac{3n-2}{2m}} \cdot \left(\frac{p}{T} \right)^{\frac{3n-2}{m}} \cdot \frac{\kappa \gamma^{\frac{3n-2}{2m}}}{\sqrt{Q}} \quad (11)$$

DESIGN PROCEDURE

Within the ranges where the coefficients of Eq. (4) are constant, Eqs. (8), (9) and (11) are linear in logarithmic scales. Using logarithmic co-ordinates of L/D_c and D , the geometrical requirement restricts a design point to lie within a rectangle bounded by the limits of these quantities. The friction loss further restricts the point to lie below and to the right of the maximum P/Q line, Eq. (11). Hence by drawing this line, one sees at once whether a possible solution exists, e.g., within the shaded area of Fig. 1. From the lines of constant Q/V , Eq. (9), it is easy to choose a core of minimum volume, either within the permissible range of L/D_c or for a "square" configuration $L/D = 1$. These design points are indicated in Figs. 1 to 4. Equation (11) also indicates the possible means of reducing P/Q for a given geometrical requirement.

DENSITY VARIATION

Often the change of density cannot be neglected. For a moderate pressure drop Δp compared with gas pressure, the density is inversely proportional to the gas temperature. Equation (1) must be modified to take into account the density and momentum changes [6], thus written in differential form:

$$-dp = \frac{e_0 w^2}{2} \left[\zeta \left(\frac{T}{T_0} \right) dy + \frac{\delta dT}{T_0} \right], \quad (12a)$$

where $\zeta = f \cdot \frac{A}{S}$ and

$$pP = -\dot{V} dp = \frac{G w^2}{2} \left[\zeta \left(\frac{T}{T_0} \right)^2 dy + \left(\frac{T}{T_0} \right) \frac{\delta dT}{T_0} \right] \quad (12b)$$

The subscript "0" denotes values at entry, y is the fraction of flow path traversed, σ is a parameter lying between 1 and 2. For a sinusoidal heat flux along the flow path, $T = T_0 + (\Delta T/2) \times (1 - \cos \pi y)$, the above equations can be integrated, yielding with Eq. (2):

$$\frac{\Delta p}{p} = \frac{w^2}{2RT} \cdot \zeta \left[1 + \frac{\delta}{\zeta} \cdot \frac{\Delta T}{T} \right] \quad (13)$$

$$\frac{P}{Q} = \frac{w^2}{2c\Delta T} \cdot \zeta \left[1 + \frac{\delta}{\zeta} \cdot \frac{\Delta T}{T} + \frac{1}{8} \left(\frac{\Delta T}{T} \right)^2 \right] \quad (14)$$

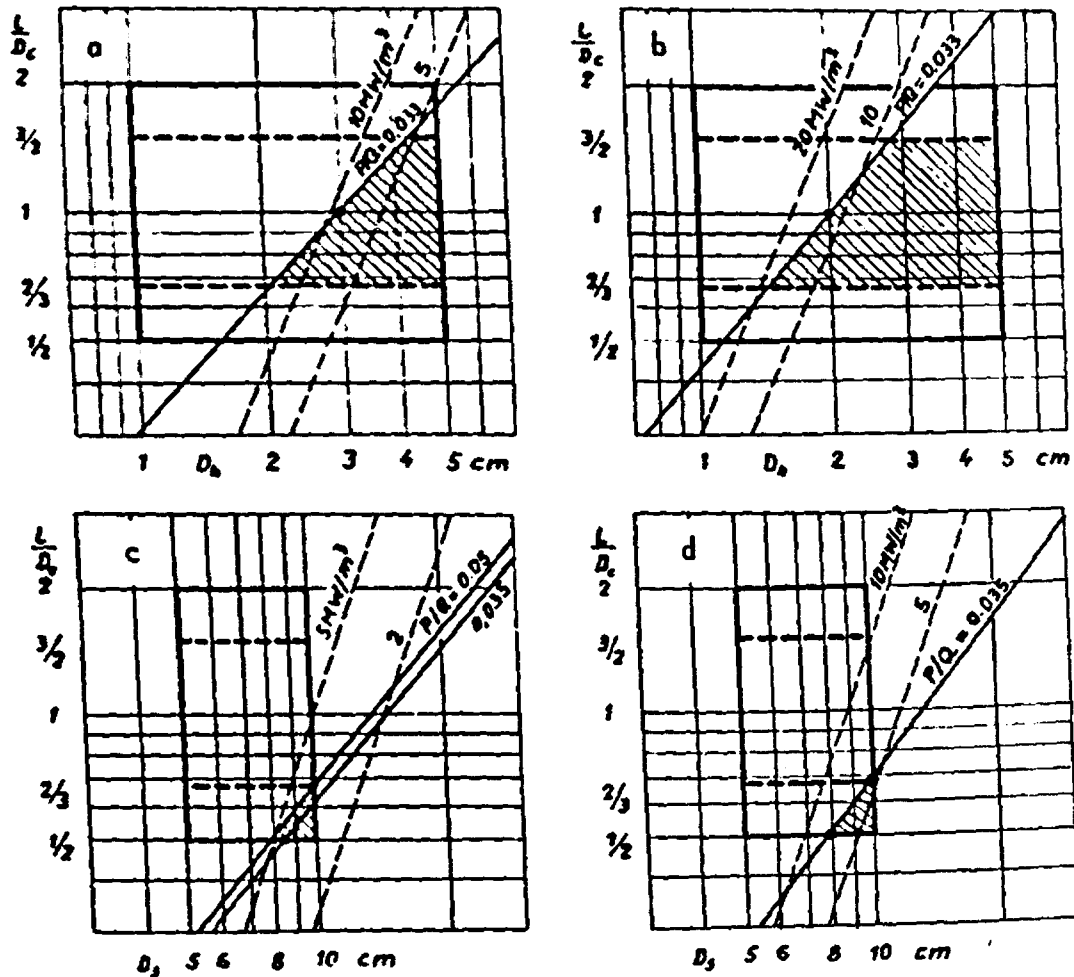


Figure 1. Design conditions for reactor core

(a) Helium and straight channels; (b) Argon and straight channels; (c) Helium and packed spheres; (d) Argon and packed spheres. L/D_c : Ratio of core length to diameter; D_h : Hydraulic diameter of straight channels; D_s : Diameter of packed spheres; P/Q : Ratio of friction loss to heat rate; Q/V : Over-all heat rate density

where $\bar{T} = T_0 + \Delta T/2$ is the mean temperature averaged over the flow path and \bar{w} is calculated by using the density corresponding to \bar{T} .

Denoting the factor within the brackets in Eq. (14) by K , it is obvious that this is the factor multiplying the righthand side of Eq. (8), in which \bar{T} is used for T . Transport properties are taken at \bar{T} , and the effect of their variation is ignored.

The compressor power W driving the gas through the reactor without losses depends on the temperature of compression which is nearly T_0 . With that approximation, we may write $W = (G/\rho_0) \Delta p$, or using Eq. (2):

$$W/Q = (\Delta p/p) \times (T_0) \Delta T \times (R/c) \quad (15)$$

The actual compressor work is W divided by the efficiency.

RESULTS OF CALCULATION

A reactor suitable as a large MHD generator is considered with the following specification:

- Heat rate: $Q = 1000 \text{ MW(th)}$
- Gas temperature at entry = $T_0 = 340^\circ\text{C} = 613^\circ\text{K}$
- Gas temperature at exit = $T_1 = 1500^\circ\text{C}$
- Gas temperature rise = $\Delta T = 1160^\circ\text{K}$
- Gas mean temperature = $T = 1193^\circ\text{K}$
- Maximum wall temperature $T_m = 1800^\circ\text{C}$
- Maximum gas pressure: helium, 4 bars, or argon, 15 bars.

The gas and the corresponding pressure level are chosen from considerations of the MHD generator.

Two types of cooling surface will be investigated:

Straight-through cooling channel

The shape of the channels has little effect on the flow characteristics, provided the hydraulic diameter is used for the characteristic length, $D = D_h$. The formulae for round ducts may therefore be used and the coefficients in Eq. (4) for the range $5000 < Re < 200000$, are taken as [5]:

$$m = 2.5 \quad B = 12\,500 \quad x = 0.4$$

$$n = 1.25 \quad C = 0.00894$$

For the calculation $\xi = \xi_f = 0.25$ and the limit of D is 1 to 5 cm.

"Pebble-bed" type of packed spheres

A reactor of this type has been reported elsewhere [7]. Using the equations of frictional loss and of heat transfer for the range $250 < Re < 25\,000$ in the following form [8]:

$$f = 28.4 Re^{-0.17}, \quad i = 0.584 Re^{0.7}, \quad x = 0.333$$

with $D = D_s$ (diameter of the spheres), $\xi = 0.37$,

$$\beta = \frac{3}{2} \cdot \frac{1-\xi}{\xi} = 2.555 \quad \xi_f = 1$$

the constants of Eq. (4) become:

$$m = 3.04 \quad B = 125 \quad x = 0.333$$

$$n = 1.428 \quad C = 0.464$$

The permissible range of D is 5 to 10 cm [7].

Since the ratio $\Delta T/T_0$ is high, the effect of the non-uniformity of the radial heat flux distribution is severe. Exact treatments [6, 9] show that the frictional loss Eqs. (13) and (14) are still sufficiently accurate while the maximum wall temperature may be considerably higher than the value calculated from Eqs. (5) and (6) using average temperature rise ΔT . It is, therefore, assumed that the radial heat flux distribution has been made artificially uniform by using reflectors, or by suitably varying the fuel concentration. In the case of pebble-bed type, the core will be

divided into compartments charged with spheres of different fuel contents.

The results are summarized in Table 1 and in Fig. 1 (a to d). The requirements can readily be met by a reactor with straight channels. In the case of "pebble-bed" reactors, the lower limit of L/D_c and the upper limit of p must be used. Further, φ must still be increased; this means that the maximum wall temperature is reduced below the permissible limit.

DISCUSSION AND CONCLUSION

From Eq. (11), it is seen that a medium with high value of the parameter $\chi \gamma \frac{3n-2}{2m}$ is advantageous since P/Q is lower for the same geometrical restrictions. Table 1 shows that in this respect helium is a better choice than argon [5]. This observation, however, assumes that the pressure has been prescribed. From the viewpoint of the MHD generator, argon is preferable because of its smaller collision cross section for electrons. For the same generator efficiency, it is possible to choose a higher pressure level for argon than for helium. The pressures shown in Table 1 have been chosen taking into account that the generator efficiency in each case is about the same for both media [10]. Under these conditions, Table 1 shows that argon is slightly to be preferred, and that in each case a reactor of sensible dimensions seems feasible. The final choice of the medium will also be affected by the consideration of the power density and the current-voltage characteristics of the MHD generator. This may bring helium again into a better position.

Table 1. Results of calculation
(SI designates international MKSA system of units)

Matrix Gas	Channels			Packed spheres			Units
	He	Ar		He	Ar		
Figure	1	2	3	3	4	4	
p	3	12	4	4	15	15	Bar
$\Delta P/P$	0.07	0.07	0.07	0.1	0.07	0.07	—
W/Q	0.015	0.015	0.015	0.02	0.015	0.015	—
P/Q	0.033	0.033	0.035	0.05	0.035	0.035	—
ξ	0.25	0.25	0.37	0.37	0.37	0.37	—
L/D_c	1	1	1/2	2/3	1/2	2/3	—
Q/V	8.0	12.0	4.0	3.7	7.4	5.4	MW(th)/m ³
V	125	83.3	250	270	135.3	185.3	m ³
D_c	5.42	4.73	8.6	8.0	7.0	7.07	m
L	5.42	4.73	4.3	5.35	3.5	4.71	m
D	3.0	2.0	8.5	10	8.0	10	cm
φ	2.75	2.75	10.6	10.6	5.16	5.16	—
T_m	1 800	1 800	1 525	1 525	1 600	1 600	°C
w/\sqrt{RT}	0.150	0.156	0.0112	0.0129	0.0142	0.0142	—
Re	17 000	130 000	5 000	6 730	59 000	72 000	—
γ	2.71	0.129	9 060	9 060	149	149	SI
χ	148	276	0.238	0.238	0.753	0.753	SI
$\chi \gamma \frac{3n-2}{2m}$	210	134	7.28	7.28	4.92	4.92	SI

REFERENCES

1. Sporn, P., and Kantrowitz, A., *Power*, 103 (II), 62-65 (1959).
2. Kerrebrock, J., *Proceedings of Second Symposium on Engineering Aspects of Magnetohydrodynamics*, p. 327-346, Columbia University Press, New York (1962).
3. Dzung, L. S., *Bewertung und Berechnung von Wärmeaustauschern*, in « Wärme- und Stoffaustausch » Fortbildungskurs, Section H, Eidg. Techn. Hochschule, Zürich, 1962.
4. Dzung, L. S., *Heat transfer in a round duct with sinusoidal heat flux distribution*, Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, P/253, Vol. 7, p. 657, United Nations (1958).
5. Dzung, L. S., *Ind. At.*, 3, (3/4), 59-64 (1959).
6. Dzung, L. S., *Brown Boveri Rev.*, 45, 14-20 (1958).
7. Schulten, R., v.d. Decken, C. B., Schmidt, H. W. and Wundt, H., *Nucleonik*, 1, 277-286 (1959).
8. Denton, W. H., *IME-ASME Proc. General Discussion on Heat Transfer*, 370-373, 386 (1951).
9. Dzung, L. S., *Int. J. Heat Mass Transfer*, 1, 236-241 (1960).
10. Jenny, E., Nabholz, H., and Rosner, M., *On the efficiency of closed MHD loops*, International Symposium on MHD Electric Power Generation, Paris, July 1964.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/693 Suisse

Problèmes de caractère thermique que pose la construction de réacteurs refroidis par un gaz pour la production magnétohydrodynamique d'énergie électrique par L. S. Dzung

Les recherches récentes faites en vue de construire des générateurs magnétohydrodynamiques (MHD) pour la production en grand d'énergie électrique se sont orientées vers l'utilisation de l'ionisation hors d'équilibre pour porter la température des électrons au-dessus de la température du gaz et augmenter en même temps la conductivité du gaz qui s'écoule. Comme les molécules des gaz polyatomiques présentent des degrés de liberté interne en plus du degré de liberté translationnel, elles tendent à absorber l'énergie en excès des électrons; c'est pourquoi seuls les gaz monoatomiques en circuit fermé devraient être utilisés pour l'échauffement des électrons. On a donc avantage à utiliser pour le fonctionnement d'un générateur MHD un gaz monoatomique servant au refroidissement d'un réacteur à haute température.

La construction d'un tel réacteur pose des problèmes thermiques ardu, car il faut réaliser d'intenses échanges de chaleur avec des pertes de frottement modérées.

Ces problèmes sont discutés dans le mémoire, ainsi que les méthodes mises en œuvre pour les résoudre. Il est montré qu'il existe une relation entre le rapport des pertes de frottement à la quantité de chaleur produite et le rapport de la longueur au diamètre du cœur du réacteur, d'une part, et entre le rapport de la puissance volumique et une dimension linéaire choisie comme longueur caractéristique du réfrigérant, d'autre part. Une méthode a été mise au point pour tenir compte de la grande variation de la densité du gaz au cours de son passage à travers le cœur du réacteur. La difficulté de satisfaire aux conditions

imposées par ces quantités augmente habituellement avec la grandeur du réacteur. L'auteur montre aussi que les exigences que posent le réacteur et le générateur MHD peuvent pousser à des choix très différents du gaz qui convient le mieux.

A/693 Швейцария

Тепловые проблемы, возникающие при проектировании реакторов с газовым охлаждением для магнито-гидродинамического производства электроэнергии

Л. С. Дзунг

Последние исследования, проведенные с целью строительства магнито-гидродинамических (МГД) генераторов для производства большого количества электроэнергии, были направлены на использование ионизации вне состояния равновесия, чтобы довести температуру электронов до температуры, превышающей температуру газа, и тем самым увеличить проводимость выходящего газа. Поскольку молекулы многоатомных газов представляют степени внутренней свободы, кроме степени свободы перемещения, они стремятся поглотить избыточную энергию электронов; поэтому для нагревания электронов необходимо использовать только одноатомные газы в замкнутом контуре. Следовательно, выгодно использовать для эксплуатации МГД генератора одноатомный газ, который служит теплоносителем в высокотемпературном реакторе.

При строительстве такого реактора возникают сложные тепловые проблемы, так как необходимо осуществить интенсивный теплообмен с умеренными потерями на трение.

В настоящем докладе обсуждаются эти проблемы, а также методы, разработанные для их

решения. Показано, что существует связь между отношением потерь на трение к количеству вырабатываемого тепла и отношением длины к диаметру активной зоны реактора, с одной стороны, и между отношением объемной мощности и линейным размером, выбранным в качестве характерной длины теплоносителя, — с другой. Был разработан метод, учитывающий большое изменение плотности газа в процессе его прохождения через активную зону реактора. Трудность удовлетворения условий, налагаемых этими параметрами, обычно увеличивается с увеличением размера реактора. Автор показывает также, что требования для реактора и МГД генератора могут привести к весьма различному выбору наиболее подходящего газа.

A/693 Suiza

Problemas de carácter térmico que plantea la construcción de reactores refrigerados por gas para la producción magnetohidrodinámica de energía eléctrica

por L. S. Dzung

Las recientes investigaciones en torno a la construcción de generadores magnetohidrodinámicos (MHD) para la producción de energía eléctrica en gran escala, se han orientado hacia el empleo de la ionización descompensada para elevar la temperatura de los electrones por encima de la del gas y, al mismo tiempo, aumentar la conductividad del gas en circulación. Debido a que las moléculas de los gases

poliatómicos, por gozar de grados de libertad interna además del de libertad de movimiento, tienden a absorber el exceso de energía de los electrones, solamente deberían emplearse gases monoatómicos en circuito cerrado para el calentamiento de los electrones. Sería ventajoso, pues, utilizar para el funcionamiento de un generador MHD un gas monoatómico que actuase como refrigerante de un reactor de alta temperatura.

Sin embargo, la construcción de tal reactor plantea problemas térmicos difíciles de resolver porque es preciso efectuar considerables intercambios de calor al mismo tiempo que permitir tan sólo moderadas pérdidas por fricción.

La discusión de estos problemas y los medios para resolverlos son el objeto de la presente memoria. Se demuestra que existe una relación de dependencia entre la razón de las pérdidas por fricción a la cantidad de calor producida y la razón de la longitud al diámetro del núcleo del reactor, por una parte y, por otra, entre la relación de potencia específica y una dimensión lineal adoptada como longitud característica del refrigerante. También se ha conseguido establecer un procedimiento para tener en cuenta las grandes variaciones de densidad del gas a su paso por el núcleo del reactor. Las dificultades para satisfacer las condiciones que imponen todas las magnitudes que entran en juego aumentan en general con el tamaño del reactor. Por último, el autor señala también que las exigencias que imponen el reactor y el generador MHD pueden llevar a decisiones muy dispares en cuanto a la elección del gas más conveniente.

Conversion directe de la chaleur en électricité dans les piles

par B. Devin, J. Bliaux et R. Lesueur *

L'intérêt porté à la conversion directe s'est affirmé ces dernières années à tel point qu'une séance de cette Conférence internationale sur l'utilisation de l'énergie atomique lui est consacrée. La mise à l'ordre du jour de questions de ce genre est souvent liée à l'apparition de besoins nouveaux plutôt qu'à la découverte de méthodes nouvelles de transformation. C'est le cas ici, puisque déjà, en 1930, I. Langmuir avait décrit fort exactement la conversion directe thermo-ionique et que les spécialistes travaillent actuellement à partir des données théoriques et expérimentales de ce grand inventeur.

Les besoins nouveaux qui ont relancé la conversion directe thermo-ionique sont nés surtout du progrès de l'aéronautique, exigeant pour l'avenir des générateurs électriques de grande puissance, de très faible masse et de longue durée de vie. Il est apparu rapidement que la conversion thermo-ionique permettait une température élevée de source froide (1000°K). Ceci est un avantage considérable sur les autres modes de conversion pour les applications spatiales en ce sens qu'il réduit la dimension des panneaux rayonnants nécessaires.

Pour les applications terrestres, cette propriété fait de la conversion thermo-ionique un mode de transformation parfaitement adapté au refroidissement par circulation de gaz (air, CO_2) en raison du gradient thermique utilisable.

Enfin, c'est un organe d'extraction d'énergie électrique que l'on peut mettre en série thermique dans toutes les grandes centrales thermiques, entre le foyer de combustion et les tubes générateurs de vapeur.

Il faut d'ailleurs remarquer, dans ce cas, que la mise en série thermique se traduit par un rendement de 100%. En effet, la quantité de chaleur supplémentaire que doit fournir le foyer est exactement celle transformée en électricité dans le convertisseur thermo-ionique. Le flux de chaleur non converti se retrouve à l'anode du convertisseur thermo-ionique, intégralement disponible pour la génération de vapeur. On exploite seulement la différence de température entre la

réaction de combustion et le point chaud du cycle thermique à vapeur.

Pour justifier ces applications diverses de la conversion thermo-ionique, nous en rappellerons les principes et situerons les performances actuelles vis-à-vis des résultats théoriques; puis, après avoir précisé les impératifs de son application à l'énergie nucléaire, nous ferons le point des études menées en France dans ce domaine.

THÉORIE ET PRATIQUE

Performances optimales

Le convertisseur thermo-ionique (dont la figure 1 représente un modèle nucléaire) est essentiellement une machine thermique où le gaz électronique décrit un

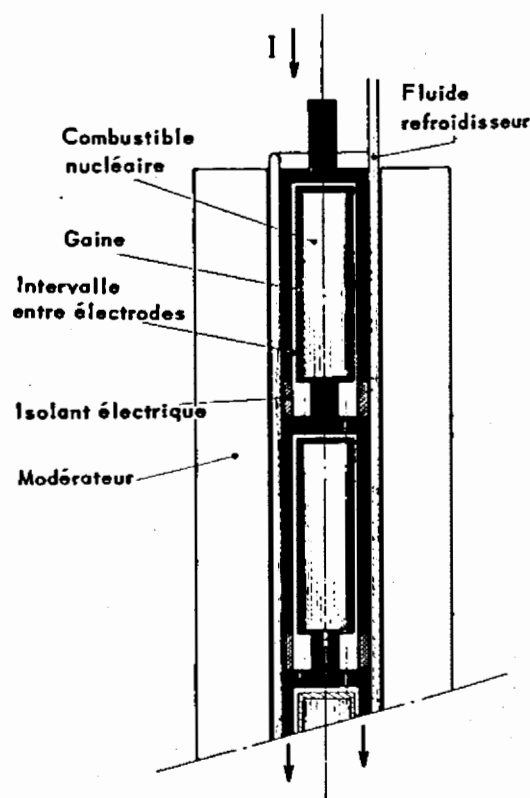


Figure 1. Convertisseur thermo-ionique, modèle nucléaire

* Commissariat à l'énergie atomique.

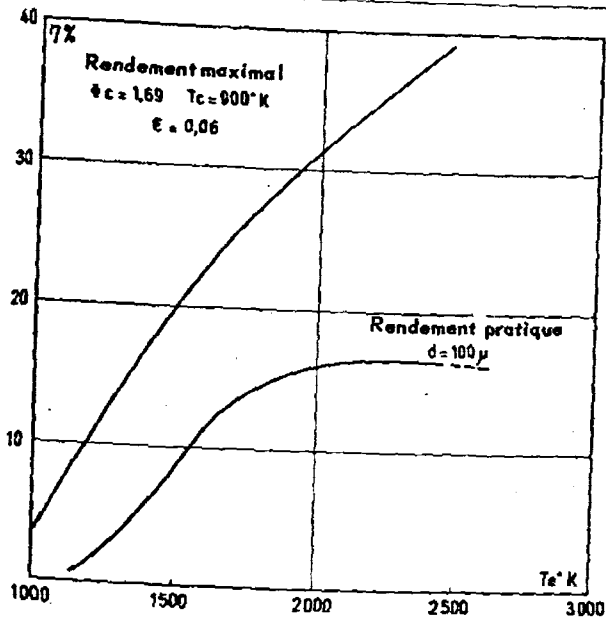


Figure 2. Courbes de rendement

cycle thermique fermé entre une paroi chaude et une paroi froide. Son énergie cinétique d'origine thermique se transforme en énergie potentielle, qui est ensuite dissipée dans un circuit électrique extérieur, reliant la paroi froide (collecteur) à la paroi chaude (émetteur).

Il n'est pas question d'entrer ici dans le détail des calculs, qui ont été publiés souvent au cours des trois dernières années [1]. Le point fondamental de la conversion thermo-ionique est que l'intervalle entre l'émetteur et le collecteur est occupé par un plasma composé des électrons en transit entre la plaque chaude et la plaque froide et des ions nécessaires à la neutralisation de la charge d'espace électronique, faute de quoi aucun courant important ne serait transmis.

La nécessité d'émettre et de transmettre un courant notable conduit à porter la plaque chaude émettrice à

des températures supérieures à 1 800 °K; par contre, la plaque collectrice doit être à une température plus basse, de manière qu'elle n'émette pas un courant de sens opposé au premier dont les effets s'annuleraient dans le circuit de charge. La température maximale de plaque froide collectrice est 1 000 °K avec les collecteurs connus, ce qui peut constituer, comme nous l'avons dit, une excellente source chaude pour un autre étage de conversion.

Il n'y a aucun intérêt d'efficacité à abaisser la température du collecteur au-dessous de cette valeur, tout au moins avec les matériaux dont nous disposons.

Dans ces conditions, le rendement théorique de conversion d'une diode thermo-ionique, compte tenu des pertes par rayonnement de la plaque chaude et des pertes dans la connexion électrique reliant la plaque chaude au circuit de charge, atteint les valeurs limites données par la figure 2.

Le calcul montre qu'il faut pour cela émettre une densité de courant électronique de 10 A par cm² de plaque chaude; la tension de sortie est de 1 V environ.

Limitations imposées par le plasma

Nous avons mentionné que l'espace interélectrodes était occupé par un plasma. Les ions sont produits par ionisation d'une vapeur de césium au contact de la plaque chaude. Cette vapeur est en équilibre avec du césium métallique contenu dans un réservoir dont la température est régularisée dans une gamme comprise entre 400 et 600 °K.

D'autre part, on utilise le fait que le césium s'adsorbe en couche mono-atomique à la surface de la plaque chaude pour augmenter l'émission électronique de celle-ci. La couche de césium adsorbé réduit le potentiel d'extraction du métal et favorise la sortie des électrons. Le potentiel d'extraction peut être réglé très exacte-

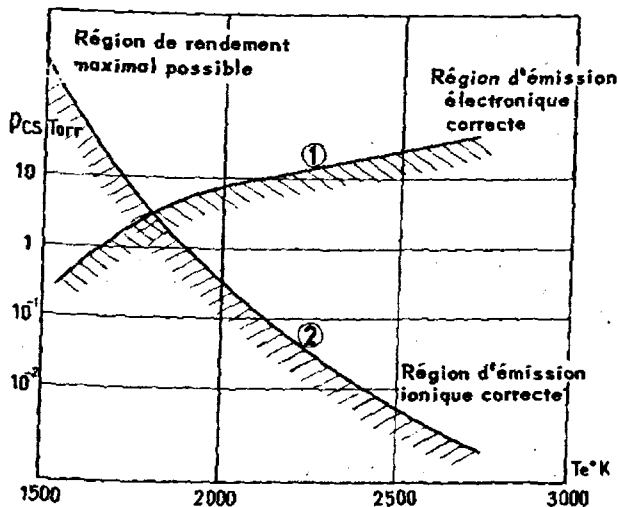


Figure 3. Courbes de pression de Cs (émission et ions)

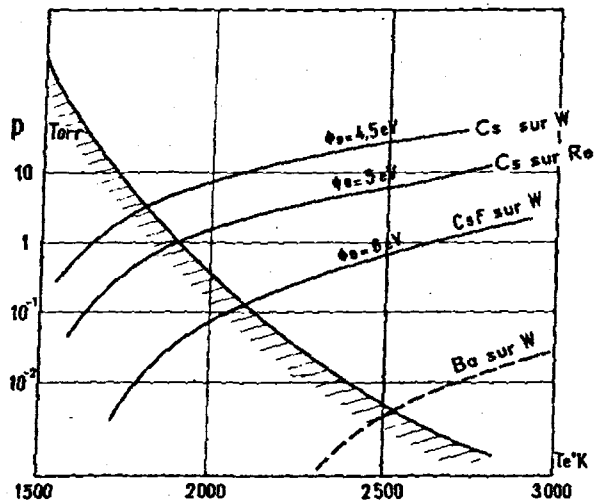


Figure 4. Courbes de pression du Cs pour différents supports

ment en faisant varier la température du bain de césium, c'est-à-dire la pression d'équilibre de la vapeur de césium dans le convertisseur. On ajuste ainsi le nombre d'atomes de césium condensés à la surface de la plaque chaude.

On peut donc tracer (fig. 3 et 4), en fonction de la température de la plaque chaude émettrice, les courbes* représentant:

- a) la pression de vapeur de césium nécessaire pour obtenir l'émission électronique correcte;
- b) La pression de vapeur de césium nécessaire pour émettre la quantité d'ions convenant à la neutralisation de la charge d'espace.

La réalisation simultanée de ces deux conditions conduirait aux performances limites données par le calcul.

On observe immédiatement, chacune de ces conditions étant nécessaire mais non suffisante, que seule la partie non hachurée du plan est utilisable. En d'autres termes, la pression de césium ne peut en aucun cas être choisie inférieure à la plus grande des deux valeurs.

D'autre part, aux pressions de césium supérieures à 1 mm Hg, la densité de la vapeur de césium est telle que les phénomènes de transport deviennent prépondérants: rétro-diffusion des électrons émis [2], blocage des ions au voisinage de l'émetteur, mauvaise neutralisation de la charge d'espace. Le courant de conversion se trouve réduit, à moins que ne s'auto-entretienne une ionisation en volume, liée au passage du courant (régime d'arc) mais ceci au détriment de la tension de sortie.

Il n'y a donc pratiquement pas de zone où le fonctionnement théorique soit possible. Les convertisseurs actuels réalisent la condition impérative d'émission électronique (1) et fonctionnent avec un arc interne, sur le mécanisme duquel de nombreuses explications sont en concurrence.

En pratique, en raison des phénomènes de transport dont l'effet croît avec la pression de césium, donc avec la température de l'émetteur, le rendement de conversion pratique se stabilise à 15% entre 1 800 et 2 100 °K. Il s'agit là de chiffres relevés sur des diodes de conception déjà ancienne et ayant fait leurs preuves quant à la reproductibilité et à la sécurité de fonctionnement.

Perspectives

Augmentation du nombre de degrés de liberté

En considérant la figure 3, on peut s'étonner de n'avoir aucun autre paramètre de réglage que la pres-

* Les courbes ont été tracées pour une plaque émettrice en tungstène et pour un potentiel d'extraction optimal de l'émetteur, lié à sa température par la relation

$$P_0 = 1,5 \times 10^{-3} T_e \quad (1)$$

qui est très suffisamment approchée pour cet exposé (cette relation est d'ailleurs également applicable au collecteur).

sion de césium: celle-ci gouverne à la fois, et d'une manière contradictoire, l'émission des ions et des électrons.

On peut jouer alors sur la nature du matériau de l'émetteur, où vient s'adsorber le césium; cela revient à jouer sur le potentiel d'extraction (*work function*) du support du césium. La surface intervenant seule dans les phénomènes d'adsorption, la connaissance du potentiel d'extraction est suffisante [3]. La figure 4 reprend la figure 3 en donnant les courbes d'émission électronique (1) pour divers supports caractérisés par leur potentiel d'extraction. La courbe (2) ne dépend pas du support si l'équation de Saha-Langmuir est réellement applicable, dans ce cas. Le potentiel d'extraction des matériaux connus ne dépasse pas 5 eV; on pense pouvoir réaliser 6 et 7 eV par des couches adsorbées électro-négatives telles que l'oxygène, le fluor, par exemple, et de nombreux travaux sont conduits dans ce sens [4]. Si l'on réalise la variation de travail de sortie en jouant sur la pression d'un composé volatil tel que le fluorure de césium, on est obligé de maintenir ce corps en équilibre de pression avec un réservoir et l'on doit constituer l'enceinte du convertisseur en matériaux chimiquement inertes vis-à-vis du césium et d'un halogène généralement très actif.

Quoi qu'il en soit, dès à présent, une efficacité de conversion comprise entre 10 et 15% rend la conversion thermo-ionique très attractive pour les usages spatiaux et terrestres.

EXIGENCES NUCLÉAIRES, UTILISATION EN PILE

Fonctionnement et technologie

Les chiffres que nous avons cités au passage correspondent à des densités de puissance électrique de 10 à 20 W/cm².

Le flux thermique prélevé à la source chaude varie entre 60 et 150 W/cm², selon la température de fonctionnement du convertisseur, ce qui est en bon accord avec les flux thermiques des piles de puissance usuelles.

L'intégration de diodes thermo-ioniques à l'intérieur d'un réacteur nucléaire (ou leur assemblage, de manière à réaliser la masse critique) pose moins de problèmes que la réalisation technologique de convertisseurs dont la longévité soit certaine. L'expérience des années passées en conversion directe présente un aspect favorable de la question en ce qui concerne la durée de vie du convertisseur lui-même [5] en laboratoire.

Le problème principal reste celui de la tenue en pile des convertisseurs thermo-ioniques. Les points essentiels peuvent être résumés ainsi: 1) compatibilité du combustible nucléaire avec la gaine émettrice; 2) produits de fission; 3) refroidissement d'anode; 4) tenue de la jonction isolante entre émetteur et collecteur. Sur aucun de ces points n'apparaissent actuellement de problèmes insolubles.

Combustible - gaine

La compatibilité à haute température entre combustible nucléaire et gaine a fait l'objet aux Etats-Unis de nombreux essais [6] satisfaisants pour certains couples combustible-gaine: UO_2 et Mo, UO_2 et W, UC et W, (ZrC-UC) et W. Il est à noter que seule la face du gainage en contact avec le combustible doit être compatible avec celui-ci; ceci permet de choisir un matériau de gaine de tenue mécanique suffisante et compatible avec un séjour prolongé sous irradiation (Mo, Nb); la face émettrice est alors recouverte par dépôt en phase vapeur, d'une couche mince de W ou Re; la face interne est de même recouverte d'une couche antidiffusion (W) destinée à protéger la gaine vis-à-vis du combustible.

Produits de fission, pertes de césium

La production des produits de fission gazeux à l'intérieur du combustible peut créer des pressions prohibitives à l'intérieur de la gaine contenant le combustible, dans la mesure où ceux-ci ne sont pas retenus à l'intérieur du matériau fissile. On sait actuellement que UO_2 libère tous les produits de fission au-dessus de $1900^\circ K$. Le carbure d'uranium est susceptible d'en retenir une partie même à $2000^\circ K$, selon sa granulométrie et sa porosité. On est normalement conduit à prévoir une évacuation des produits de fission en cours de fonctionnement puisqu'on ne peut pas compter sur l'étanchéité de la gaine elle-même à long terme et à haute température (surtout si l'on veut garantir la stabilité de ses dimensions géométriques).

En tablant sur un rendement de 10% pour la conversion thermo-ionique, le nombre de fissions de ^{235}U nécessaires pour 1 kW électrique est:

$$N \text{ fission/kWh} = 1,31 \times 10^{18}$$

ce qui libère une quantité de Xe et Kr gazeux de:

$$\text{Xe: } 4 \times 10^{17} \text{ atomes/kWh}$$

$$\text{Kr: } 1,3 \times 10^{17} \text{ atomes/kWh}$$

Les gaz sont susceptibles, en plus des déformations de gaine, de diffuser dans l'espace interélectrodes et d'y créer une atmosphère s'opposant au passage du courant. On peut considérer comme acceptable une pression des gaz résiduels ne dépassant pas la pression du plasma de césium. Dans ces conditions, tout système de pompage évacuant à cette pression le flux des Xe et Kr évacuera une quantité équivalente d'atomes de césium, puisque les masses des atomes Xe et Cs sont voisines.

On doit donc tabler sur une perte maximale de 5×10^{17} atomes de Cs/kWh, soit 10^{-4} g/kWh.

Cette perte est parfaitement tolérable dans des installations de petite puissance, telles que des réacteurs spatiaux de 100kW (c) fonctionnant pendant un an.

Sur ce type d'appareils, Xe, Kr et Cs sont simplement évacués dans l'espace extérieur par un orifice de conductance appropriée.

La quantité de Cs consommée serait de 150 g pour 100 kW/an. Il faut toutefois considérer qu'une quantité environ moitié de césium est produite par fission. Cette consommation n'est pas un handicap.

Dans des installations de grande puissance (plusieurs mégawatts) à terre, il y a intérêt à séparer le césium des gaz de fission non condensables, pour le réintroduire dans le circuit des convertisseurs.

Les gaz de fission doivent également être stockés. Il semble possible de n'avoir à manipuler que des produits gazeux stables (inactifs) en ménageant dans le système de pompage un réservoir de transit où les gaz séjournent le temps nécessaire à leur décroissance. Ceci est possible en raison du flux très faible de circulation (fig. 6).

La chambre de transit peut être constituée par des charbons actifs sur lesquels les gaz s'adsorbent. Leur dégazage après le temps de désactivation ne libère que les Xe et Kr stables; les Ba, Sr, Rb, Cs, I, Br restent piégés dans le charbon [7].

Cette opération est possible, même à la température ambiante, sur des charbons classiques, tels que ceux pour lesquels nous donnons les isothermes d'adsorption relevés à 20 et $40^\circ C$ (fig. 5).

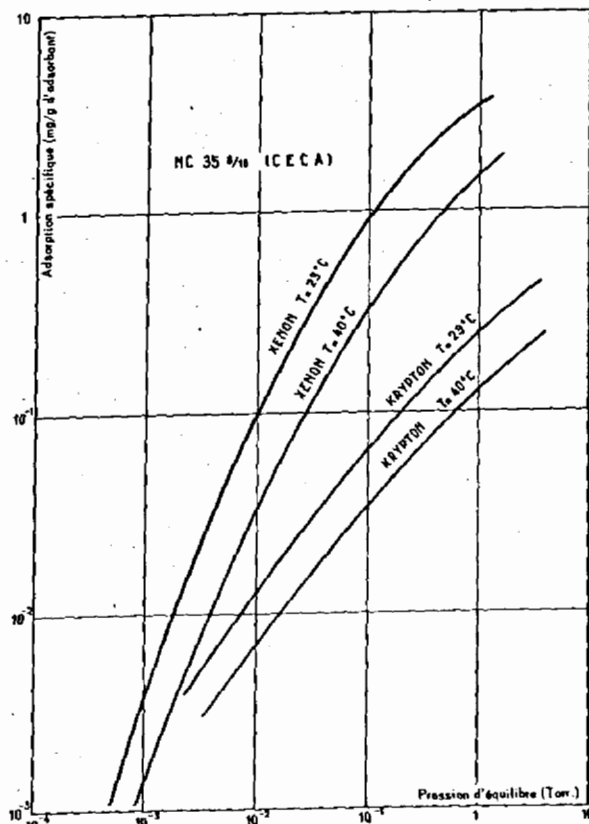


Figure 5. Isothermes d'adsorption du xénon et du krypton sur du charbon activé 1G

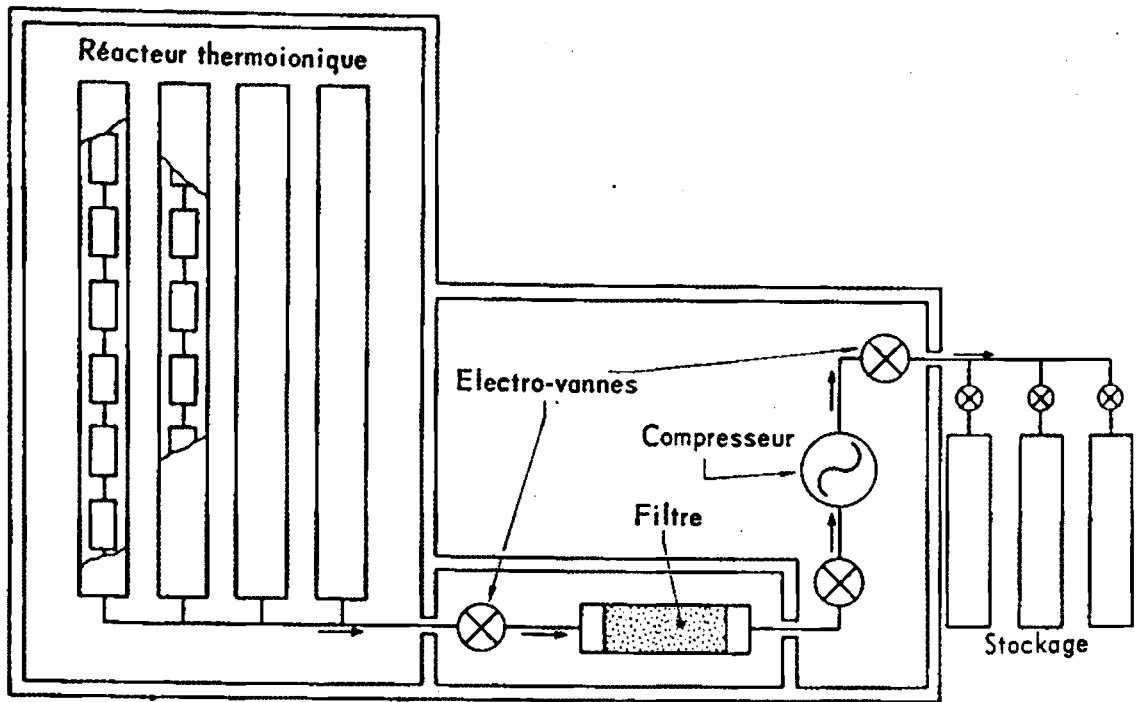


Figure 6. Ensemble de pompage des gaz de fission

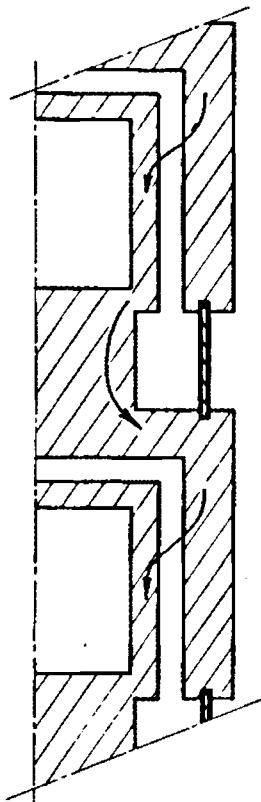


Figure 7. Jonction anode/cathode isolée

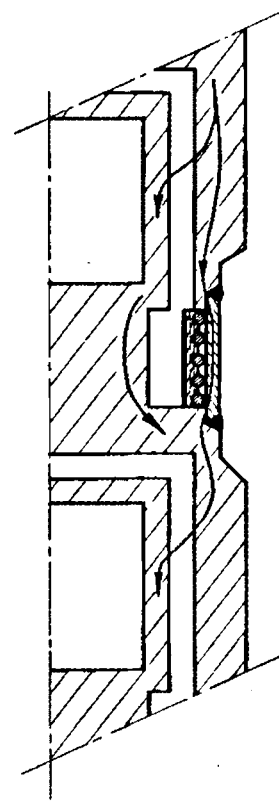


Figure 8. Jonction anode/cathode protégée

Refroidissement d'anode

Les puissances spécifiques mises en jeu sont telles qu'il faut évacuer à 1 000°K entre 50 et 100 W (th) par cm² de surface externe de collecteur. On a le choix entre une extraction par flux gazeux sous pression (CO₂) avec une anode munie d'ailettes du type de celles employées dans les réacteurs de puissance, et une extraction par NaK. La seconde solution est préférable pour des applications spatiales où la compacité du système est essentielle, car NaK supprime les compresseurs et s'accommode d'une pompe électromagnétique alimentée directement par les convertisseurs. La première augmente l'encombrement des barreaux combustibles, mais elle est directement transposable dans les réacteurs type EDF et ne pose aucun problème d'isolement électrique des anodes vis-à-vis du réfrigérant.

Jonction isolante anode/cathode (Fig. 8)

La technique la plus courante de mise en série consiste à relier les anodes successives par des anneaux isolants brasés; la technique actuelle peut fournir des jonctions étanches de ce type travaillant en pile au-dessus de 1 000° K [8] (fig. 7).

Il est toutefois possible de remplacer ces jonctions isolantes par un segment métallique mauvais conducteur qui ne dérive qu'une fraction relativement faible du courant engendré par chaque élément; étant données les intensités nominales par diode (150 A), la réalisation d'une telle jonction ne pose pas de difficulté particulière [9].

En fait, une telle jonction a en outre l'avantage de ne pas constituer un circuit ouvert en raison d'une défaillance sur l'un quelconque des convertisseurs constituant la série électrique. L'élévation de température sur cette jonction est favorable à la réalisation d'une autoprotection par fusible en cas de panne d'un élément. La figure 8 illustre ce procédé. La défaillance d'une diode entraîne la fusion d'un alliage qui vient établir une dérivation à faible résistance permettant le passage du courant en dehors de la diode fautive.

Couplage électrique et thermique

Diagramme d'adaptation à la charge

Le fonctionnement des diodes dans un ensemble générateur de grande puissance est nécessairement sujet à des changements de régime provenant des variations de charge électrique et de puissance thermique de la source. Il est donc nécessaire de connaître le fonctionnement du convertisseur dans une plage assez étendue autour des conditions de puissance d'entrée nominale P_0 et de puissance de sortie W_0 pour lesquelles le rendement est maximal.

Il est commode de représenter le fonctionnement du convertisseur à l'aide d'un diagramme d'adaptation à

la charge reliant la puissance à la tension de sortie: $W = f(V)$ tracé en régime statique et en régime dynamique. Ce mode de représentation a été choisi de préférence à d'autres parce qu'il permet instantanément la représentation globale du fonctionnement de diodes en série et en parallèle: a) le régime statique caractérise le point de fonctionnement permanent où la température de l'émetteur est stabilisée; b) le régime dynamique caractérise les évolutions rapides autour des points du régime statique (une évolution rapide ne permet pas à la température de l'émetteur de varier de façon sensible en raison de l'inertie thermique).

L'allure de ce diagramme est donnée sur la figure 9. Les courbes représentent la puissance de sortie W relevée en fonction de la tension de sortie V , pour différentes valeurs de la puissance d'entrée P .

L'ensemble est obtenu par un enregistreur XY et par un wattmètre à effet Hall (fig. 11). Les courbes statiques sont tracées avec un temps de défilement de la tension de sortie (variation de la résistance de charge) suffisamment long pour que la température de l'émetteur puisse être considérée comme stable. Les courbes dynamiques sont tracées à l'aide d'un balayage dynamique de la tension de sortie à une fréquence de l'ordre de 50 Hz (le wattmètre à effet Hall donne des indications correctes de puissance instantanée jusqu'à 500 Hz).

Il est indispensable d'y adjoindre les courbes représentant la température de l'émetteur en fonction de la tension de sortie $T_e = f(V)$ en régime statique; la température de l'émetteur reste identique à elle-même par définition en régime dynamique. Les courbes à charge constante sont des paraboles dont l'intersection avec les courbes à puissance d'entrée constante P permet de définir la résistance optimum.

Régimes transitoires

Lors d'une demande brusque de puissance, il est nécessaire de connaître la réaction d'un convertisseur à une variation inopinée de la charge.

La figure 10 représente les deux caractéristiques statique et dynamique d'un convertisseur. En supposant un fonctionnement initial optimal, le point représentatif caractérisant la diode se situe en A. Si la charge vient à se modifier, ce point évoluera d'abord sur la caractéristique dynamique pour revenir progressivement vers la caractéristique statique et finir au point D, pour lequel la température de cathode s'est modifiée et stabilisée.

Suivant l'utilisation que l'on recherche (source à courant constant, à tension de sortie constante) on régularise le flux neutronique (c'est-à-dire la puissance incidente) afin de revenir au niveau de courant ou de tension désiré.

La détermination complète des fonctions de transfert entre le réseau de charge et la température du combus-

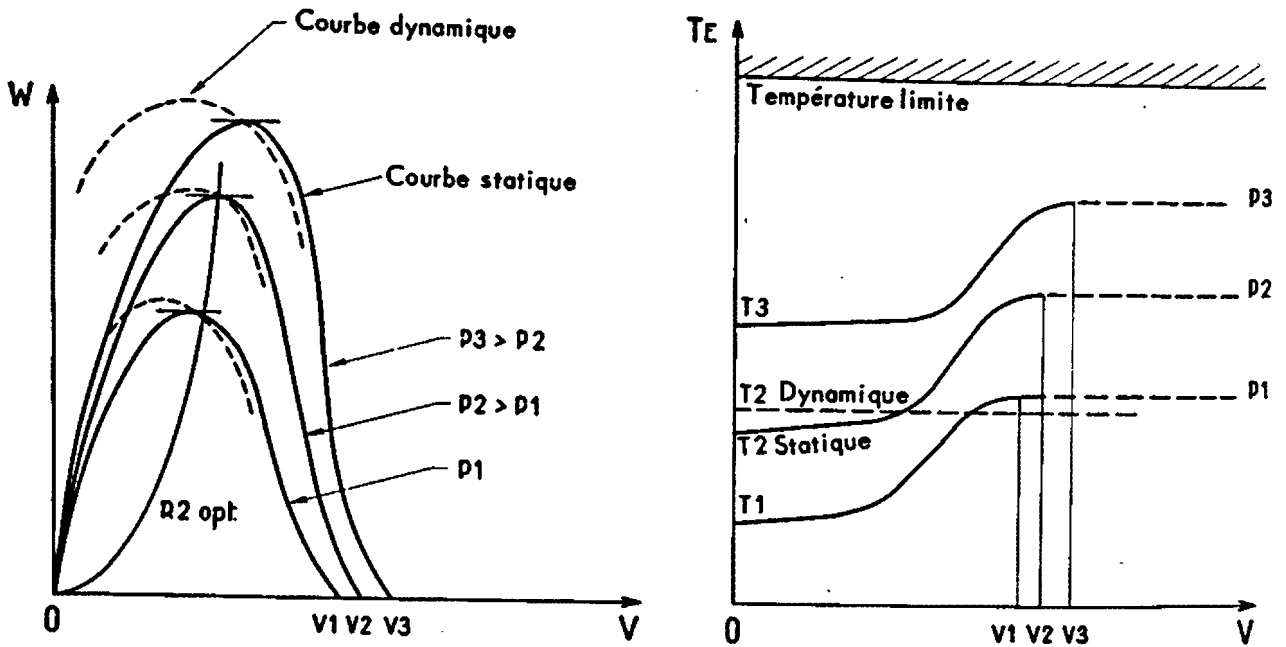


Figure 9. Diagramme d'adaptation

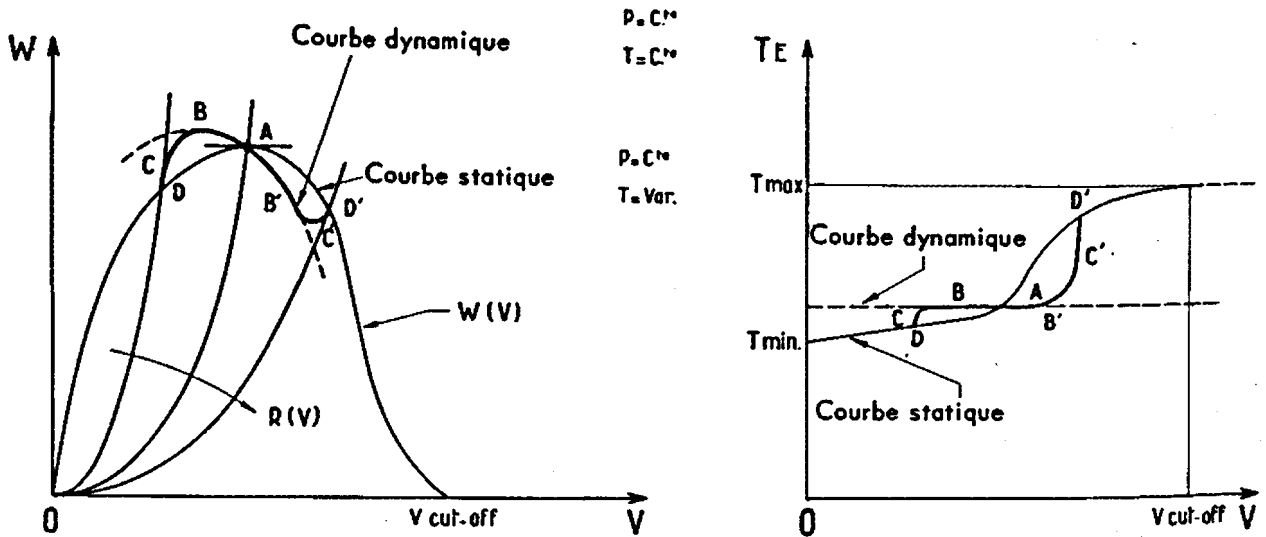


Figure 10. Diagramme transitoire

tible est indispensable pour le calcul du système de contrôle d'un réacteur à diodes: leur relevé expérimental est en cours.

Couplage

Un convertisseur ne pouvant représenter à lui seul qu'une puissance relativement modeste (150 W par exemple), tout projet de grande puissance entraîne obligatoirement un couplage de diodes soit en série,

soit en parallèle et, dans un ensemble tel qu'un réacteur, à des groupements série/parallèle importants. Ces groupements peuvent toujours se ramener au problème de deux diodes en série ou de deux diodes en parallèle que nous allons examiner maintenant.

Sur le diagramme d'adaptation (fig. 12), le courant de deux diodes en série recevant une puissance d'entrée distincte P_1 et P_2 est représenté par une droite issue de l'origine qui déterminera par ses intersections avec

les deux courbes $W(V)$ les deux tensions V_1 et V_2 ; de même, pour le montage en parallèle, les courants I_1 et I_2 seront obtenus par l'intersection de la droite représentative de la tension demandée. Il est alors possible d'en déduire le diagramme de la diode équivalente à deux diodes en série ou à deux diodes en parallèle. De ces groupements simplifiés on peut alors prévoir des ensembles série/parallèle pouvant s'intégrer dans un réacteur nucléaire.

ÉTAT DES ÉTUDES EN FRANCE

De manière indépendante, les études ont été entreprises en France par: a) le Commissariat à l'énergie atomique (CEA); b) la Compagnie française Thomson Houston (CFTH); c) la Compagnie générale de télégraphie sans fil (CSF).

Le CEA

Le CEA est naturellement intéressé par les applications nucléaires de la conversion directe et par les études fondamentales de physique qui y sont liées. Les études sont menées sur un financement interne CEA et portent sur les points suivants: a) essais de durée de vie en pile et hors pile; b) étude de l'homogénéité des surfaces émettrices: émission électronique, émission ionique (ces études sont menées avec un microscope à émission électronique et font l'objet d'un compte rendu annexe [10]); c) étude des convertisseurs à deux degrés de liberté en vue d'atteindre des rendements supérieurs à 30%; d) étude des régimes transitoires dans les convertisseurs thermo-ioniques et des couplages série/parallèle.

La CFTH

La CFTH a entrepris des recherches thermo-ioniques à partir de 1960 sur ses propres crédits de développement et sur des contrats EURATOM et DGRST (Délégation générale à la recherche scientifique et technique). Les études ont été orientées vers l'utilisation des sources à haute température: soleil, flammes, fission.

La réalisation de convertisseurs expérimentaux a conduit à des appareils cylindriques de performances analogues à celles publiées dans la littérature internationale (15%).

La CFTH étudie également des convertisseurs à basse température (1 500 °K) pour les applications au soleil et aux flammes, ainsi que des émaux anti-corrosion pour la protection des surfaces chaudes exposées à l'air (1 200 °C).

Les efforts sont spécialement orientés vers la reproductibilité des convertisseurs.

La CSF

La CSF travaille également sur des crédits internes de développement ainsi que sur des contrats de la DRME

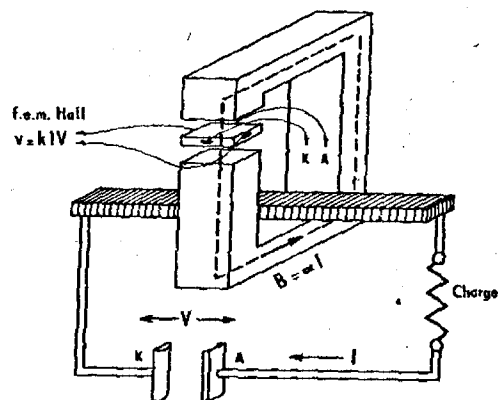


Figure 11. Wattmètre à effet Hall

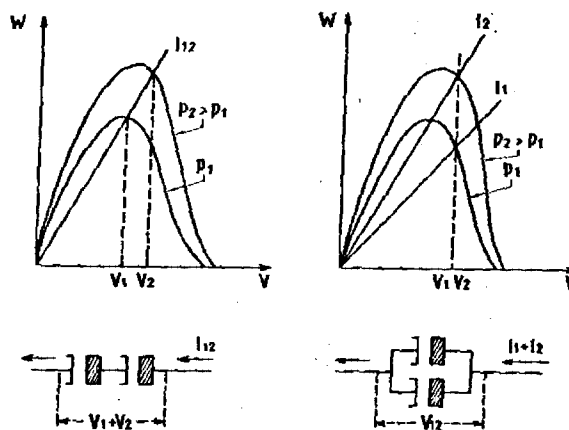


Figure 12. Diagramme de couplages série/parallèle

(Direction des recherches et moyens d'essais), de la DGRST et de compagnies étrangères.

Les études de la CSF portent également sur les convertisseurs appliqués aux trois sources à haute température et sont orientées vers la réalisation de convertisseurs à rendement élevé. Ces performances doivent être atteintes par une homogénéisation des surfaces émettrices (dépôts de W et Re en phase vapeur) et une réduction de l'espacement entre émetteur et collecteur (100 microns).

La CSF a également étudié l'émission électronique et ionique de systèmes capillaires à vapeur de césium qui sont révélés être des sources d'ions particulièrement intéressantes.

CONCLUSIONS

Il est encore trop tôt pour réaliser des générateurs nucléaires même de faible puissance (100 kW) exclusivement thermo-ioniques, en raison du petit nombre d'essais systématiques de durée qui ont été effectués. Toutefois les perspectives dans ce sens sont excellentes.

L'amélioration des performances par l'introduction de convertisseurs à deux degrés de liberté est certaine.

Il est raisonnable d'escompter d'ici un à deux ans la réalisation de convertisseurs ayant 30% de rendement.

Ce mode de conversion est fondamentalement simple, sans organes mobiles. Sa température de source froide permet un refroidissement facile.

Les diodes peuvent être construites autour du combustible nucléaire et possèdent une durée de vie comparable à la sienne.

Aucun matériau de haute pureté n'est exigé pour la réalisation des diodes, contrairement aux couples thermoélectriques ou photovoltaïques.

Le couplage thermique entre la source de chaleur et le point chaud du cycle de transformation est parfait et ne soulève pas de problème de paroi chaude.

Ces avantages sont indiscutables.

La technologie à mettre en jeu est certainement délicate, mais elle est déjà développée dans l'industrie électronique et donc susceptible des mêmes méthodes de production massive.

Il paraît donc souhaitable de poursuivre l'effort entrepris dans la conversion thermo-ionique afin de l'amener à l'extrême limite de ses possibilités, dont seulement une faible partie a été explorée.

BIBLIOGRAPHIE

1. Houston, J. M., *J. Appl. Physics*, 31, 7, 1230 (1960);
Ingold, J. M., *ibid.*, 32, 769-772 (1961); Schock, A., *ibid.*,

- 32, 1, 564 (1961); Devin, B., et Vandevygr, M., *J. Phys. et le Radium*, 23, 73 A (1962).
2. Hansen, L. K., et Warner, C., *Report on thermionic conversion specialist Conference*, Gatlinburg, octobre 1963.
3. Rasor, N. S., *Piece*, 733-747 (May 1963); Leving, J. D., *Report on thermionic conversion specialist Conference*, Gatlinburg, octobre 1963.
4. Chapman, R. A., *Report on thermionic conversion specialist Conference*, Gatlinburg, octobre 1963; Langpape, D., et Minor, S., VI^e Conférence internat. sur les phénomènes d'ionisation dans les gaz, Paris, 1963.
5. Lawrence, J., et Wilson, W. C., *Advanced Energy Conversion*, 2, 341-351 (1962).
6. *Report on thermionic conversion specialist Conference*. Session IV, Gatlinburg, octobre 1963.
7. Diebold, R. et Herold, A., *Mémoires de la Société chimique de France*, nos 111 et 187 (1963); Setton, R., *Faculté des Sciences*, Paris, communication personnelle.
8. Brundige, G. L., et Hanks, G. S., LAMS 2917.
9. Brevet français n° P.V. 946 317, septembre 1963.
10. Devin, B., et Nguyen Xuan Phuc, *Influence de l'hétérogénéité de surface sur l'émission électronique dans les convertisseurs thermo-ioniques*, rapport CEA 2519.
11. Mérard, R., *Bilan des énergies dans la connexion de cathode des convertisseurs thermo-ioniques*, Rapport CEA, à paraître.
12. Biaux, J., Durand, J. P., et Mérard, R., *Cathode thermo-électronique et effet magnétron*, *Onde électrique*, n° 436-437 pp. 763-773 (juillet 1963); rapport CEA, TP 2370.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/44 France

Direct conversion of heat into electricity in reactors

By B. Devin et al.

The direct conversion of heat into electricity by thermionic emission in an atomic reactor was studied with the threefold aim of applying it; as an energy source for a space vehicle; as the first stage in a conventional conversion system in power plants; and in association with thermoelectric conversion in ultra-low-power installations.

The laboratory experiments were mainly focused on the electron extraction from metals and compounds and their behaviour at high temperatures.

Converters delivering up to 50 A at 0.4 V with an efficiency around 10% were built in the laboratory; the emitters were heated by electron bombardment and were made of tungsten covered with a film of uranium carbide, or of molybdenum coated with caesium.

The main features of the connection between the converter and the reactor were studied from the point of view of electronics, namely: the influence of mismatching of the load on the temperature of the emitter; and that of thermal flux density on the temperature of the emitter and the stability of the converter.

Converters using uranium carbide as the electron emitter were tested in reactors. Experiments were carried out under transient conditions in order to determine the dynamic characteristics.

Load-matching curves were constructed, from which the over-all performance of a series of cells connected up in such a way as to form a reactor rod were deduced. This information is fundamental to the design of a control system for a thermionic conversion reactor.

The problems associated with the reliability of thermionic converters connected in series in the same reactor rod were studied theoretically.

Finally, absorption isothermals were drawn at ambient temperatures for krypton and xenon on activated carbon with the object of investigating the evolution of fission products in a converter.

A/44 Франция

Прямое преобразование тепловой энергии в электрическую в атомных реакторах

Б. Девен et al.

Прямое преобразование тепловой энергии в электрическую посредством термоионной эмиссии в атомном реакторе было рассмотрено с точки зрения ее использования: как вспомогательный источник энергии в космических аппаратах, как основной источник энергии в обычной системе преобразования энергии в установках большой мощности и, наконец, как составной элемент в термоэлектрических преобразователях в установках очень малой мощности.

Лабораторные исследования велись главным образом по извлечению металлов и их соединений и их изменениям при высоких температурах средствами электроники.

Преобразователи, дающие ток порядка до 50 а при напряжении 0,4 в и к. п. д. около 10%, были изготовлены в лабораториях. Излучатели, нагреваемые электронной бомбардировкой, выполнены из вольфрама, покрытого слоем карбида урана или молибдена, покрытого в свою очередь цезием.

Основные аспекты связи между преобразователем и атомным реактором изучались с точки зрения электроники: влияние несогласованности нагрузки на температуру излучателя и влияние единичного теплового потока на температуру излучателя и стабильность преобразователя.

Опыты с преобразователями, использующими урановое топливо в качестве электронного излучателя, проводились в реакторе для того, чтобы определить динамические параметры. Эти опыты проводились в переходном режиме.

Удалось создать цепи согласования нагрузки, с помощью которых были определены рабочие характеристики многих элементов, связанных между собой, чтобы образовать стержень реактора. Эти данные необходимы для разработки системы управления в реакторе с термоионным преобразованием.

Теоретически были рассмотрены проблемы надежности термоионных преобразователей, соединенных последовательно в виде единого топливного стержня. И, наконец, вычерчены изотермы поглощения для криптона и ксенона на активированном угле в условиях обычной тем-

пературы, для того чтобы выявить процесс образования продуктов деления в преобразователе.

A/44 Francia

Conversión directa del calor en electricidad en los reactores

por B. Devin et al.

La conversión directa de calor en electricidad por emisión termoiónica en un reactor, ha sido estudiada desde el triple punto de vista de su utilización como fuente auxiliar de energía en un ingenio espacial, como punto de partida de un sistema convencional de conversión en las instalaciones de potencia y, por último, asociada a la conversión termoeléctrica en instalaciones de muy baja potencia.

Los estudios en laboratorio se han enfocado principalmente sobre los trabajos de extracción electrónica de los metales y aleaciones y su evolución a alta temperatura.

Se han conseguido en el laboratorio convertidores que suministran hasta 50 A a 0,4 V con un rendimiento próximo al 10%; los emisores calentados por bombardeo electrónico estaban constituidos por tungsteno, recubierto por un depósito de carburo de uranio, o de molibdeno, recubierto de cesio.

Los principales aspectos del acoplamiento entre el convertidor y el reactor se han examinado desde el punto de vista electrónico: influencia de la inadaptación de la carga sobre la temperatura del emisor e influencia del flujo térmico nunitario sobre la temperatura del emisor y la estabilidad del convertidor.

Se han experimentado en el reactor convertidores que utilizan carburo de uranio como emisor electrónico. Se realizaron ensayos en régimen transitorio a fin de determinar los parámetros dinámicos.

Asimismo, se ha logrado construir las redes de adaptación a la carga y se han deducido así las características globales de muchas células acopladas de modo que formen una barra del reactor. Estos datos son indispensables para la concepción de un sistema de control de un reactor de conversión termoiónica.

Se examinaron teóricamente los problemas de los convertidores termoiónicos asociados en serie en una misma barra combustible. Por último, se han trazado las isoterma de absorción a temperatura ambiente del criptón y del xenón sobre carbón activado, a fin de estudiar el desprendimiento de productos de fisión en un convertidor.

Fission-heated thermionic diodes

By P. D. Dunn and J. Adam *

Thermionic generators are particularly suitable where fission heating is involved since, if the emitter contains fissile material, it may be part of the fuel element in a reactor and readily arise to a high temperature. Possible applications of fission-heated diodes include their use as a thermodynamic topper for nuclear power stations. Here the diode is used, with the steam turbine, as the high temperature stage of a two-stage converter. Another application is the provision of electrical power in large space-vehicles where, due to a high collector temperature, the reject heat can be readily dissipated by radiation. The operational characteristics of thermionic generators have been presented in detail elsewhere [1-3]. The thermionic generator is characterised by a power density in the range 5-20 W/cm², an output voltage of the order of one volt, a rejection temperature of 700-1000 °C and a conversion efficiency in the range 10-25 %.

The UK Atomic Energy Authority have for some years supported a programme of research and development aimed at obtaining both an understanding of the basic physical, materials and engineering problems and information on the potential capabilities of such generators. The work is not directed towards a specific application. This paper describes the present programme of experiments and gives results and conclusions to date.

To draw current densities of 10-20 A/cm², it is necessary either to avoid space charge limitation of the current by the use of extremely small inter-electrode spacing (< 0.001 mm) or to neutralise the negative charge by the provision of positive ions in the inter-electrode space. Small spacings have been used successfully in low-power applications not exceeding a few watts but do not appear to be practicable for larger generators. A number of possible methods of achieving neutralisation has been put forward, but the simplest and most practicable is to fill the device with caesium vapour at a pressure of 0.01-10 torr. Various ionising mechanisms occur and result in an adequate supply of positive ions. The use of caesium has another beneficial effect since by condensing on the collector

in a layer more than a few atoms thick, caesium lowers the collector work function to 1.8 V.

A basic problem with the fission-heated generator is the choice of a suitable emitter. Uranium monocarbide has a reasonably low work-function and high electrical and thermal conductivity and when used without cladding at a surface temperature of 2000 °C gives an electronic emission of the order 15 A/cm². Experience at Los Alamos, confirmed at Harwell, indicates that the addition of zirconium carbide improves the resistance of uranium carbide to thermal stress, but has little appreciable effect on the electronic emission. Factors limiting the life of unclad carbide emitters are fission gas retention which ultimately causes distortion, and evaporation due to the high operating surface temperature.

These limitations could probably be overcome if the fissile fuel is clad in a refractory metal can. The work function of these surfaces is too high to give adequate emission at reasonable temperatures (for example, tungsten at 2400 °K has a saturation current of 100 ma/cm²). However, if the caesium pressure were sufficiently high (1-10 torr), the refractory surface would be modified and the emission current increased to an acceptable value. There are a number of advantages from this arrangement. The surface temperature may be lowered to 1500 °C, compared with 2000 °C for unclad carbides, and there is greater choice of fissile fuel. However, a problem arises from the compatibility requirement between the fuel and cladding material. Also, in the high pressure generator, plasma resistance becomes significant so that inter-electrode spacing must not exceed 0.25 mm with a consequent requirement for high dimensional stability of the emitter. The use of caesium leads to problems of compatibility and limits the choice of suitable ceramic to metal seals.

IN-PILE RIG DESIGN AND EXPERIMENTS

Early studies

The first in-pile experiment to be reported was by Grover of Los Alamos [4], and since then other workers have published results on similar rigs [5-10]. The experiments described below were designed to

* UKAEA, Atomic Energy Research Establishment, Harwell.

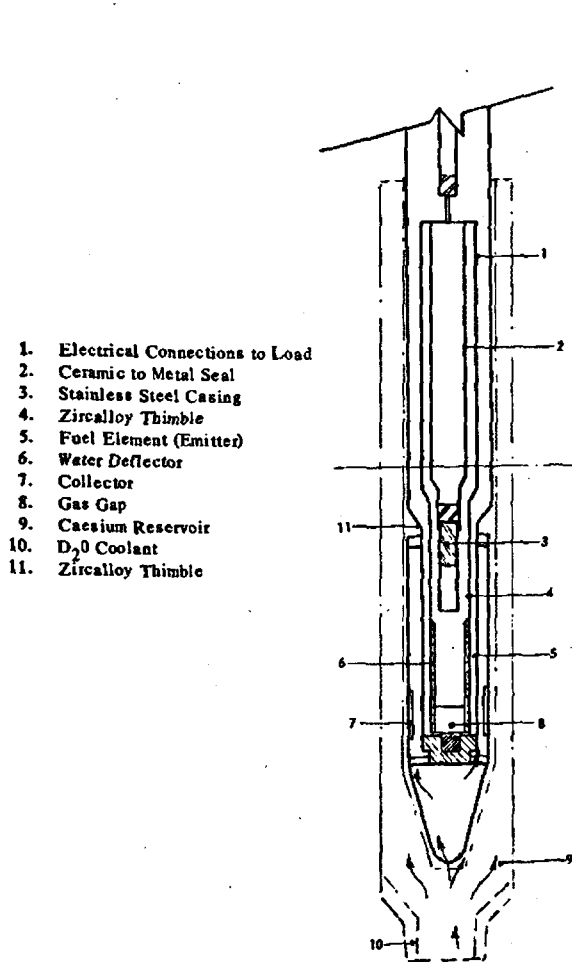


Figure 1. Mark I series rig

supplement laboratory work and enable the basic data to be obtained and design principles verified.

Some design requirements, mainly related to safety and the type of reactor used, are inherent in this type of experiment, but will not exist in a complete thermionic reactor. These include the provision of catchpots, double containment, and a suitable thermal impedance between the collector and the heavy water coolant. Other problems, such as caesium compatibility, fuel element fabrication and brazing techniques are directly related to a final design of a thermionic reactor.

A number of designs was considered from which an unclad cylindrical system was selected.

Mark I type rigs

In these experiments, bus-bars were omitted to simplify both the vacuum sealing and rig engineering and to avoid the use of ceramic to metal seals. The emitter was mounted from the walls of an all-steel welded vacuum chamber, part of which served as collector with the remainder acting as a fixed electrical

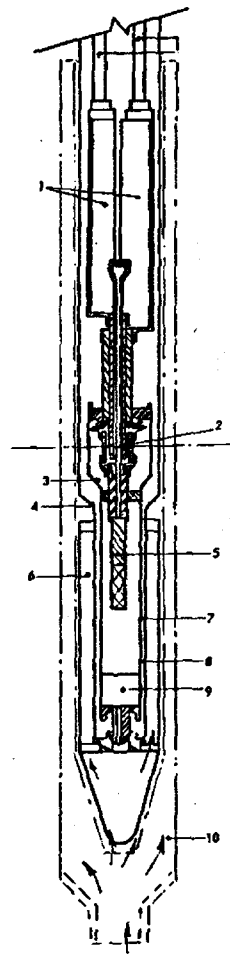


Figure 2. Mark II series rig

load (Figs. 1 and 2). The vacuum space was made large so that the effect of fission product gas build-up would be small in the one-day exposure allocated for the experiment.

The core of the PLUTO high-flux heavy-water-moderated reactor used for the experiment [11] is designed to take a number of 5 cm diameter experimental thimbles fitted within annular fuel elements; these are loaded through the shielding above the core. The maximum neutron flux occurs near the core centre, and one of these thimbles is suitable for a narrow cylindrical design of a diode with the emitter rod mounted on the axis. The gamma radiation heating (~ 1 W/g) of the structural metals is sufficient to maintain the diode-casing temperature above that of the caesium reservoir.

In the designs adopted, the heat generated is transferred from the diode envelope to the heavy-water-cooled thimble via a helium gas-gap sized to give the required envelope temperatures. Control of the reactor power governs both the emitter fission heat and the gamma radiation of the metal casing. Therefore, special

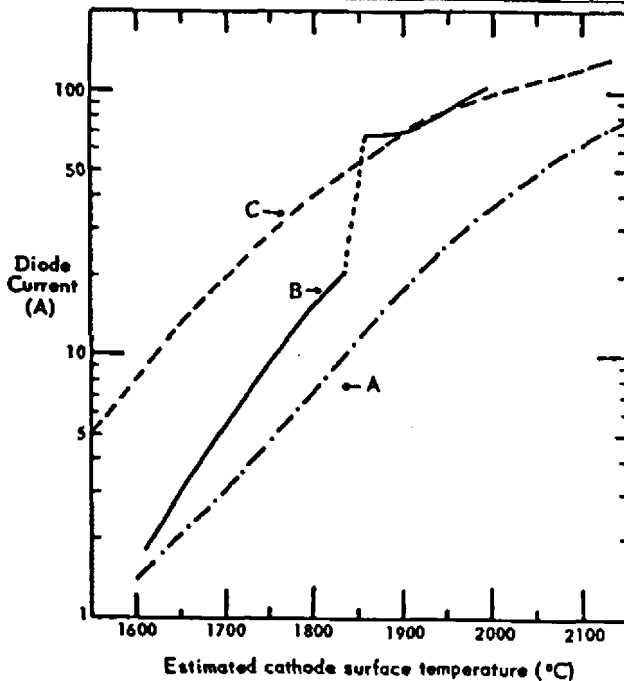


Figure 3. Current temperature characteristics for the Mark I rig
 A: Laboratory vacuum emission measurements
 B: First experimental run
 C: Subsequent experimental runs

means must be provided to adjust separately the temperatures of the collector and caesium. Two in-pile assemblies were constructed; in one rig, independent temperature control of the diode casing and caesium reservoir was obtained by changing the helium pressure in the thimble. A pressure change of 100 to 1 torr increased the thermal impedance by a factor of four. In the other rig, the helium was at atmospheric pressure and a small electrical heater at the base of the diode provided an independent control of the caesium pool temperature and saturated vapour pressure. It was possible, with a combination of gas-gap pressure and heater control, to vary the caesium and collector temperatures independently, but in the interests of simplicity of operation and reliability of the system, it was decided to try the methods of control separately.

To make the rig as safe as possible, a shielded catchpot was arranged to contain the fuel element should it fracture and fall. The neutron flux level in the catchpot region was reduced by a factor of 10 by means of a cadmium shield, and thermocouples in the catchpot were set to operate trips which shut down the reactor. A loose-fitting tantalum cylinder in the catchpot prevented the hot fuel element from making direct contact with the steel envelope.

The results of the experimental runs are shown in Fig. 3. In the gas-gap rig a maximum current of 132 A was deduced from the potential measured on the fixed load at a caesium pressure of 0.08 torr and a temperature of 2100 °C. At 0.01 torr and 2000 °C the current was 100 A. Similar results were obtained with the second rig. The fixed load resistance was not

matched and the actual efficiency was about 2.7%. The rigs were operated for 36 and 10 hours respectively. No fall-off in performance was observed during these periods.

Mark II type rigs

To extract the electrical power from the generator into an external load a ceramic to metal seal is necessary. The seal temperature must be higher than the caesium reservoir temperature to avoid condensation of caesium on the insulator and consequent short circuiting, so a temperature of about 450 °C was selected. Factors leading to the choice of both a high purity alumina ceramic and the braze material are given later.

Since fracture of the ceramic would allow the release of fission gas into the reactor vessel, double containment was arranged by incorporating a second seal, made up from a central conductor sprayed with alumina which was then electroplated with copper to form an outer cladding. Apart from the seal, the basic rig design was as for the Mark I series and used UC-ZrC unclad emitters in cylindrical shape with spacings in the range 1-1.5 mm. Minor modifications were made, namely, a copper thermal shunt was included on the outside of the collector to flatten the temperature distribution and the cadmium shield around the catchpot was omitted.

Two rigs were operated; as with the Mark I rigs, one employed a variable gas pressure and the other an electric heater for temperature controls. Operating characteristics were obtained by using a 50 cps transformer load in series with a fixed matched resistance. The results on the two rigs were similar. Total current at 2000 °C emitter temperature was 88 A and 1.4 volt into a matched load to give 120 W output power. With caesium pressure 1 torr the estimated efficiency was 6-7%. Figure 4 shows hysteresis effects which

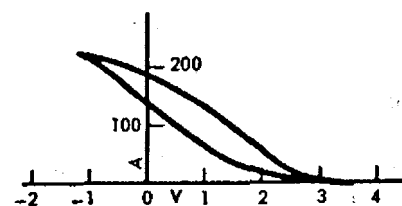
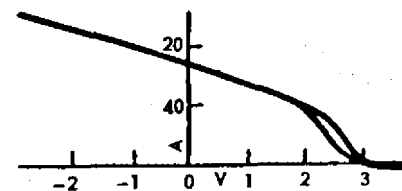


Figure 4. Current voltage characteristics for the Mark II rigs

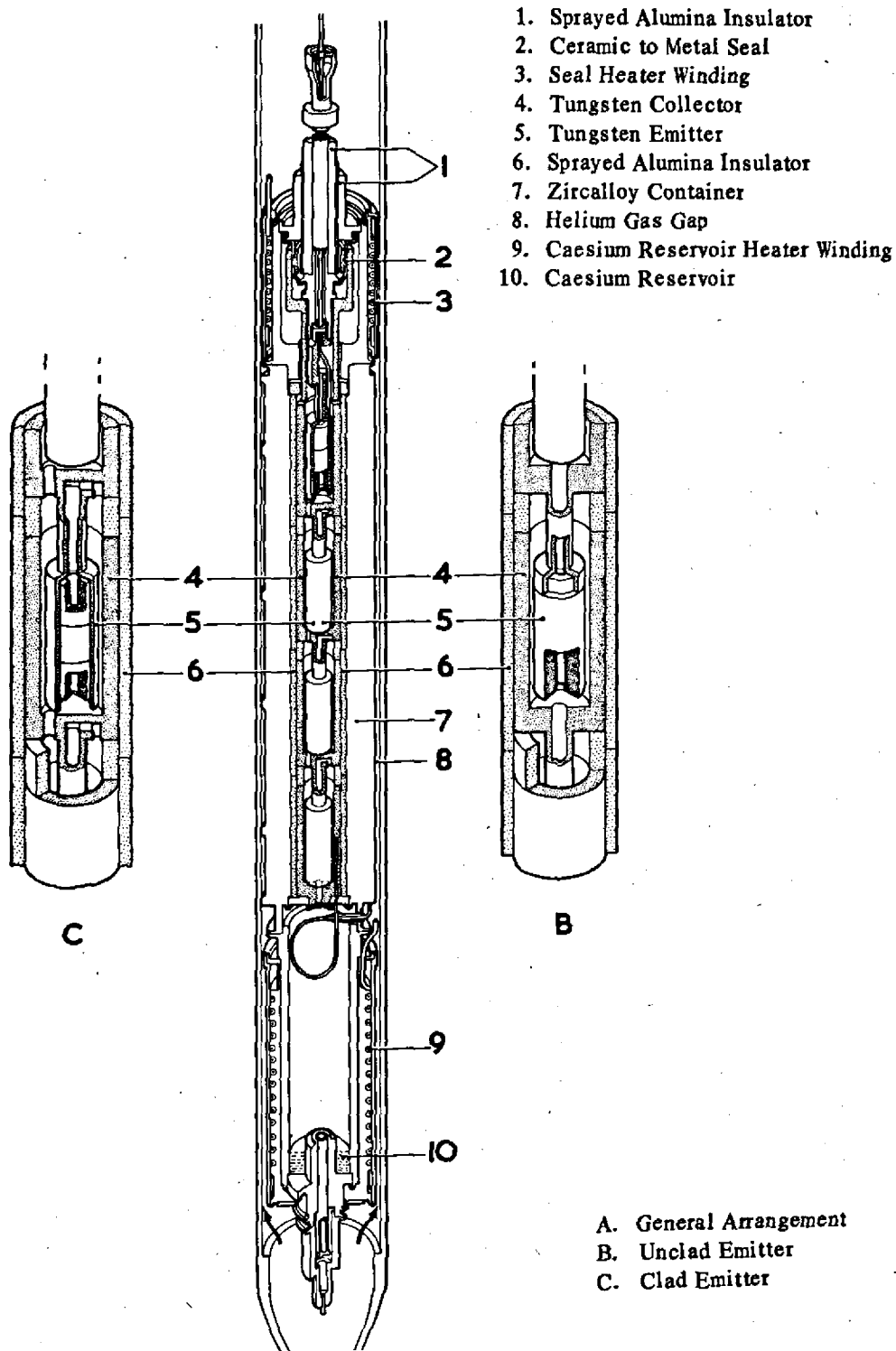


Figure 5. Mark III series rig

are believed to arise from temperature variations of the emitter surface caused by variation in electron cooling throughout the cycle. One rig operated for 20 hours and the other for 60 hours. No fall-off in performance was observed during these periods.

There is some uncertainty in estimating the fission power input to the rigs. Two methods are used: direct

calculation using measured neutron flux in an adjacent fuel element and flux depression data obtained from experiments with simulated rigs in the DAPHNE zero energy reactor [11]; the second method using measured temperature gradients in the rigs and calculated thermal impedance. The results for the two methods differ by about 15%, the latter giving the lower value.

In order to obtain a more accurate value, a new rig has been designed to incorporate a calorimeter and has recently been commissioned. The electrode spacing is 1 mm. Preliminary assessment of the experimental results indicates that the thermal calculations are correct.

In order to obtain data on clad generators a further rig of similar overall design, but using tungsten-clad UC-ZrC and 0.5 mm spacing, has been constructed and will be operated at the same time.

Mark III type rigs

The rigs so far described have been aimed at developing a single module. The Mark III series of rigs are intended as a first approach to the design of the core of a thermionic reactor. Such a reactor will consist of many generators in series-parallel arrangements.

Two designs have been produced, using either clad (Fig. 5) or unclad emitters and incorporating four cylindrical generators in series. In such an arrangement, each collector must act as the catchpot in the event of fracture of the fuel element and for this reason must be a refractory metal. Successive collectors must be insulated, and a convenient way of achieving this is shown in Fig. 5, where alumina is sprayed onto the refractory collectors which are then ground and assembled in a honed Zircaloy tube. This method has the additional advantages of providing good mechanical support and containment and not requiring a vacuum seal between successive generators. The rig with clad emitters incorporates spacings of 0.25 mm for the three lower generators and 0.5 mm for the upper generator and is scheduled for operation in 1964.

Mark IV type rigs

These rigs, which are similar to Mark II, are intended to provide information to assess the factors affecting the life of thermionic generators. The Mark IV series of experiments has thus been designed for operation for one month. Since it is not possible to have the sole use of a research reactor for this period, the actual neutron flux in the rig may vary. Flux depression experiments have indicated the mean level to be expected and fluctuations in flux density will be compensated by the automatic positioning of the rigs in the flux gradient. In order that the rigs may be operated unattended, a simple fixed load design broadly similar to the Mark I has been evolved.

POST-IRRADIATION EXAMINATION

The four diodes with unclad UC-ZrC as fuel which operated in the reactor were examined in hot cells.

Macroscopic examination of the emitter indicated a slight decrease in diameter of the hottest section of

the rod and a dark deposit was absorbed on the collector and identified by X-ray diffraction as a mixture of UC-ZrC and $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$. Lattice parameters of both these mixed compounds are sensitive to the U:Zr ratio and measurements showed that the uranium content of the deposit was greater than that of the original cathode material. Furthermore, lattice parameter measurements of UC-ZrC on the cathode surface indicated that the uranium content was somewhat lower than before irradiation. Although quantitative analysis of these measurements is not possible, because unit cell sizes of uranium carbides depend also on stoichiometry of the compounds, qualitatively it appears that uranium carbide is evaporated preferentially from UC-ZrC. The evaporation rate was estimated as 2×10^{-7} g/cm²s at the operating temperature of the order of 2000 °C.

A polishing technique, which was satisfactory for unirradiated UC-ZrC, left a chipped surface on the irradiated material. Apart from the surface roughening there was no other difference in appearance under microscopic examination between irradiated and unirradiated UC-ZrC. Examination in an electron microscope of a shadowed replica taken from the etched surface of irradiated material revealed presence of unidentified grain boundary precipitates very similar in appearance to those found in unirradiated UC-ZrC which has been heat-treated for 3 hours at 2500 °C (Fig. 6).

The fission gas evolution from the cathode will have a decisive effect on the performance and life of nuclear thermionic converters. In a gas sampling operation carried out on one of the irradiated diodes only 20% of the estimated amount of krypton and xenon produced has been collected. This suggests that a very large proportion of fission gases is retained in the fuel and consequently swelling of the cathode is likely to occur at high burn-up. Further experiments are required to determine the limits of operating temperatures and burn-up of UC-ZrC before a final assessment can be made of this material for practical converters.

MATERIALS PROBLEMS IN NUCLEAR THERMIONIC CONVERTERS

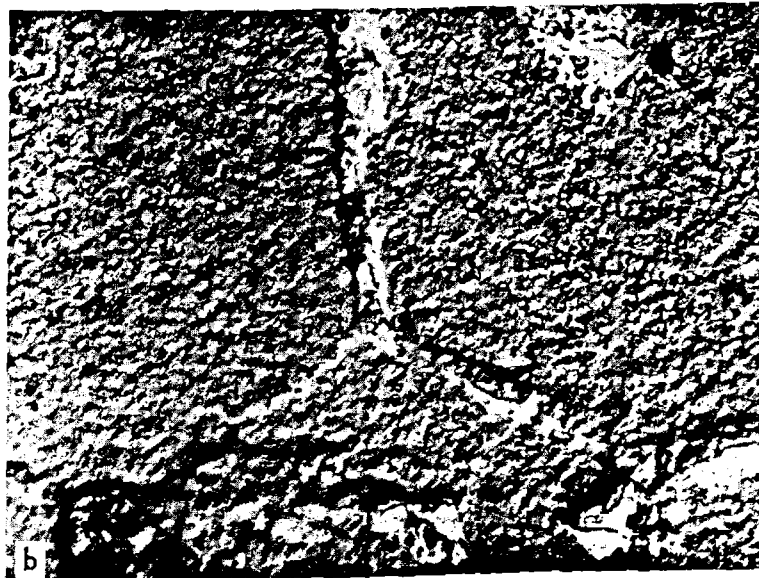
Design studies, laboratory and in-pile experiments with converters indicate that there are broadly three areas of research and development in the field of materials which must be investigated: high temperature materials for emitters, ceramic to metal seals, and compatibility of materials with caesium. Irradiation effects are important in all these; the specific investigation on the materials used in the rigs is described above.

Emitter materials

UC-ZrC alloy has many properties which make it suitable as an emitter material. UC-ZrC alloy containing 46 mol % of UC was chosen for the first series



After irradiation at 2 000 °C ($\times 10\ 000$)



After heat treatment at 2 500 °C ($\times 4\ 000$)

Figure 6. Precipitates formed in UC-ZrC

of thermionic converter experiments in which the fuel operated without cladding [12].

Several fabrication routes have been considered [12] for the production of cathodes, and preliminary tests indicated that hot pressing and two-stage sintering offered the best possibilities of fabricating satisfactory bodies. The two-stage sintering technique appeared more flexible and the main development effort was deployed in the investigation of fabrication parameters. In the first stage, elemental powders (U, Zr, C) were compacted and reacted in vacuum for 2 hours at 1400 °C. The sinters obtained were then crushed and milled in argon and the resultant powder hydrostatically compressed and outgassed at 1400 °C, before being finally heat-treated at 2130 °C vacuum. The densities of the final bodies depend on the milling time and sintering temperature and by varying these, sinters of densities between 80-96 % of theoretical were produced.

Emitters produced by the two-stage sintering process could be readily brazed with zirconium to tantalum supports. It was found, however, that low-density rods (80 % dense) tended to crack at or near the braze when thermally cycled. X-ray and metallographic examination showed the material to be single phase but electron microscopic examination of replicas taken from polished and etched samples after heat treatment at 2500 °C, revealed small precipitates of a second phase (Fig. 6). These precipitates may possibly be caused by a change in chemical composition due to preferential evaporation of uranium at high temperatures.

As has been mentioned earlier, a nuclear fuel clad in a refractory metal appears to be suitable for thermionic converter emitters provided that the caesium pressure is sufficiently high. Evaporation problems are virtually eliminated and some fuel swelling may be tolerated if adequate free space is provided inside the can.

The choice of fuel and can materials is influenced by work-function, compatibility and nuclear considerations. Uranium dioxide fuel is compatible with refractory metals but its thermal conductivity is low, and consequently the fuel would operate with a molten centre when its surface temperature exceeds 1500 °C. A cermet fuel would not suffer from this disadvantage and properties of tungsten- UO_2 cermets are being investigated in the USA and UK. The emphasis at Harwell was initially put on the uranium carbide-zirconium carbide alloy and compatibility studies indicate that this fuel is compatible with tungsten at temperatures below 2200 °C. UC-ZrC reacts, however, with tantalum above 2000 °C, with niobium above 1800 °C and with molybdenum above 1650 °C. All temperatures quoted relate to tests not exceeding 3 hours duration and UC-ZrC used in this work contained slightly less than the stoichiometric ratio of carbon.

While tungsten cans have favourable work function, compatibility and negligible evaporation properties, fabrication difficulties and a high neutron absorption cross section for thermal neutrons indicate that other refractory metals would be preferable. Niobium and molybdenum are particularly attractive; their use however depends on the development of adherent diffusion barriers between the fuel and can. Tungsten coatings produced by spray and halide decomposition processes are currently being evaluated.

Caesium compatibility

Standard seals between metallized alumina and certain metals are available commercially from a number of manufacturers but their life in nuclear thermionic converters is limited by caesium corrosion. Experiments [13-16] indicate that only high purity alumina is compatible with caesium. In low grade alumina, caesium attacks the silica phase and the material disintegrates. Common brazing alloys containing gold, silver or palladium fail when exposed to caesium. The process of attack is not clearly understood; in the case of gold and also silver these materials appear to be leached out from the brazing alloy. Pure copper can be used for brazing alumina to metals and seals made with copper have been operating in a caesium atmosphere for periods exceeding 600 hours at temperatures of 600 °C. This, however, appears to be the temperature limit beyond which copper cannot be used with confidence and will place a severe limitation on designers of thermionic converter reactors; the development of irradiation and caesium-resistant high temperature seals is therefore of considerable importance.

Work in progress at, or sponsored by, Harwell includes the development of high temperature seals and the testing of ceramic to metal bonds in caesium at temperatures of 450 and 550 °C in a reactor for a period of 10 to 12 months in a flux of 10^{12} n/cm²s.

Common structural materials used in nuclear reactor rigs are compatible with caesium. Tests carried out on niobium, zirconium and Zircaloy at 600 °C in caesium show some discoloration, but there is no loss of ductility or strength at 100 hours.

Stainless steel is also compatible with caesium below 700 °C, but there is some evidence that alloys with a high nickel content may suffer damage at temperatures approaching 700 °C.

DISCUSSIONS AND CONCLUSIONS

Experiments described here and by other workers indicate that single diodes of about 15% efficiency can be developed reasonably quickly but their usefulness as reactor elements will depend on life and reliability. The development of a suitable fuel emitter combination presents the main difficulty, principally because very

high operation temperatures are required, and partly because the production of rare gas atoms in the fuel is inherent in fission. Evaporation of the unclad carbides is high at normal operating temperatures; also the retention of fission gas may lead to fracture and be the determining factor in limiting lifetime. In the case of cladding by the refractory metals, tungsten and molybdenum are compatible with uranium carbide and uranium oxide but since very close inter-electrode spacings are required, work is needed to establish distortion burn-up characteristics. The limit of performance of the possible fuels is not yet known. Rare gases and, to a lesser extent, other fission products produced in the fuel will set a major materials design problem which may have different solutions in accordance with the purpose of the reactor. Thus, for a thermionic converter required for a specific mission in which the economic utilization of fuel is not important, one may prefer a strong gas retaining fuel which would remain stable for the duration of the mission. In the case of thermodynamic toppers for nuclear power stations, distortion of the gas-retaining fuel may become excessive before the economic level of burn-up is reached; in this case, a fuel releasing gas easily, together with a purging system, may be advantageous.

The problems associated with the design of a complete reactor are more difficult to isolate. A uniform neutron flux distribution will be required and some form of flux flattening will be necessary. Perturbation of the flux level from control rod movement will need to be kept small and may, to some extent, be overcome by the use of burnable poisons. It is certain that because of the constructional materials used in the thermionic generators, additional enrichment will be necessary. The most likely first application will be as a power source for a space vehicle. It is possible that diodes may be developed as toppers for nuclear power stations. The problem here will be economic, and considerably more information will be required before it is possible to say whether the increase in overall efficiency offsets the unavoidable increase in capital cost and fuel enrichment.

REFERENCES

1. Wilson, V. C., *Conversion of Heat to Electricity by Thermionic Emission*, J. Appl. Phys., 30 (4), 475 (1959).
2. Dunn, P. D. and Wright, J. K., *Generation of Electricity by Unconventional Methods*. Proc. Instr. Elect. Engrs., 110 (10), 1837 (1953).
3. Schock, A., *Optimisation of Emission-limited Thermionic Generators*, J. Appl. Phys., 32, 1564 (1961).
4. Grover, G. M., *Los Alamos Plasma Thermocouple*, Nucleonics, 17, 54 (July 1959).
5. Jamerson, F. E., *Thermionic Direct Conversion Studies with a Noble Gas Plasma Diode*, SAE Paper 120C (January 1960).
6. Howard, R. C., *A Nuclear Thermionic Converter*, J. Instr. Elect. Engrs., 7, 284 (1961).
7. Ogle, H. M., Samstad, G. I. and Von Damm, C. A., *Nuclear Thermionic Fuel Element Experiments*, Advan. Energy Conversion, 2, 353 (1961).
8. Dunn, P. D., Rice, G., Sanders, L. G., Watt, D. A., Adam, J., Hill, R. J., Purchas, J. G., Wheatley, C. C. H., and McWilliams, J. A., *Direct Conversion of Fission Heat to Electric Power*, Nature, p. 65, 7 July 1962.
9. Nucleonics Week, 25 April 1963, Reports by RCA and Babcox and Wilcox.
10. Busse, C. A., Caron, R. and Salmi, E. W., *In-pile Test of a Thermionic Converter*, Report EUR 485^e (1963).
11. Jackson, R. F., *Experience of Operation and Use of the U.K. High-Flux Research Reactors*, P/123, Vol. 7, these Proceedings.
12. Adam, J., Harrison, J. W., Riviere, J. C., and Thorpe, T., Paper 60 (B. 27), Symposium on Carbides in Nuclear Energy, Harwell, November 1963.
13. Wagner, P. and Coriell, S. R., *On the High Temperature Compatibility of Caesium Gas with some Dielectrics*, Rev. Sci. Instrum., 30 (10), 937 (1959).
14. Keddy, E. S., *Compatibility Evaluation of Materials with Caesium*, USAEC Report LAMS-2948.
15. Smith, R. G., Hargreaves, F., Mayo, G. T. J. and Thomas, A. G., *A Study of the Compatibility of the Thermionic Converter Materials with Caesium*, J. Nucl. Mater., 10 (3), 191 (1963).
16. Slivka, M. J., *A Study of Caesium Vapour Attack on Thermionic Converter Construction Materials*, Advan. Energy Conversion, 3 (1), 157 (1963).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АБСТРАКТ—RESUMEN

A/132 Royaume-Uni

Diodes thermo-ioniques chauffées par fission
par P. D. Dunn et J. Adam

Le mémoire décrit l'ampleur et les objectifs du programme de l'United Kingdom Atomic Energy Authority relatif aux convertisseurs thermo-ioniques chauffés par fission. Deux types de dispositif expérimental en pile ont fonctionné en 1962/63, le premier

avec une charge électrique fixe, l'autre avec une charge électrique variable. Tous ces dispositifs (quatre) comportaient des barres de UC-ZrC non gainées en tant qu'émetteurs, et leur intensité de sortie était de l'ordre de 10-15 A par centimètre carré de surface de l'émetteur. L'examen après irradiation indique qu'une certaine quantité de matériau combustible s'est évaporée de l'émetteur et déposée sur l'anode. On trouve des indices selon lesquels UC s'évapore de préférence à partir de l'alliage UC-ZrC.

Le mémoire décrit dans ses grandes lignes le programme en cours. Afin d'obtenir une mesure plus précise de l'efficacité des diodes, les dispositifs futurs seront placés à l'intérieur de calorimètres. On a construit des dispositifs avec émetteurs en métal réfractaire travaillant à des pressions de césium élevées, et on a conçu un dispositif composé de quatre générateurs en série à l'intérieur d'une seule enveloppe.

Le mémoire discute par ailleurs la fabrication du combustible UC-ZrC, les essais de compatibilité effectués sur différents matériaux plongés dans le césium ainsi que les plans concernant des travaux futurs sur la compatibilité métal réfractaire-combustible fissile et les joints entre céramique et métal.

A/132 Соединенное Королевство

Термоэмиссионные диоды с ядерным подогревом

Дж. Адам, П. Д. Данн

В докладе описываются цели программы по разработке термоэмиссионных преобразователей с ядерным подогревом Управления по атомной энергии Соединенного Королевства. В 1962—1963 годах испытано два типа внутриреакторных устройств: с фиксированной электрической нагрузкой и с переменной электрической нагрузкой. Эти устройства (всего четыре) в качестве эмиттера имели непокрытые стержни из карбида урана — карбида циркония. Выходной ток достигал 10—15 а на 1 см² эмиссионной поверхности. Исследования после облучения показали, что имеет место испарение материала эмиттера и осаждение его на аноде. Было также установлено, что испарение сплава UC—ZrC идет в основном за счет карбида урана.

Приводится программа современных разработок. Для получения более точных значений к. п. д. диодов разрабатываемые устройства будут помещаться в calorimeters. Сооружены установки, имеющие тугоплавкие металлические

эмиттеры, работающие при повышенном давлении цезия. Спроектирована установка, содержащая четыре генератора, соединенных последовательно и заключенных в одну оболочку.

Обсуждаются вопросы изготовления топлива из UC—ZrC, совместимости различных материалов с цезием, планы дальнейших работ по совместимости тугоплавких материалов с делящимися веществами, а также вопросы герметизации металла и керамики.

A/132 Reino Unido

Дiodos termoiónicos calentados por fisión

por P. D. Dunn y J. Adam

La memoria describe el alcance y los objetivos del programa de la United Kingdom Atomic Energy Authority relativo a los convertidores termoiónicos calentados por fisión. En 1962 y 1963 funcionaron dos tipos de dispositivos en el interior de reactores, uno con carga eléctrica fija y otro con carga eléctrica variable. Los dispositivos (cuatro en total) tenían como emisores barras de UC-ZrC sin revestimiento, que producían una corriente del orden de 10 a 15 A/cm² de superficie emisora. Un examen efectuado después de la irradiación reveló que parte del material combustible se había evaporado del emisor y depositado sobre el ánodo. Al parecer, de la aleación UC-ZrC se evapora preferentemente el UC.

La memoria describe someramente el actual programa de desarrollo. Para medir con mayor exactitud la eficacia de los diodos, los dispositivos se colocarán en el interior de calorímetros. Se han construido instrumentos con emisores de metal refractario en atmósfera de cesio a presión elevada, y se ha diseñado otro que consiste en cuatro generadores en serie dentro de una sola envoltura.

La memoria describe la elaboración del combustible de UC-ZrC, los ensayos de compatibilidad llevados a cabo con diversos materiales en atmósfera de cesio y los trabajos proyectados sobre la compatibilidad de metales refractarios con combustibles fisibles y de materiales cerámicos con cierres metálicos.

Thermionic diodes for direct-conversion reactors

By E. W. Salmi,* F. G. Block,** G. M. Grover,* H. D. Miller,*** R. W. Pidd****
and V. C. Wilson*****

Since 1957 there have been programs in the United States devoted to the problem of nuclear thermionic conversion, a process by which the heat resulting from nuclear fission is transformed directly into electrical energy by means of the thermionic emission of electrons and their flow through a caesium-vapor diode. The thermionic converter is basically a high temperature device compared to conventional power devices. The minimum operating emitter temperature of the converter is about 1 500 °K, with more efficient operation possible at higher temperatures. The potential of this device has stimulated a great interest in materials development in a temperature range which has been only partially explored.

The waste heat at the collector may be rejected in the temperature range of 600 °K to about 1 500 °K. Considerable materials work has been completed in this rejection temperature range, and the technology in this temperature range is partially developed and not considered a major problem.

Another characteristic of the thermionic converter is that it is a simple, static system which is free of rotating components. The static nature of the thermionic converter leads one to hope that a high degree of reliability can be obtained. The characteristics of high rejection temperatures and simplicity suggest the possibility of developing a space power supply. The rejection of waste heat in space requires a radiator operating at a high temperature in order to retain relatively low system weight. Because of the compatibility of these characteristics of the nuclear thermionic converter with space requirements, most of the work in the United States has been directed toward this application. This paper will review only this work.

PROPERTIES OF CAESIUM PLASMA DIODES

Potential diagram of the plasma diode

The thermionic energy converter is basically a gas-filled diode in which the hot electrode emits electrons

into a plasma and the cool electrode collects electrons. Figure 1 illustrates a typical motive diagram for the converter electrons. Starting at the Fermi level of the emitter, some electrons acquire enough thermal energy to overcome the work function barrier, Φ_e , at the surface of the emitter and enter the plasma. The potential distribution through the plasma is usually characterized by an emitter sheath, plasma loss, and a collector sheath. As the electron enters the collector it loses potential energy equal to the work function, Φ_c , of the collector. The difference in potential of the two Fermi levels is the output voltage.

The caesium vapor serves several functions: (1) The vapor is the source of ions needed to remove the electron space charge limitation on the diode output. The ionization of the neutral caesium atoms (first ionization potential 3.89 V) results from the contact ionization of the neutral atoms impinging on the hot emitter surface and from volume ionization in the electrode gap by electron collisions. (2) Caesium coverage of the collector results in a low collector work function typical of caesium. A reduction of the collector work function increases the output voltage (see Fig. 1) and reduces the energy loss due to Peltier heating of the collector. (3) Caesium coverage of the emitter can change the emitter work function.

Point (3) is illustrated in Fig. 2, where the work function Φ_e of tungsten in a caesium vapor environment is plotted as a function of temperature for various caesium pressures. If a caesium diode were constructed with both emitter and collector made of tungsten and operated with a caesium vapor pressure of 8 torr, it would have the following characteristics: At a temperature of 2 100 °K the emitter would have a work function of 3.1 V and the collector at 1 200 °K would have a work function of 1.7 V. The electron emission from the emitter would be 18 A/cm².

Figure 2 demonstrates that the influence of caesium pressure on a high work-function emitter such as tungsten is very pronounced. However, for an intermediate work function emitter such as uranium carbide, the influence of caesium at high temperatures is small (see Figs. 3 and 4). Figure 5 gives power output as a function of emitter temperature for two

* Los Alamos Scientific Laboratory.
** Radio Corporation of America.
*** General Electric, Vallecitos.
**** General Atomic.
***** General Electric, Schenectady.

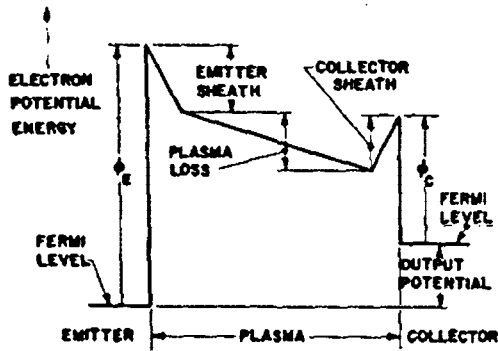


Figure 1. Thermionic converter potential diagram

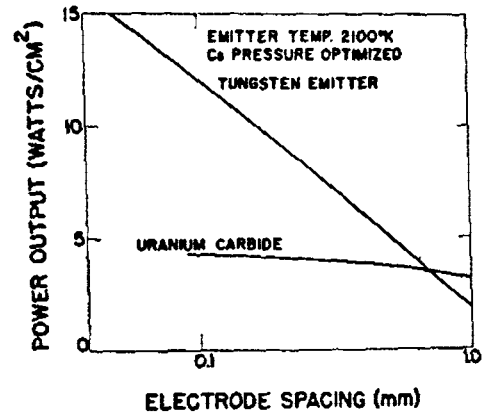


Figure 4. Power output vs. electrode spacing with 2100°K emitter temperature and optimized caesium pressure

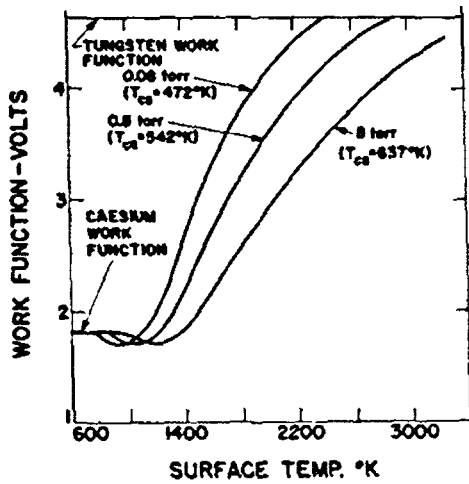


Figure 2. Tungsten effective work function vs. temperature for several caesium pressures

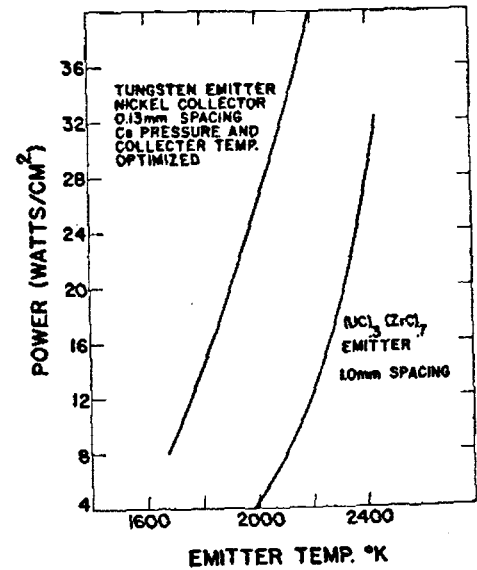


Figure 5. Power output vs. emitter temperature, 0.13 mm electrode space, collector temperature and caesium pressure optimized

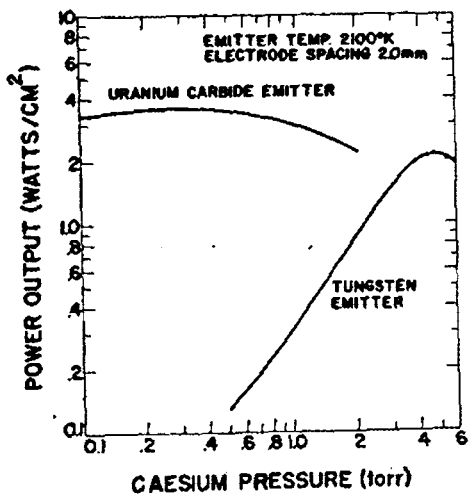


Figure 3. Power output vs. caesium pressure at 2100°K emitter temperature and 2.0 mm electrode spacing

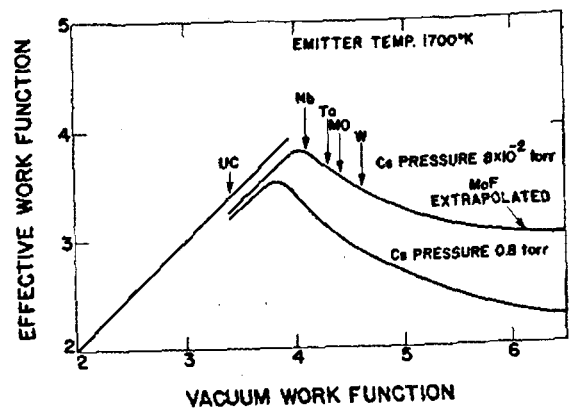


Figure 6. Effective work function vs. vacuum work function for various caesium pressures

types of diodes, one having a tungsten emitter and the other a uranium carbide emitter. The output of the converter with a uranium carbide emitter varies only slightly with large variations of spacing or caesium pressure. However, the output of this type of converter is sensitive to the emitter temperature. The upper curve of Fig. 5 gives the maximum output power for a converter with a tungsten emitter and with the caesium pressure and the nickel collector temperature optimized for each emitter temperature. Usually these high output powers occur at 50 A/cm² or more. Because of the high electron evaporation cooling of the emitter for these high current densities, the heat fluxes are excessively high and the device is not at optimum efficiency.

A disadvantage of a converter utilizing an emitter of caesium on tungsten is that the caesium pressure must be high to maintain the partial caesium coverage on the tungsten. This causes electron scattering and other losses within the plasma; as a result, for high output powers the electrodes must be closely spaced.

Surface phenomena

The effect of caesium on the thermionic work function of various materials has been extensively studied both theoretically and experimentally. In Fig. 6, the effective work function in caesium vapor versus vacuum work function of some of these materials is plotted for two caesium pressures and a fixed emitter temperature. A straight line of slope, one passing through the origin, would be obtained if there were no effect due to caesium. The observed result is that the higher the vacuum work function, the lower the effective work function with caesium. In practice, however, these curves are not quantitatively accurate because some consideration must be given to the structure of the surface. For example, saturated electron emission from cross-rolled molybdenum plate in caesium vapor has been observed to be about a factor of two greater than for bar stock. This occurs because the polycrystalline metals may have various crystal faces exposed depending on the treatment given the emitter. However, the trend shown in Fig. 6 holds in general and holds specifically for the various surfaces of a single crystal emitter. The planes of a crystal having the highest vacuum work function (largest density of atoms) yield the highest electron emission when immersed in caesium vapor.

Another important requirement for the emitter electrode may be uniformity of work function. This may be more important than having a high vacuum work function for a polycrystalline emitter. For a polycrystalline emitter, when the caesium pressure is optimized for one crystal face, the other crystal faces are off optimum. Considerable progress has been made in reproducibly making preferred grain orientation to decrease the patchiness of the electrodes. Etching tech-

niques have been found for exposing the close packed planes for many materials of interest. A metallurgical treatment utilizing the fact that different crystal planes have different surface energies has been developed to expose the (110) orientation of tantalum. Vapor deposition methods have been employed to deposit layers of tungsten or molybdenum which exhibit a high degree of crystal orientation in the growth direction with either the (100) or (111) planes exposed at the surface. Several new instruments have recently been built to make detailed observations of electrode surface patchiness so the knowledge and development of surfaces with carefully controlled uniform work functions should proceed rapidly.

A reduction of the collector work function will also increase the converter output and efficiency. Recent studies have shown that a freshly prepared nickel oxide surface when coated with caesium may have a work function as low as 1.13 V; however, at 520 °K and 10⁻² torr of caesium vapor the work function of this oxide surface increased to 1.48 V.

Another method for obtaining low work functions for the emitter or collector is the introduction of additives into the caesium vapor. Hydrogen or CsF used as additives have been shown to produce a two orders of magnitude increase in emission compared to caesium alone under the same operating conditions. The work function of Cs-CsF on Mo is 1.36 V while caesium on Mo has a work function of 1.68 V. Thus far, these studies have been conducted for caesium pressures less than 10⁻² torr. The MoF points shown in Fig. 6 are an extrapolation of the above work. Additives may also serve another function. For a long-life converter, there may be slow changes in the emitter or collector work function. Additives could produce a self-healing effect to restore the work function to its original value.

EFFICIENCY AND LIFETIME

For a realistic converter, the problems of efficiency and lifetime are intimately connected. In order for a converter to operate efficiently, it is necessary to keep radiation losses to a minimum. Long lifetimes at high efficiency require great care with regard to the cleanliness of all components in order to retain highly reflective collector surfaces. In-pile converters have a disadvantage in this respect because uranium and fission products may diffuse out of the fuel pin and deposit on the collector, decreasing its reflectivity.

Out-of-pile tests of converters with both carbide and refractory metal emitters have shown lifetimes of thousands of hours. In one case a lifetime of almost one year was achieved using a niobium emitter at 1950 °K and 0.27 mm spacing. For out-of-pile conversion, there seems to be no doubt that converters can be operated for at least a year and that the efficiencies will be increased by various improvements in both the emitter and collector surfaces.

For reactor applications using in-core conversion, the only realistic approach to converter design is through in-pile experiments. Such experiments have increased substantially during recent years. As an indication of some of the progress made in the in-pile program, the converter efficiency has increased from 5% for the first in-pile converter tested to the latest reported value of 14%. In addition, the converter lifetime with constant output has increased from tens of hours to hundreds of hours with 500 hours the longest recorded.

IN-PILE TESTS OF THERMIONIC CONVERTERS

Testing techniques and problems

In-pile experiments can be divided into two general classes, those which include operating nuclear thermionic converters of a realistic design and those which are intended for radiation studies of materials. Of course, these two categories tend to overlap.

A schematic cross section of a typical converter which includes the emitter, collector, metal-ceramic seal, and caesium reservoir is shown in Fig. 7. Also

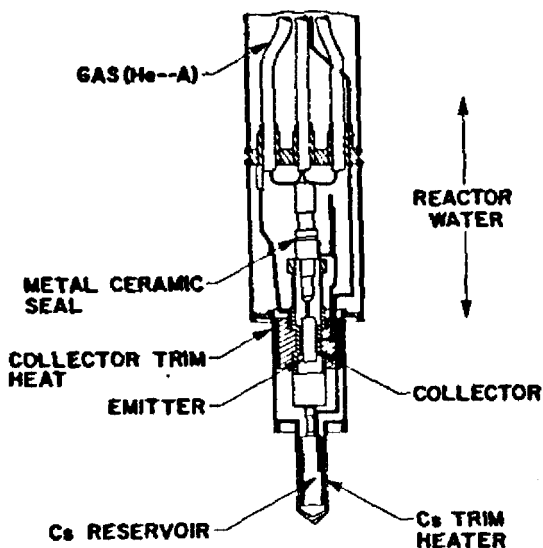


Figure 7. In-pile test assembly

shown are gas lines which allow various mixtures of inert gases to be used to vary temperature conditions of the converter. Minor adjustments of caesium reservoir and collector temperatures are made with electrical heat trimmers. The entire assembly is cooled by the reactor water. The assembly is inserted into the reactor on the end of a 7 to 10 meter flexible tube which is used to bring electrical leads and gas lines through the reactor shielding.

Some of the problems connected with reactor testing are the precise calibration of the neutron and gamma flux in the reactor and the determination of the heat generation in the converter. Because heat is generated

in the associated hardware connected to the converter, the design must provide a wide latitude in adjustment. During a life-test, the reactor flux can vary considerably with time, and adjustments must be made to provide constant converter operation. Design considerations must be given to the severe thermal shocks suffered by the converter when the test reactor "scrams". In most test reactors, since many experimental tests are being run simultaneously, there are many scrams due to the other experiments. These scrams impose additional strain on the test converter.

With out-of-pile experiments, many failures can be repaired and the experiments continued. However, repair is not possible with in-pile tests where radiation hazards must be considered.

The ability to disassemble the irradiated assemblies is another important capability in any in-pile experimental program. In fact, it is perhaps the most important tool used to diagnose cell performance. Proper disassembly and examination can reveal reasons for failure. Disassembly also serves to point out certain design advantages for future use. In the design of the experiment and, in particular, of the associated hardware, consideration must be given to design features which facilitate disassembly.

In-pile tests and materials work on carbide emitters

The goal of the in-pile test program is to develop a nuclear fuel rod with a 10 000 hour life and a power output in the range of 1 to 10 W/cm². This program is a combined effort of high temperature technology and in-pile testing. Since the out-of-pile converter will work for a year, the role of in-pile tests is to investigate the effect of the nuclear fuel and radiation on the converter components.

The early part of the in-pile test program was devoted to developing testing techniques, fabrication methods, and high temperature brazes for metal-to-ceramic insulators, and to determining caesium compatibility of various components. The emitter material was mainly confined to UC:ZrC because its power output is fairly insensitive to dimensional changes in the converter. The purity of materials was found to be important. For example, a small amount of UC₂ or free carbon in the emitter material resulted in serious caesium corrosion. Details of the manufacturing techniques affect such properties as electron emission and evaporation rates. Hot-pressed samples have been used for most investigations because of the low evaporation rate resulting from this fabrication technique. Even so, the maximum operating temperature is limited to 2 300 °K because of excessive evaporation above that temperature.

Emitters are restricted to relatively small sizes by the values of resistivity and thermal conductivity of UC:ZrC. Long-term in-pile tests give efficiencies of about 7%. In-pile irradiation tests in which the emit-

ters ran at operating temperature for 1 000 hours have resulted in a pronounced swelling and cracking of the emitter material. Photomicrographic inspection of the irradiated emitters revealed that the swelling was caused by the build-up of high-pressure fission-gas bubbles in the grain boundaries of the emitter material. An obvious solution to this problem would appear to be the use of porous emitter materials.

Materials work and testing of clad fuel materials

There have been numerous metallurgical investigations of fuel materials, claddings, and their mutual interactions. Various manufacturing techniques, such as cold-pressing, hot-pressing, and isostatic hot-pressing of pure powders and coated particles are being investigated for fuel materials of UC:ZrC, UO₂ and cermets of Mo-UO₂ and W-UO₂. The cladding materials include tungsten, rhenium, tantalum, niobium, and molybdenum.

For fuel materials using both molybdenum and tungsten cladding, new fabrication procedures for applying the cladding are under development. While electric spark and ultrasonic forming of cast or sintered tungsten can be used for some elementary forms, the product is often very brittle and subject to grain growth and cracking upon cycling to operating temperatures. The method of thermochemical deposition of tungsten has been successfully applied to a wide range of fabrication problems. Research is in progress on the control of grain growth and grain orientation in the vapor deposited tungsten specimens. The effect of long-time irradiation on maintaining preferred crystal orientation has had little investigation.

Fission-product build-up

The fuel material problem so detrimental to carbides was fission-product gas build-up with the consequent swelling of the material. The power density, lifetime, and percentage burn-up capabilities desired for proposed thermionic fuel materials have been demonstrated with UO₂ in commercial power reactors. However, in thermionic applications the high temperature operation required has several adverse effects. At these high temperatures, about twice as many fission products are above their critical point; consequently there are twice as many gaseous fission products. The high operating temperature of the fuel element in the thermionic application produces a higher pressure in the gas bubbles. These two factors result in almost an order of magnitude increase in the pressure developed by fission products. The problem resulting from the higher fission-product pressures is made more severe by the fact that material strengths are much reduced at high temperatures.

The high-pressure fission-gas build-up in the fuel material introduces questions of fission-product

diffusion and methods of venting the fission product without great loss of uranium. In some cases, the fission products are released into the caesium gap. Several investigations have shown that appreciable amounts of Xe and Kr, typical fission products, have little effect on the power output of a caesium diode. Since space applications are involved, non-condensing fission gases such as Xe and Kr can be vented into space. The reactor can be designed so that caesium loss is trivial. There is, however, the problem of those products which are condensable at the collector temperatures. Over a long period of operation these products could have a great influence on both the thermal emissivity and work function of the collector. Very little work has been performed on this problem to date.

Review of other components of the converter

Insulation-seal requirements for nuclear thermionic converters are considerably more demanding than those that apply generally in vacuum-tube technology. The operating temperature of the insulator for most converter designs is from 500 to 1 000 °C. A vacuum-grade seal and a high degree of dimensional control must be maintained in this temperature range, and electric breakdown strengths up to 1 000 V/cm must be maintained in an irradiation field for periods over 10 000 hours. The most widely used and studied insulation material is alumina. The material frequently selected for the seal attachment to alumina is niobium, because of the near equality of thermal expansion coefficients of the insulator and metal over the operating temperature range. A copper braze between alumina and niobium is suitable for operation in the lower temperature range (approximately 900 °K) for periods in excess of 1 000 hours. Vanadium brazing and direct diffusion bonding are candidates for joining processes for higher temperature applications. Vanadium brazes have also been tested in vacuum for 1 000 hours at 1 400 °K. Several ceramic-to-metal seals have been irradiated in a thermal neutron and gamma flux for a time equivalent to a 10 000 hour lifetime in a thermionic reactor and have been proven satisfactory. These irradiation tests were all performed at low temperature (approximately 300 °K). Proof of insulator-seal stability at expected operating temperatures in the nuclear radiation field remains to be shown.

SYSTEM CONCEPTS

Although numerous studies of the application of the thermionic converter to space missions have been completed in the past five years, the present conceptual thermionic space reactor designs have not changed much from the original proposals. This is true, in part, because the initial concepts assumed the rapid advance in converter technology which has taken place during the last few years.

The application of thermionic conversion to ion propulsion is illustrated in Fig. 8. The reactor itself is situated in the nose of the vehicle. The rest of the vehicle, including the heat exchanger, pumps, radiator, and ion engine, is protected from the reactor by a shadow shield. The number and location of the heat exchangers and pumps can vary considerably according to the type of conversion system to be used. The amount of shielding depends on the sensitivity of the payload to radiation. The actual thermionic converter may be located in either the reactor, the heat exchanger, or the radiator.

Studies have been made of systems with the thermionic converters inside the reactor, in the heat exchanger, and in the radiator. These studies indicate that if the material problems can be overcome, greater efficiency and much lighter weight systems can be obtained by placing the thermionic converter inside the reactor.

Figure 9 gives the general idea of the construction of a reactor fuel element adapted to in-core conversion. In this concept, the individual cells are stacked in series so that the voltages add and the same current passes through each cell. The individual cells are similar to those described earlier for in-pile testing. The fuel pin (emitter) may be composed of any one of the several combinations described earlier. The collectors of successive cells are separated by an insulator, and the cells are connected in series by attaching the emitter support of one cell to the collector of the next. Since the coolant for removing the waste heat from the collector will be a liquid metal, the stack of cells must be electrically isolated from the circulating coolant by a thin electrically insulating layer, which is in turn protected by metal cladding. If a moderator is used, it also is cooled by the liquid metal. The caesium atmosphere is made common to each cell by the holes shown in the ends of the collector. A caesium reservoir connected to the bottom cell controls the pressure throughout the entire rod. The feasibility of this arrangement has been demonstrated by in-pile tests of several triple-cell assemblies with a common caesium reservoir.

One can take a large number of fuel rods constructed in the manner depicted in Fig. 9 and stack them together in a hexagonal array to form a reactor. The electrical connections can be made such that the various fuel rods are in series or parallel depending on the characteristics of the individual fuel rods and on the nature of the engine or equipment to be powered by the reactor. The electrical leads required to make these connections can also serve as ducts to transport caesium vapor from one rod to the next thereby eliminating the necessity of having a separate caesium reservoir for each fuel rod. This arrangement also permits fission product gases escaping into the electrode space to be flushed out of the reactor by a small flow of caesium vapor.

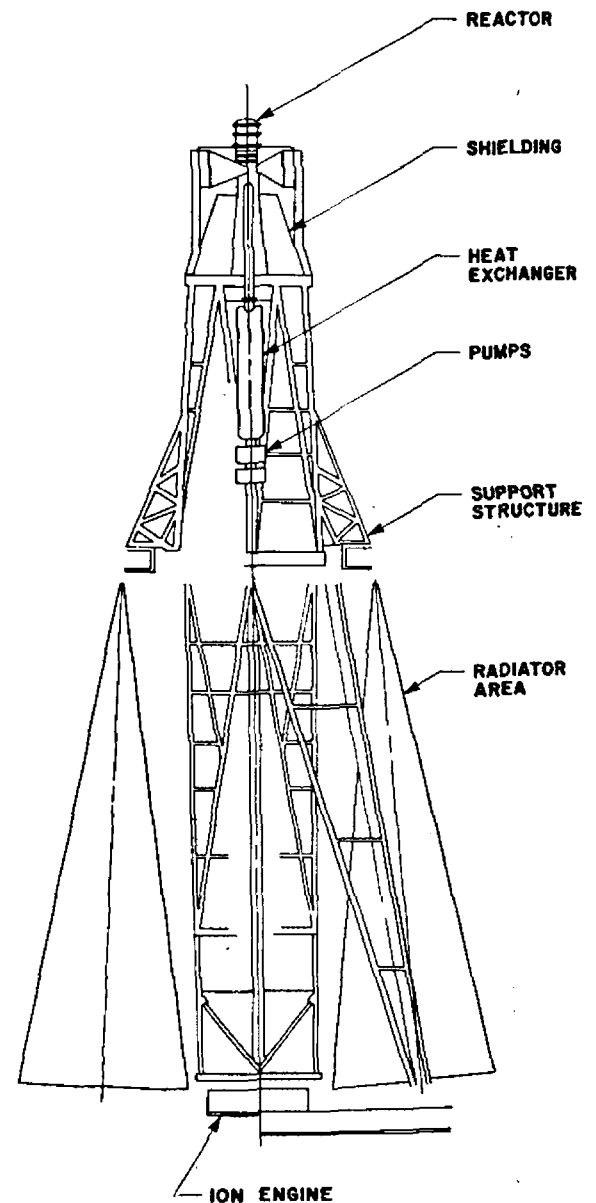


Figure 8. Thermionic space reactor concept

This thermionic reactor described above is probably the most complex reactor ever proposed; however, the

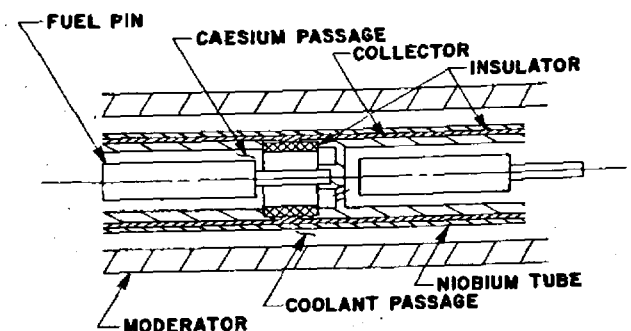


Figure 9. Thermionic fuel-rod concept

materials technology is developing rapidly. In a period of less than 7 years, thermionics started from a simple idea and has now demonstrated a year's lifetime of out-of-pile converters and about a month's lifetime

of in-pile converters. With the increased emphasis on in-pile work, the lifetime of in-pile tests of practical converters can be expected to be increased substantially.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/219 Etats-Unis d'Amérique

Diodes thermo-ioniques pour réacteurs à conversion directe

par E. W. Salmi *et al.*

La conception du réacteur thermo-ionique est fondée sur la transformation directe de la chaleur de fission nucléaire en énergie électrique par émission thermo-ionique de courant électrique. Ce système se caractérise par des densités d'énergie et des températures de fonctionnement très élevées. Il faut disposer de sources de chaleur entre 1 200 et 1 800 °C. La chaleur est rejetée entre 400 et 1 000 °C. Les applications comprennent des générateurs compacts pour utilisation spatiale et des unités de complément pour des centrales classiques. Dans les deux cas, les températures élevées des sources chaude et froide caractérisent les avantages possibles d'un tel système.

Deux conceptions différentes sont à l'étude. Dans le système hors pile, la chaleur est extraite du réacteur et alimente une batterie de convertisseurs thermo-ioniques. Dans le système en pile, l'élément combustible du réacteur constitue essentiellement l'électrode à haute température du convertisseur thermo-ionique. On a étudié ce dernier système en détail, en particulier en ce qui concerne l'élément combustible et la transmission de chaleur par des moyens classiques ou nouveaux. Pour le réacteur à usage spatial, il faut étudier le radiateur, le système de transformation de l'énergie et la protection, qui ont une grande importance pour le poids de l'ensemble.

On a cherché à comprendre les mécanismes fondamentaux du convertisseur thermo-ionique. On a étudié en détail le contrôle par absorption de césium des propriétés des surfaces de l'émetteur et du collecteur. Les effets de décharge qui se produisent dans la plupart des domaines de fonctionnement efficace rendent difficile la compréhension de la dynamique du plasma. Les propriétés à haute température des matériaux utilisés limitent les performances du convertisseur et de l'ensemble. On a étudié un grand nombre de combustibles nucléaires et de matériaux de gainage à des températures thermo-ioniques comprises entre 1 200 et 2 000 °C. On a également étudié des isolants et des matériaux d'étanchéité et d'enveloppe pouvant fonctionner jusqu'à 1 000 °C.

On récapitule les résultats des essais de convertisseurs destinés à des générateurs hors pile et en pile, en vue de déterminer l'état d'avancement de la technique des réacteurs thermo-ioniques. On passe en revue les méthodes d'essais thermo-ioniques en pile. Les durées d'essais de cellules hors pile dépassent plusieurs milliers d'heures. On a réalisé des essais en pile à hautes performances avec des durées de plusieurs centaines d'heures, le but actuel du programme étant de réaliser des essais continus pendant 1 000 heures.

A/219 США

Ядерные реакторы с термоэмиссионным преобразованием

Р. В. Пидд *et al.*

Принцип реактора с термоэмиссионным преобразованием заключается в том, что тепло, генерируемое при делении ядер, непосредственно превращается в электрическую энергию путем термоионной эмиссии электрического тока. Такая система характеризуется высоким уровнем мощности и высокой рабочей температурой порядка 1200—1800° С. Отдача тепла осуществляется при температуре 400—1000° С. Реакторы такого типа могут использоваться в качестве компактных энергетических установок космического назначения, а также в качестве головных блоков для обычных энергетических систем. В обоих случаях высокая температура как самого источника тепла, так и излучателя подчеркивает потенциальные преимущества этой системы.

В настоящее время изучаются два возможных подхода к применению этого принципа. В одном случае теплопередача происходит вне реактора, то есть тепло отводится от реактора и подается группе термоэмиссионных преобразователей. Во втором случае тепло преобразуется в самом реакторе, где тепловыделяющий элемент используется в качестве высокотемпературного катода термоэмиссионного преобразователя. Эта вторая система изучена довольно детально, в частности конструкция тепловыделяющего элемента, а также процесс передачи тепла как обычными, так и новыми способами. При использовании такого реактора в космосе

важными факторами, влияющими на общий вес системы, являются излучатель, защита и система конденсации.

Выполнен большой объем исследований для изучения принципа работы термоэмиссионного преобразователя. Изучались вопросы абсорбции цезия как регулятора поверхностных характеристик катода и анода. Однако правильное понимание динамики плазмы, присущей этому процессу, затрудняется наличием разрядных явлений, которые происходят в процессе работы системы. Кроме того, возможности как преобразователя, так и всей системы ограничиваются некоторыми свойствами материалов в условиях высокой температуры. Была проведена оценка и проверка различных композиций ядерного топлива и материалов оболочек с точки зрения использования их для работы в интервале температур от 1200 до 2000°С, характерном для термоэмиссионного преобразования. Исследовались также материалы изоляции, уплотнений и защитных покрытий, стойкие при температуре до 1000°С.

В докладе суммируются результаты испытаний преобразователей как для случая теплообмена в самом реакторе, так и для случая, когда этот процесс происходит вне реактора. Дается также описание методики внутриреакторных испытаний термоэмиссионной системы. Длительность внереакторных испытаний составляет несколько тысяч часов. Длительность внутриреакторных испытаний с высокими характеристиками составляет несколько сот часов. Целью этой программы является испытание термоэмиссионной системы внутри реактора в течение 1000 ч.

A/219 Estados Unidos de América

Diodos termoiónicos para reactores con conversión directa

por E. W. Salmi et al.

En un reactor termoiónico, el calor desarrollado por la fisión nuclear se transforma directamente en energía eléctrica por emisión termoiónica de corriente eléctrica. El sistema se caracteriza por potencias específicas y temperaturas de régimen sumamente elevadas. Las temperaturas necesarias en la fuente varían entre 1200 y 1800°С y la cesión de calor tiene lugar a temperaturas comprendidas entre 400 y

1000°С. Entre las aplicaciones posibles figuran los generadores compactos para vehículos espaciales y los generadores de refuerzo para instalaciones de producción de energía de tipo tradicional; en ambos casos, las elevadas temperaturas de fuente y de cesión de calor indican las posibles ventajas del sistema.

Actualmente se estudian dos sistemas diferentes: en el de conversión externa, el calor extraído de un reactor se transmite a una batería de convertidores termoiónicos; en el sistema de conversión interna el elemento combustible del reactor constituye en esencia el electrodo a alta temperatura del convertidor termoiónico. El sistema de conversión interna ha sido objeto de estudios bastante detallados, particularmente en lo que respecta a la construcción de los elementos combustibles y a la transmisión de calor por los medios conocidos y algunos nuevos. En el caso de los reactores espaciales, el radiador, el equipo de transformación de la corriente y el blindaje requieren especial atención desde el punto de vista del peso.

Gran parte de los estudios han tendido a profundizar en el conocimiento del convertidor termoiónico. Se ha estudiado extensamente la forma de controlar las propiedades de las superficies del emisor y del colector mediante la absorción de cesio. Debido a los efectos de descarga que tienen lugar en la mayor parte del intervalo de funcionamiento eficiente, es difícil adquirir una noción clara de la dinámica del plasma y las propiedades de los materiales a temperaturas elevadas imponen limitaciones en la construcción del convertidor y en el rendimiento del sistema. Se ha efectuado la selección y evaluación de una amplia serie de combustibles nucleares y de revestimiento para temperaturas termoiónicas comprendidas entre 1200 y 2000°С. También se han estudiado los materiales de aislamiento, de cierre y de protección que pueden trabajar hasta 1000°С.

Los autores resumen los resultados del ensayo de los convertidores para los dos sistemas de conversión interna y externa, a fin de dar una idea del estado actual de los conocimientos en termoiónica nuclear. Se han revisado los procedimientos de ensayo dentro del reactor. Los ensayos del sistema externo de conversión duran miles de horas, mientras que los de conversión interna, de elevado rendimiento, se sometieron a pruebas durante períodos de varios cientos de horas y actualmente se procura llegar en ensayo continuo hasta las mil horas.

Теоретические и экспериментальные исследования, связанные с разработкой термоэлектронных реакторов-преобразователей

И. И. Бондаренко, И. Н. Горелов, Ю. К. Гуськов, В. М. Дмитриев, И. И. Касиков, В. П. Кармазин, С. Я. Лебедев, М. А. Лебедев, В. А. Малых, С. А. Маев, В. Я. Пупко, В. Г. Петровский, В. П. Пащенко, Е. Е. Сибир, Ю. Я. Стависский, И. П. Стаханов, А. С. Степанов, Ю. С. Юрьев*

Непосредственное преобразование тепловой энергии в электрическую имеет ряд существенных преимуществ по сравнению с машинным преобразованием. К их числу относятся устранение движущихся частей, возможность повышения к. п. д. установки (в частности, при сочетании безмашинного преобразователя с машинным), увеличение удельной мощности энергетической установки в ряде применений. Наибольший практический интерес представляют три способа преобразования: термоэлектрический, термоэлектронный и магнитогидродинамический (МГД).

Первый способ, связанный с применением полупроводниковых термоэлементов, выгоден в области сравнительно небольших мощностей (10—100 *квт*). Напротив, применение МГД-генераторов оказывается целесообразным для установки большой мощности (10⁵—10⁶ *квт*). В области средних мощностей значительные преимущества имеет термоэлектронный способ преобразования, при котором рабочим телом является электронный газ. Термоэлектронный принцип преобразования тепла в электроэнергию хорошо сочетается с ядерным реактором, служащим в качестве источника тепла.

Настоящий доклад посвящен изложению результатов теоретических и экспериментальных исследований ряда проблем, связанных с созданием термоэлектронных реакторов-генераторов.

Исследованию термоэлектронного преобразования посвящено много работ¹⁻⁶. В первых работах предлагалось использовать контактную разность потенциалов электродов в вакууме. Для уменьшения влияния объемного заряда, ограничивающего ток в вакуумном преобразователе, необходимо сократить расстояние между

электродами до размеров порядка 10 *мк*. В дальнейшем было предложено вводить в межэлектродное пространство пары цезия, ионизация которого позволяет увеличить межэлектродное расстояние до практически приемлемых размеров (~ 1 *мм*). Межэлектродное пространство при этом заполняется холодной плазмой.

1. ПРЕОБРАЗОВАТЕЛЬ С НИЗКИМ ДАВЛЕНИЕМ ПАРОВ ЦЕЗИЯ

Как известно, введение даже очень небольшого количества паров цезия (10⁻³—10⁻⁴ *мм рт. ст.*) позволяет полностью нейтрализовать объемный заряд электронов в межэлектродном пространстве (квазивакуумный режим). Ток в этом режиме ограничивается эмиссионными способностями катода, и поэтому сильные токи можно получить либо при достаточно высоких температурах ($T \geq 2500^\circ \text{K}$), либо при условии использования катодов с низкой работой выхода, способных работать длительное время в условиях реактора. В частности, можно использовать снижение работы выхода в результате адсорбции атомов цезия на поверхности тугоплавких металлов (металлопленочный катод).

Были проведены исследования термоэмиссионных характеристик ряда тугоплавких материалов (Zr, Hf, Nb, Ta, Ti, Mo, C, W, Ni, Re) в парах цезия.

В табл. 1 приведены рассчитанные по полному току работы выхода W и теплоты испарения цезия Q_0 при оптимальном покрытии поверхности (W — работа выхода эмиттера без цезиевого покрытия). Из таблицы видно, что для большинства металлов работа выхода и теплота испарения цезия при оптимальном покрытии линейно возрастают с увеличением работы выхода материала катода. Заметим, что

* Физико-энергетический институт, Обнинск, СССР

для достижения оптимальных работ выхода требуются значительные давления паров цезия.

Таблица 1

Элемент	$W, \text{эВ}$	$W_0, \text{эВ}$	$Q_0, \text{эВ}$
Hf	3,53	1,73—1,9	3,60
Zr	3,84	1,7—2,0	2,45
Nb	3,98	1,40—1,49	1,3
Ti	4,09	1,39—1,46	1,39
Ta	4,13	1,42—1,48	1,41
Mo	4,24	1,44—1,51	1,52
W	4,52	1,69—1,71	1,89
Ni	4,61	1,86—1,95	1,80
C	4,62	1,69—1,71	1,66
Re	5,04	1,87—1,9	2,03

Теоретическому исследованию квазивакуумного режима посвящено много работ^{7,8}. Рассеянием электронов на атомах нейтрального цезия в этих условиях можно пренебречь, поскольку соответствующая длина свободного пробега значительно больше расстояния между электродами. Однако кулоновское рассеяние может играть роль даже при очень низком давлении, если степень ионизации значительна.

2. ПРЕОБРАЗОВАТЕЛЬ С ВЫСОКИМ ДАВЛЕНИЕМ ПАРОВ ЦЕЗИЯ

2.1. При повышении давления паров цезия работа выхода металлопленочных катодов уменьшается. Вследствие этого мощность, снимаемая с преобразователя, растет с увеличением давления. Однако одновременно увеличивается роль рассеяния электронов на атомах, которое в конечном счете ограничивает возрастание тока и мощности. При высоких давлениях появляется также объемная ионизация атомов цезия.

При давлении $P \approx 1 \text{ мм рт. ст.}$ или выше длина свободного пробега для рассеяния электронов на атомах (l_e) оказывается во много раз меньше расстояния между электродами (L). В этом случае режим будем называть диффузионным. Для катодов, покрытых цезием, максимум мощности приходится именно на диффузионный режим. Роль объемной ионизации и условия, при которых она возникает, будут рассмотрены в следующем параграфе. В настоящем разделе примем, что преобладает ионизация на поверхности катода.

Вольт-амперная характеристика в диффузионном режиме с ионизацией на катоде имеет ток насыщения (I_s), который, однако, как правило, значительно меньше электронного тока эмиссии: при $L = 1 \text{ мм}$ и $T = 1500^\circ \text{ К}$ $I_s \approx 1 \text{ а/см}^2$. Величина I_s (в отличие от квазивакуумного режима) существенно зависит от межэлектродного расстояния. Далее, I_s , как и напряжение, снимаемое с преобразователя, в широком интервале температур и давлений не зависит от материала катода и определяется¹²

только его температурой (T') и давлением цезия (P).

Температура электронов (T_e) может существенно отличаться от температуры атомов (T) вследствие того, что энергетический обмен между электронами и атомами затруднен. В частности, при слабых токах ($I \ll I_s$) электрическое поле в межэлектродном пространстве тормозит электроны, что приводит к охлаждению электронного газа. Наоборот, при сильных токах ($I \sim I_s$) возникает ускоряющее поле, которое разогревает электроны. Температуры тяжелых частиц (ионов и атомов) практически всегда совпадают. Степень ионизации в рассматриваемых условиях невелика (0,1% или меньше). Однако в области давлений меньше 1 мм рт. ст. высоких температур катода ($T' \approx 2000^\circ \text{ К}$) степень ионизации заметно увеличивается и кулоновское рассеяние становится преобладающим¹⁰.

2.2. Диффузионные потоки электронов (I) и ионов (j), а также поток энергии электронов (Q) имеют следующий вид:

$$I = -D_e \frac{dn}{dx} + U_e n \frac{d\varphi}{dx} - D_{T_e} \frac{dT_e}{dx},$$

$$j = -D_i \frac{dn}{dx} - U_i \frac{d\varphi}{dx} - D_{T_i} \frac{dT_i}{dx},$$

$$Q = -\lambda_e \frac{dT_e}{dx} + I(\kappa T_e - e\varphi), \quad (1)$$

где $D_{e,i}$, $U_{e,i} = \frac{eD_{e,i}}{T_{e,i}}$, D_{T_e,T_i} — коэффициенты диффузии, подвижности и термодиффузии электронов и ионов соответственно; λ_e — коэффициент теплопроводности; κ — «теплота переноса» для электронов; φ — потенциал; n — плотность плазмы. Кинетические коэффициенты, входящие в (1), для трехкомпонентной плазмы (электроны, ионы, нейтралы) в производном магнитном поле были вычислены методом Энского — Чепмена¹¹. В этой работе учитываются как соударения с нейтральными атомами, так и кулоновское рассеяние. Последнее учитывалось введением в кинетическое уравнение столкновительного члена в форме Ландау. В отсутствие объемной ионизации

$$\frac{dI}{dx} = 0, \quad \frac{dj}{dx} = 0 \quad \text{и} \quad \frac{dQ}{dx} = 0. \quad (2)$$

Величина тока насыщения I_s с хорошей степенью точности дается следующим выражением¹²:

$$I_s = \left(1 + \frac{T_i}{T_e}\right) \frac{n'}{L} D_e = \left(1 + \frac{T_i}{T_e}\right) \frac{1}{3} n' \bar{v}_e \frac{l_e}{L}, \quad (3)$$

где \bar{v}_e — средняя тепловая скорость электронов; n' — плотность плазмы у катода; $l_e L$ — длина свободного пробега электронов и расстояние между электродами. Изложение итерационного метода, примененного для точного численного решения систем (1) и (2) содержится в¹⁴. Для плоской геометрии в отсутствие кулоновских столкновений можно показать, что потенциал

логарифмически зависит от расстояния, а плотность убывает по направлению к аноду по линейному закону. Результаты численных расчетов вольт-амперных характеристик хорошо согласуются с экспериментом^{13,14}, если в качестве сечения рассеяния электронов принять величину $(1 \div 2) \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$.

2.3. Граничные условия для системы (2) можно получить из законов сохранения числа частиц и энергии в приэлектродном слое^{14,12}. Основным параметром, характеризующим граничные условия на катоде, является параметр компенсации ω :

$$\omega = \frac{j_0}{I_0} \sqrt{\frac{M}{m}}, \quad (4)$$

где I_0, j_0 — токи эмиссии электронов и ионов с катода; m, M — массы электрона и иона.

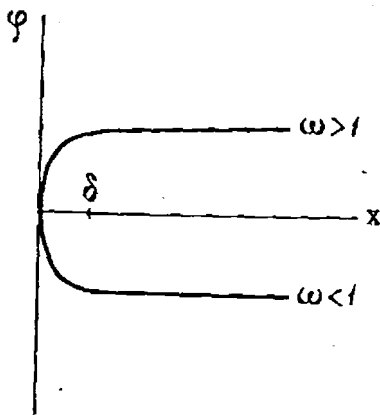


Рис. 1. Схематический вид распределения потенциала у катода (δ — дебаевский радиус)

При $\omega > 1$ режим будем называть перекомпенсированным. В этом случае химический потенциал плазмы ниже работы выхода катода. Образуется скачок потенциала, отражающий избыточную эмиссию ионов $\Delta\phi' > 0$ (рис. 1). При $\omega < 1$ плазма находится под отрицательным потенциалом по отношению к катоду $\Delta\phi' < 0$.

Если ω не очень сильно отличается от единицы $(\frac{l}{L})^2 \ll \omega \ll (\frac{L}{l})^2$, то на границе имеет место локальное термодинамическое равновесие и, таким образом, плотность n' можно вычислить по формуле Саха. При $\omega < 1$ плотность у катода дается формулой¹⁵

$$n' = n_0 \sqrt{1 - j/j_0}, \quad (5)$$

где n_0 — равновесная плотность, определяемая по формуле Саха. Из (5) видно, что в режиме тока насыщения, то есть когда $j = 0$, $n' = n_0$. Таким образом, в недокомпенсированном режиме величина тока насыщения (3) также опре-

деляется равновесной плотностью. Если не учитывать разогрев электронов на приэлектродном барьере, то в перекомпенсированном режиме ($\omega > 1$) получим¹⁵

$$n' = n_0 \sqrt{1 - \frac{I}{I_0}}, \quad (6)$$

откуда видно, что $n' < n_0$ и таким образом в перекомпенсированном режиме I_s меньше, чем в равновесном (при той же температуре и давлении). Пользуясь формулами (3) и (6), легко показать, что при $\omega \gg (\frac{L}{l})^2 I_s \rightarrow I_0$.

Типичные результаты численного расчета вольт-амперных характеристик при различных значениях работы выхода приведены на рис. 2. Легко видеть, что в недокомпенсированном режиме ($W' < 2,8 \text{ эв}$) изменение работы выхода (W) практически не влияет на вольт-амперную характеристику. С другой стороны, даже сравнительно небольшая перекомпенсация ($W' > 2,8 \text{ эв}$) приводит к значительному уменьшению тока. Это видно также из рис. 3, где приведена зависимость теоретически рассчитанного тока насыщения и мощности (P) от работы выхода катода. При дальнейшем уменьшении работы выхода I_s и P будут уменьшаться (например, вследствие рекомбинации ионов). Эксперимент подтверждает эти выводы. Так, типичная форма кривой зависимости тока короткого замыкания, который практически совпадает с I_s , приведена на рис. 4, 5. Из этих кривых видно, что ток насыщения при низких температурах (ab), соответствующих недокомпенсированным режимам, экспоненциально зависит от температуры с показателем, равным половине энергии ионизации, как это и должно быть, если плотность у катода равновесная. При дальнейшем повышении температуры режим становится перекомпенсированным и скорость роста тока с температурой замедляется (bc). Это происходит при тем больших температурах, чем выше давление и чем больше энергия адсорбции цезия на катоде. Пользуясь приведенными данными и формулами (6), (3), можно вычислить ток эмиссии катода и определить его работу выхода W . Результаты этих расчетов приведены на рис. 6. Они хорошо согласуются с данными, полученными в¹⁷.

2.4. Особый интерес представляет рассмотрение области давлений, переходной между диффузионным и квазивакуумным режимами. Некоторые выводы о поведении плазмы в этих условиях можно получить, решая кинетическое уравнение с помощью разложения функции распределения в ряд по полным ортонормированным системам функций. В частности, был использован метод разложения по симметризованным полиномам Эрмита. Таким образом была получена зависимость тока насыщения I_s от отношения длины свободного пробега к раз-

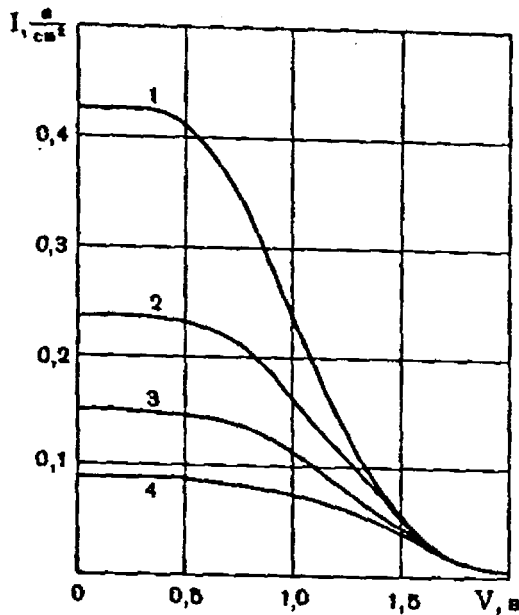


Рис. 2. Численный расчет вольт-амперных характеристик:
 1 — $W' = 2,15 \div 2,8$ эв; 2 — $W' = 3,1$ эв;
 3 — $W' = 3,2$ эв; 4 — $W' = 3,3$ эв; $T' = 1800^\circ\text{K}$,
 $T'' = 700^\circ\text{K}$, $P = 1$ мм рт. ст., $L = 1$ мм

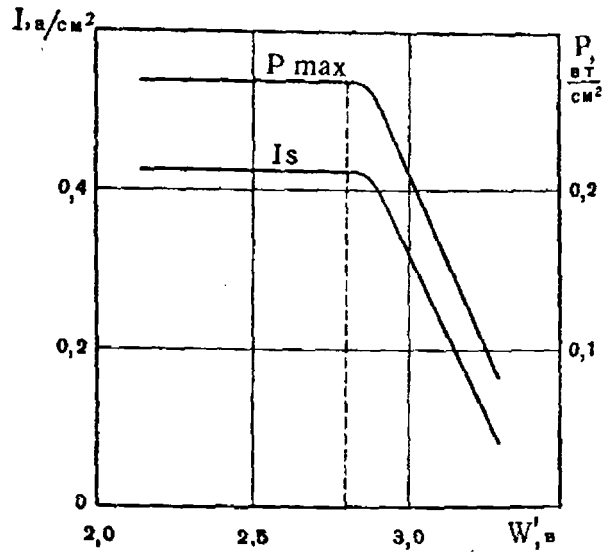


Рис. 3. Зависимость I и P_{max} от работы выхода катода. Химический потенциал плазмы 2,8 эв, $T = 1800^\circ\text{K}$, $T'' = 700^\circ\text{K}$,
 $L = 1$ мм, $P = 1,86$ мм рт. ст.

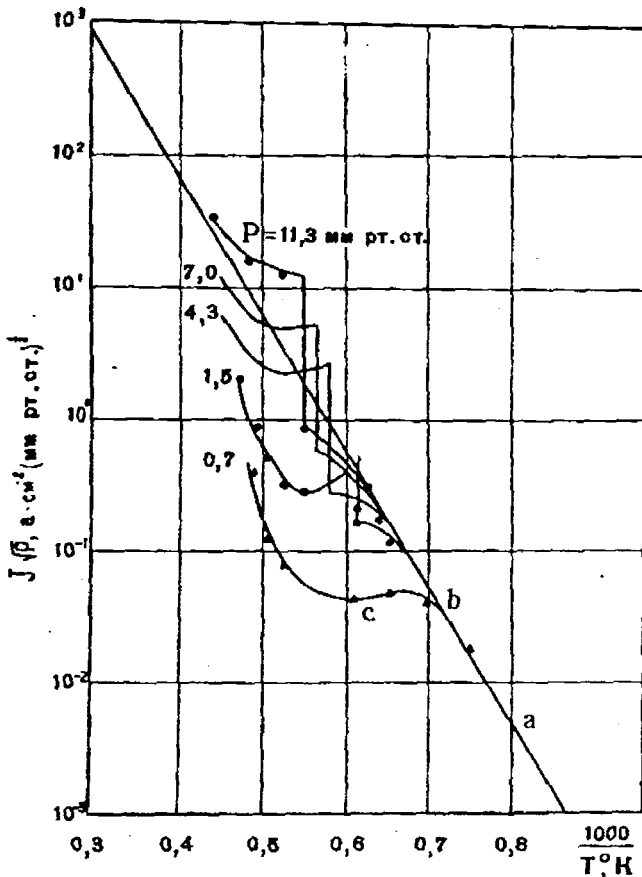


Рис. 4. I_s — ток короткого замыкания, $L = 0,7$ мм, катод ниобиевый

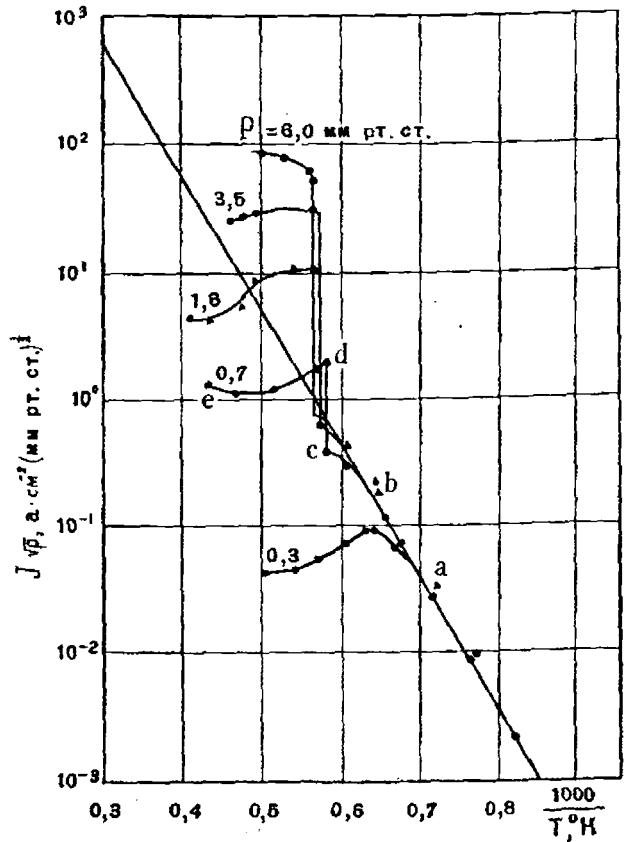


Рис. 5. I_s — ток короткого замыкания, $L = 0,7$ мм, катод ренийевый

мерам системы ($K = \frac{l_e}{L}$). Для недокомпенсированного режима получаем ¹⁹

$$I_s = \frac{1,73}{\sqrt{1,5\alpha^2 K^2 + 2,6\alpha K + 1}} \sqrt{\omega} I_0, \quad (7)$$

где α — множитель порядка $1 \left(\frac{10}{9} < \alpha < \frac{21}{16} \right)$, зависящий только от температуры электродов и плазмы. Из (7) видно, что при низких давлениях ($K \rightarrow \infty$) I_s не зависит от K (то есть от давления и размеров системы). Можно пока-

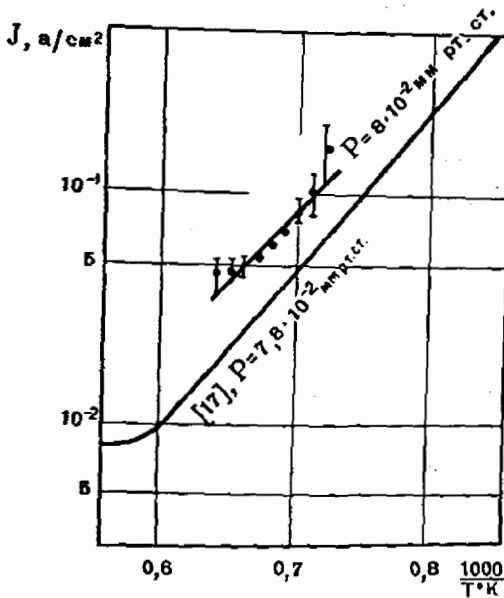


Рис. 6. Сравнение токов эмиссии для молибдена в парах цезия, полученных различными методами

зать, что I_s в этом случае совпадает с той частью тока насыщения, которая проходит через прикатодный барьер ($\Delta\phi' < 0$):

$$I_s = I_0 l \frac{l \Delta\phi'}{T} \quad (8)$$

Наоборот, при высоких давлениях имеем

$$I_s = 1,73\alpha \cdot K \sqrt{\omega} I_0. \quad (9)$$

Поскольку $\sqrt{\omega} I_0 = \frac{1}{4} n_0 \bar{v}$, совпадает ⁹ с формулой, приведенной выше для диффузионного режима ³.

Далее, ряд уточнений можно получить и для граничных условий, в частности для связи потока частиц на стенку (I) и плотности плазмы у стенки (n). Так, на границе с холодной стенкой в отсутствие тормозящего скачка потенциала имеем ²⁰

$$I = \frac{1}{2} n \bar{v} \left(1 + \frac{P_{xx}}{P} \right), \quad (10)$$

где P — гидростатическое давление плазмы, P_{xx} — тензор вязких напряжений (ось x на-

правлена ортогонально стенке), $v = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}}$ — средняя тепловая скорость. Пренебрегая малой величиной $\left(\frac{P_{xx}}{P} \right)$, получаем $I \approx \frac{1}{2} n \bar{v}$ вместо обычно используемого соотношения $I = \frac{1}{4} n \bar{v}$. В случае эмиттирующей стенки и при наличии скачков потенциала соответствующие выражения оказываются значительно сложнее.

3. ВЛИЯНИЕ ОБЪЕМНОЙ ИОНИЗАЦИИ

3.1. При температуре катода выше 1400°K и при достаточно высоком давлении преобладающую роль может играть объемная ионизация. При этом преобразователь можно рассматривать как низковольтную дугу с подогреваемым катодом, работающую в режиме преобразования. Объемная ионизация (в отличие от поверхностной) сопровождается сильным возбуждением атомов, что приводит к заметному

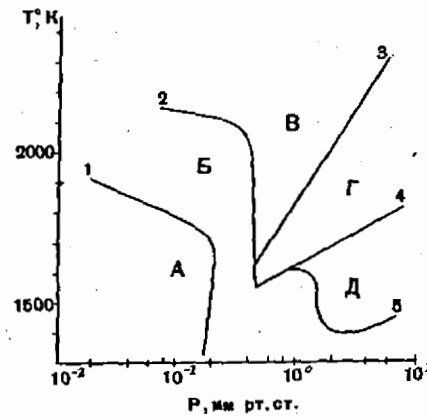


Рис. 7. Экспериментальные границы режимов работы преобразователя с молибденовым катодом, $L = 0,5$ мм; А — квазивакуумный режим, граница $1 L = l$; Б — диффузионный режим; В, Г и Д — дуговой режим

свечению разряда. Вольт-амперная характеристика имеет совершенно иной характер, чем в диффузионном режиме с ионизацией на катоде. Характерно быстрое изменение тока с напряжением, малая величина снимаемого напряжения и отсутствие в области преобразования тока насыщения.

На основе имеющихся экспериментальных результатов в настоящее время можно провести классификацию режимов работы преобразователя и их характерных признаков (рис. 7).

Граница области заметной объемной ионизации определяется кривыми 2—5. При этом характер процессов зависит от температуры катода и давления паров цезия. В области В объемные процессы приводят к постепенному исчезновению плато на вольт-амперной характеристике с ростом температуры катода (рис. 8.1

и 8,2). Причем ток короткого замыкания не превышает диффузионно-равновесного, а температура зажигания дуги уменьшается с ростом давления.

В области Γ разряд начинается резким скачком тока, причем на вольт-амперной характеристике появляются участки с отрицательным сопротивлением (рис. 8,3—8,8). Температура зажигания дуги в этом случае возрастает с ростом давления. При работе в участке с отрицательным сопротивлением появляются шаровид-

При изменении температуры катода от 1800 до 2200° K выходное напряжение возрастает приблизительно вдвое.

Вследствие слабой зависимости тока от температуры режим низковольтной дуги при достаточно высоких температурах (область B) не дает выигрыша в токе и мощности по сравнению с равновесным диффузионным режимом. Полезная роль объемной ионизации состоит в том, что с ее помощью можно получить большие плотности тока (10—30 a/cm^2 против 1—2 a/cm^2)

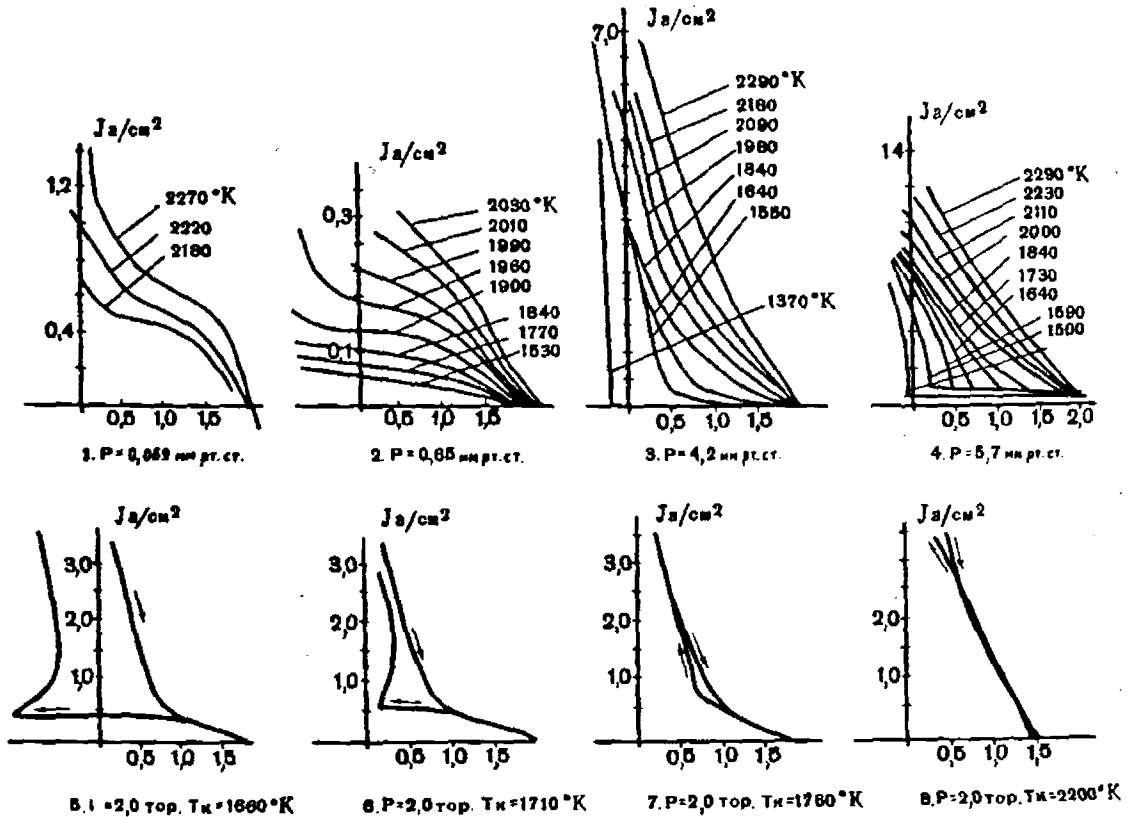


Рис. 8. Осциллограммы вольт-амперных характеристик преобразователя в дуговом режиме, $l = 0,7$ мм

ные сгустки плазмы²¹. С ростом температуры катода свечения газа распространяется на весь промежутки, а участки с отрицательным сопротивлением постепенно исчезают (рис. 8,5—8,8).

Область принудительного поджига (D) появляется из-за того, что вольт-амперные характеристики разряда имеют гистерезис по напряжению, то есть потенциал гашения разряда, как правило, меньше потенциала зажигания. Для этого случая прямой и обратный ход вольт-амперных характеристик представлен на рис. 8,5. Граница области принудительного поджига определяется так: нижняя граница — потенциал гашения равен нулю (линия 5 на рис. 7), верхняя — потенциал зажигания равен нулю (линия 4 на рис. 7).

В отличие от диффузионного режима ток короткого замыкания в дуговом режиме сравнительно мало зависит от температуры (см. рис. 5ab), но сильно зависит от материала катода.

при сравнительно низких температурах (область Γ на рис. 7).

В низковольтной дуге преобладает термический механизм ионизации, то есть ионизация быстрыми электронами «хвоста» максвелловского распределения. Поэтому температура электронного газа T_e должна значительно превосходить температуру электродов. Повышение T_e происходит как вследствие нагревания электронов на приэлектродном барьере, так и вследствие выделения джоулева тепла. Поэтому дуга самопроизвольно загорается только в перекомпенсированном режиме, и объемная ионизация начнется вблизи анода, где повышение температуры за счет джоулева нагрева наибольшее. На это указывает анодное свечение, появляющееся в предразрядном состоянии. Резкое увеличение тока в дуговом режиме, вероятно, связано с аномальным эффектом Шоттки, возникающим под влиянием поля приэлектродного

слоя на границе катода и плазмы. Возможно влияние также других процессов (например, автотермоэлектронной эмиссии).

Механизм объемной ионизации атомов цезия в дуге еще недостаточно хорошо изучен. Численные оценки показывают, что ионизация должна происходить с возбужденных уровней, а не с основного состояния. Время жизни возбужденного состояния увеличивается вследствие того, что плазма «запирает» излучение на резонансных частотах атомов цезия.

Остановимся еще на одном эффекте, который может влиять на скорость ионизации. В «хвосте» функции распределения возникает пучок электронов, ускоренных в заряженном слое у катода. В процессе максвеллизации электроны пучка «диффундируют» в импульсном пространстве, так как максвеллизация происходит через соударения с малой передачей энергии; в результате возникает функция распределения, обогащенная быстрыми частицами, которая в области больших энергий существенно отличается от функции Максвелла. Этот эффект может привести к заметному возрастанию скорости ионизации.

4. ВЛИЯНИЕ МАГНИТНОГО ПОЛЯ НА РАБОТУ ТЕРМОЭЛЕКТРОННОГО ПРЕОБРАЗОВАТЕЛЯ

4.1. Элементы термоэлектронного преобразователя большой мощности будут находиться в магнитном поле токоподводящих электродов, напряженность которого может достигать 100 э и более. В связи с этим вопрос о влиянии маг-

где $\Omega = \frac{eH}{mc}$ — циклотронная частота; H — напряженность магнитного поля; $f(H)$ — некоторая дробно-линейная функция, определяемая из кинетической теории; τ — время свободного пробега электронов. Заметим, что при больших магнитных полях ($H > 100$ э) наблюдается заметное отклонение от обычной формы кривой. Одновременно в плазме генерируются сильные колебания. Возможно, что эти отклонения связаны с аномальной диффузией плазмы в магнитном поле.

Для полной оценки влияния магнитного поля на ток необходимо также учитывать изменение приэлектродной плотности при наложении магнитного поля. Этот эффект можно оценить, записывая законы сохранения числа частиц и энергии в приэлектродном слое, толщина которого порядка длины свободного пробега. Функции распределения частиц, входящих в слой из стенки или из плазмы, можно задать в виде функций Максвелла с соответствующими температурами. В пределах слоя частицы движутся без соударений, причем электроны отклоняются под действием магнитного поля. Часть электронов, вышедших из стенки или из плазмы с малой величиной нормальной компоненты скорости, заворачивает под влиянием магнитного поля, создавая отраженный поток.

Поскольку толщина заряженного слоя около электрода (δ) значительно меньше длины свободного пробега (l_e), влияние электрического поля сказывается лишь в узкой области на границе, то есть

$$R = \frac{m v_e}{e H} \sim l_e \gg \delta.$$

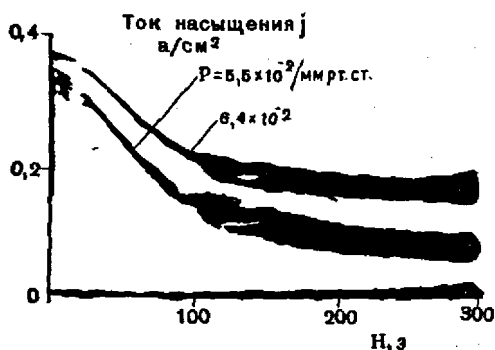


Рис. 9. Осциллограмма зависимости тока короткого замыкания от магнитного поля, катод молибденовый, $L = 1$ м.м., $T = 2110^\circ \text{K}$

нитного поля на работу преобразователя приобретает практическое значение²³. Влияние поперечного поля на ток в диффузионном режиме иллюстрируется графиком, приведенным¹⁰ на рис. 9. Уменьшение тока объясняется уменьшением коэффициента диффузии электронов [см. уравнение (3)]

$$D_e(H) = \frac{D_e(0)}{1 + \Omega^2 \tau^2 f(H)}, \quad (11)$$

Сделанные предположения позволяют найти функции распределения электронов и ионов, с помощью которых можно записать законы сохранения числа частиц и энергии. Решение этих уравнений позволяет определить плотность плазмы, скачок потенциала и температуру электронов вблизи электродов.

В недокомпенсированном режиме ($\omega < 1$) граничная плотность плазмы зависит только от H/P (P — давление) и уменьшается с ростом H ; влияние магнитного поля слабое, поправочные члены оказываются порядка $\frac{l_e}{L}$. В переком-

пенсированном режиме ($\omega > 1$) влияние магнитного поля значительно сильнее, причем плотность возрастает с ростом магнитного поля.

Физически возрастание плотности можно объяснить следующим образом. При наложении магнитного поля ток электронов из приэлектродного слоя в плазму заметно уменьшается, поскольку он осуществляется за счет частиц, обладающих средней тепловой скоростью. В то же время магнитное поле почти не влияет на приток электронов из стенки в приэлектродную область, поскольку последний происходит за счет быстрых частиц, ускоренных в заряженном

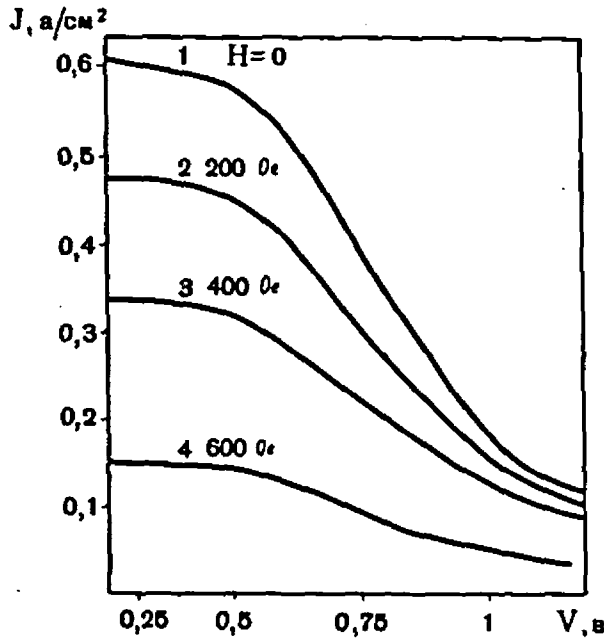


Рис. 10. Расчет влияния поперечного магнитного поля на вольт-амперные характеристики, $T = 1700^\circ \text{K}$, $T' = 800^\circ \text{K}$, $P = 1 \text{ мм рт. ст.}$, $L = 0.5 \text{ мм}$

слое. В результате плотность плазмы у катода возрастает. В недокомпенсированном режиме, очевидно, подобная ситуация не возникает.

Возрастание граничной плотности приводит к тому, что ток в перекомпенсированном режиме убывает с ростом магнитного поля медленнее, чем коэффициент диффузии, и может даже несколько возрастать при слабых полях. На рис. 10 приведены теоретически рассчитанные вольт-амперные характеристики преобразователя при различных магнитных полях.

4.2. Интересно отметить, что в режиме с объемной ионизацией продольное магнитное поле (вдоль направления тока) существенно влияет на горение низковольтной дуги. Это влияние иллюстрируется графиком на рис. 11. Данные, приведенные на этом рисунке, получены при низких температурах катода (1100°K) и напряжении, приложенном извне. Из рисунка видно, что при $l \ll L$ (кривые 3—5) наблюдается монотонное убывание тока с ростом магнитного поля, которое может привести даже к прекращению разряда. Это явление можно объяснить следующим образом. Как уже отмечалось, в низковольтной дуге между электродами имеется максимум потенциала. Значительная доля медленных электронов, образующихся в результате ионизации в области максимума, уходит из межэлектродного пространства вследствие амбиполярной диффузии на стенки камеры. С наложением магнитного поля диффузия электронов в поперечном направлении уменьшается, в то время как положительные ионы продолжают диффундировать к стенкам камеры. Это

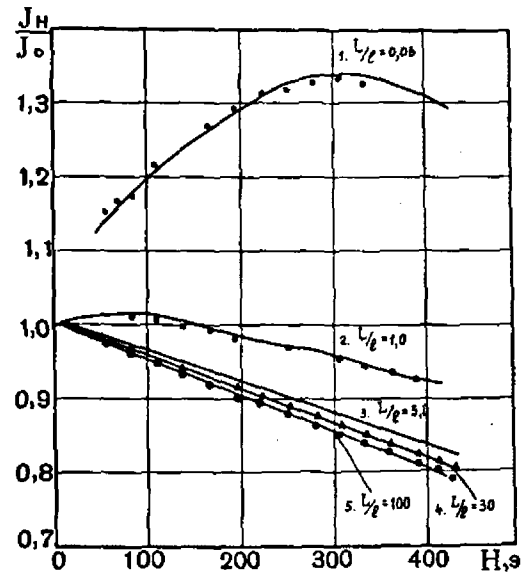


Рис. 11. Зависимость относительного тока низковольтной дуги от величины продольного магнитного поля. Потенциал горения: 1 — 5,4; 2 — 2,6; 3 — 1,4; 4 — 1,4; 5 — 2,4б

приводит к увеличению концентрации медленных электронов в разрядном промежутке и к частичному заполнению потенциальной ямы. Глубина ямы уменьшается до восстановления амбиполярной диффузии на стенку. Уменьшение глубины ямы с ростом H означает уменьшение катодного падения и, следовательно, понижение температуры электронов. Это приводит к уменьшению тока через дугу вплоть до прекращения разряда. Увеличение тока при $l \gg L$ (см. рис. 11, кривая 1) можно объяснить увеличением эффективности ионизации вследствие замагничивания электронов, вылетающих под малым углом к поверхности катода.

5. КОЛЕБАНИЯ ТОКА В ТЕРМОЭЛЕКТРОННОМ ПРЕОБРАЗОВАТЕЛЕ

Изучение колебаний в термоэлектронном преобразователе представляет определенный интерес не только для физических исследований, но с точки зрения их технического использования, например, как источника энергии для радиосвязи или для превращения постоянных токов малых напряжений в переменные.

Колебания наблюдались, во-первых, в области высоких температур ($T' > 1900^\circ \text{K}$) и низких давлений ($P \approx 5 \cdot 10^{-3} \text{ мм рт. ст.}$) и, во-вторых, при низких температурах ($1200^\circ \text{K} < T' < 1500^\circ \text{K}$) и высоких давлениях ($0,04 < P < 0,6 \text{ мм рт. ст.}$)¹⁶. Частота колебаний изменяется в зависимости от условий от нескольких килогерц до нескольких мегагерц. Заметим, что в последней из указанных обла-

стей существенную роль играют соударения с нейтральными атомами, а в первой — кулоновское рассеяние. Объяснение происхождения этих колебаний в работе ¹⁸ не представляется убедительным, поскольку не указывается, каким образом формируется и поддерживается, несмотря на рассеяние, ионный сгусток. Кроме того, колебания наблюдаются и в тех случаях, когда потенциал не имеет формы ловушки для ионов. Возможно, что колебания связаны с пучковой неустойчивостью плазмы в прикатодной области. Функция распределения вблизи электродов, хотя и близка к максвелловской, в то же время, по-видимому, существенно отличается от обычной диффузионной. Дело в том, что при наличии значительных скачков потенциала на границах возмущения функции распределения вблизи границ локализованы в области высоких энергий. В случае перекомпенсированного режима эти возмущения образуются пучком электронов эмиссии, ускоренных в заряженном слое на границе с катодом. В недокомпенсированном режиме возникает аналогичный пучок ионов. Наличие пучков является причиной возникновения пучковой неустойчивости, причем можно показать, что инкремент колебаний для длинных волн равен

$$I_m \frac{\omega}{K} = \frac{V}{1 + \beta^2} \beta \sqrt{1 - \frac{\beta^2 + 1}{\beta^2} (\eta^2 + \beta^2) \frac{C_1^2}{V^2}}, \quad (12)$$

где ω — частота; K — волновой вектор; β — отношение плотности пучка к плотности покоящейся плазмы; $C_1 = \sqrt{\frac{T_e}{m}}$ — разброс тепловых скоростей в плазме; ηC_1 — разброс тепловых скоростей в пучке; V — средняя скорость пучка. При больших V величина $\eta \rightarrow 0$. Из приведенного выражения видно, что инкремент действителен, если скорость пучка V достаточно велика. При этом условии случайные длинноволновые возмущения, возникающие около электрода, будут самопроизвольно нарастать со временем.

Можно показать, что колебания тока и потенциала на границе связаны следующим соотношением:

$$\frac{I \delta}{I} = \frac{1 - \frac{I}{I_0}}{I/I_0} \cdot \frac{e \delta \varphi}{k T_i} \left(1 + \frac{T_i}{T_e}\right), \quad (13)$$

где I — среднее значение тока через преобразователь. Колебания потенциала, тока и плотности на границе будут вызывать аналогичные колебания в объеме, где на их распространение существенное влияние оказывают соударения.

Рассматривая распространение малых возмущений n и φ путем линеаризации системы уравнений диффузии, можно получить следующее дисперсионное уравнение:

$$\frac{\omega}{K} = \sqrt{\frac{T_e + T_i}{M}} \sqrt{\frac{\omega \tau_2}{\omega \tau_2 + i}}, \quad (14)$$

τ_2 — время свободного пробега ионов.

Из (14) следует, что колебания, возникающие на границах, будут затухать в плазме на заданном расстоянии тем сильнее, чем меньше длина волны. Заметим, что скорость распространения этих колебаний определяется тепловой скоростью ионов $\left(\sqrt{\frac{T_e + T_i}{M}}\right)$.

Пройдя через плазму, колебания попадают в цепь и через катод снова в плазму. Таким образом, для усиления колебаний необходимо, чтобы между анодом и катодом укладывалось целое число волн. Из условия резонанса для наиболее длинноволновой первой гармоники получаем выражение для частоты колебаний

$$f = 2\pi\omega = \frac{1}{2} \pi^2 \left(1 + \frac{T_e}{T_i}\right) \frac{l_i}{L} \cdot \frac{v}{L} \times \\ \times \frac{1}{\sqrt{1 + 2\pi^2 \left(\frac{e}{L}\right)^2 \left(1 + \frac{T_e}{T_i}\right)}}. \quad (15)$$

Из уравнения (12) следует, что колебания должны наблюдаться при достаточно большой величине скорости пучка V , то есть при достаточно больших положительных скачках $\Delta\varphi$. Это согласуется с тем, что колебания в диффузионной области наблюдаются в перекомпенсированном режиме. При очень больших перекомпенсациях колебания опять исчезают. Действительно, в этих условиях $I \rightarrow I_0$, и таким образом согласно уравнению (13) δI обращается в нуль. Отсутствие колебаний в недокомпенсированном режиме можно объяснить тем, что в режиме тока насыщения ионный ток, а вместе с ним и пучок, вызывающий в этих условиях неустойчивость, исчезают. Колебания, связанные с неустойчивостью ионного пучка, вероятно, могут быть обнаружены в недокомпенсированном режиме на «хвосте» вольт-амперной характеристики.

При высоких давлениях, когда в (15) можно пренебречь вторым членом под радикалом, частота колебаний оказывается обратно пропорциональной квадрату расстояния

$$f = \frac{1}{2} \pi^2 \left(1 + \frac{T_e}{T_i}\right) \frac{l_i v_i}{L^2},$$

наоборот, при низких давлениях частота обратно пропорциональна первой степени расстояния

$$f = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \sqrt{\left(1 + \frac{T_e}{T_i}\right) \frac{v_i}{L}}.$$

Насколько можно судить по литературе, это действительно соответствует тому, что наблюдается экспериментально. Значения частоты, вычисленные по формуле (15), удовлетворительно согласуются с результатами ряда измерений ^{9, 16, 18}.

6. РАБОТА ТЕРМОЭЛЕКТРОННОГО ПРЕОБРАЗОВАТЕЛЯ (ТЭП) В УСЛОВИЯХ РЕАКТОРА И ПЕТЛЕВЫЕ ИСПЫТАНИЯ

Схематически ТЭП как составная часть конструкции термоэлектронного реактора-генератора представляет собой катод в виде цилиндрической оболочки с заключенным внутри нее тепловыделяющим сердечником. Катод окружен цилиндрическим анодом, отделенным от него зазором, заполненным цезиевой плазмой. Несколько таких последовательно соединенных элементов заключены через слой электроизоляции в общую оболочку, образуя тепловыделяющий элемент реактора генератора.

Условия работы ТЭП в реакторе существенно влияют на его характеристики. Так, например, сильное влияние оказывает неравномерность энерговыделения по активной зоне реактора, которая вызывает неравномерный нагрев катодов различных ТЭП. Плотность энерговыделения может быть существенно выравнена в реакторе на быстрых нейтронах изменением концентрации горючего по активной зоне, а в реакторах на медленных нейтронах — перераспределением замедлителя (шаг решетки твэлов постепенно увеличивается от центра к периферии). Таким способом в реакторе на медленных нейтронах можно добиться почти полного выравнивания энерговыделения, изменяя объемную долю замедлителя в пределах 15% от среднего значения. В реакторе на быстрых нейтронах коэффициент неравномерности энерговыделения по радиусу K_R может быть доведен до величины 1,1 при общем увеличении загрузки на 7—10%.

Другим фактором, сильно влияющим на работу ТЭП в условиях реактора, является неравномерность температуры вдоль катода, возникающая вследствие утечек тепла к анодам соседних ТЭП через коммутационные и дистанционирующие детали. Однако увеличение теплового сопротивления коммутации при последовательном соединении элементов приводит к росту омических потерь. Учет этих факторов (неравномерность температуры вдоль катода, электрическое сопротивление электродов и коммутации и др.) позволяет построить вольт-амперную характеристику ТЭП в реакторе (рис. 12). На этом рисунке пунктиром даны вольт-амперные характеристики при постоянном энерговыделении, а сплошными линиями изотермические характеристики при постоянной температуре катода. Допустимые режимы работы ТЭП лежат в области, расположенной слева от изотермической характеристики, соответствующей максимально допустимой температуре катода T_{\max} °С. Из рис. 12 видно, что с увеличением тепловой мощности электрическая мощность, снимаемая с реактора-генератора, и его к. п. д. должны увеличиваться

лишь до некоторого предела. При слишком большой тепловой мощности область допустимых режимов работы сильно сужается (сводясь в пределе лишь к режиму короткого замыкания). Режим максимальной мощности оказывается за пределами этой области, и дальнейшее увеличение тепловой мощности приводит к необходимости уменьшения к. п. д. и снимаемой электрической мощности (рис. 13).

Важным этапом разработки реактора-преобразователя является переход от лабораторных исследований к исследованиям работы ТЭП в условиях реактора (петлевые испытания). Такие исследования проводились в петлевых каналах реактора Первой атомной электростанции и реактора на быстрых нейтронах БР-5. Следует отметить, что эксперименты на быстрых аппаратах имеют некоторое преимущество с точки зрения расчета к. п. д. преобразователя ввиду отсутствия эффекта блокировки нейтронов в сердечнике ТЭП. Петлевые каналы были оборудованы замкнутой вакуумной системой, сильноточными токовыводами, системой регулировки температуры анода и контроля температуры катода, анода и других точек, а также системой измерения характеристик преобразователя. Преобразователь изготовлялся в виде цилиндрической ампулы с цезиевым термостатом в нижней части, которая подсоединялась к вакуумной и другим системам петлевого канала (рис. 14).

Тепловыделяющий элемент преобразователя выполнялся в различных вариантах: в виде стержня из твердого раствора $UC + ZrC$ без оболочки, в виде стержней из UO_2 в оболочке из молибдена и других материалов с нанесением на внешней поверхности оболочки эмиссионного покрытия или без него. Зазор между коллектором и эмиттером был 0,4—0,5 мм. Температура катода измерялась вольфрам-рениевой термопарой. Температура анода регулировалась изменением состава смеси газов азот — гелий в узком зазоре между стенкой ампулы и стенкой канала. На вакуумной линии около ампулы преобразователя располагался пневматический клапан, который позволял во время работы производить периодическую откачку межэлектродного зазора преобразователя.

В реакторе работа преобразователя исследовалась в различных режимах: квазивакуумном, диффузионном и дуговом. На выходные характеристики преобразователя сильное влияние оказывает распределение температуры по катоду, которое определяется способом крепления катода и коммутационными переходами между катодами и анодами соседних ТЭП. На рис. 15 показано распределение температуры, а также плотности тока и э. д. с. вдоль катода при креплении катода по обоим концам. Получаемые в этих экспериментах результаты из-за большой неравномерности температуры по катоду являются усредненными в некоторой области температур.

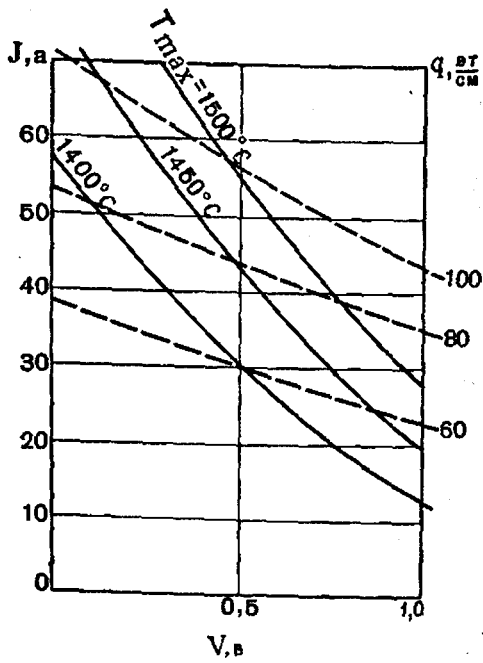


Рис. 12. Расчетные вольт-амперные характеристики ТЭП при разных плотностях энерговыделения в сердечнике. Площадь катода 15 см^2

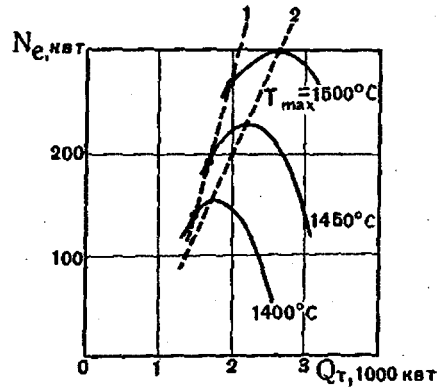


Рис. 13. Зависимость электрической мощности реактора-преобразователя N_e от тепловой мощности. Объем активной зоны 100 л . T_{max} — максимальная температура катода:
1 — режим максимального к. п. д.;
2 — режим максимальной мощности

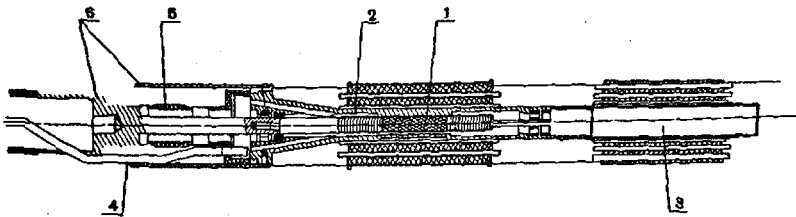


Рис. 14. Ампула преобразователя с цезиевым термостатом: 1 — тепловыделяющий сердечник; 2 — коллектор; 3 — цезиевый термостат; 4 — вакуумная трубка; 5 — изолятор; 6 — токоведущие шпиги

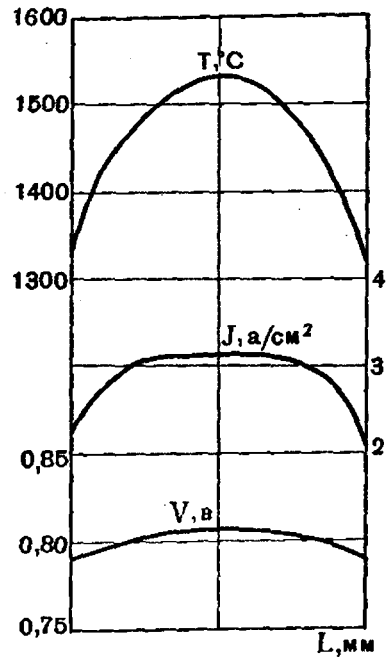


Рис. 15. Распределение I , V и T по длине ТЭП. Плотность энерговыделения в сердечнике $ТЭ 90 \text{ Вт/см}^2$

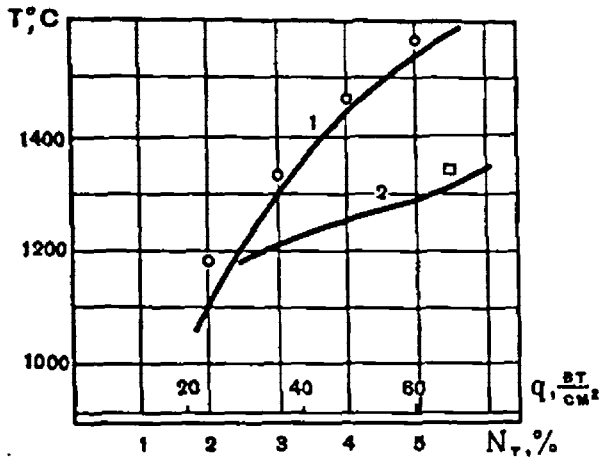


Рис. 16. Зависимость температуры катода от тепловой мощности ТЭП, q — плотность энерговыделения в сердечнике, N_r — мощность реактора

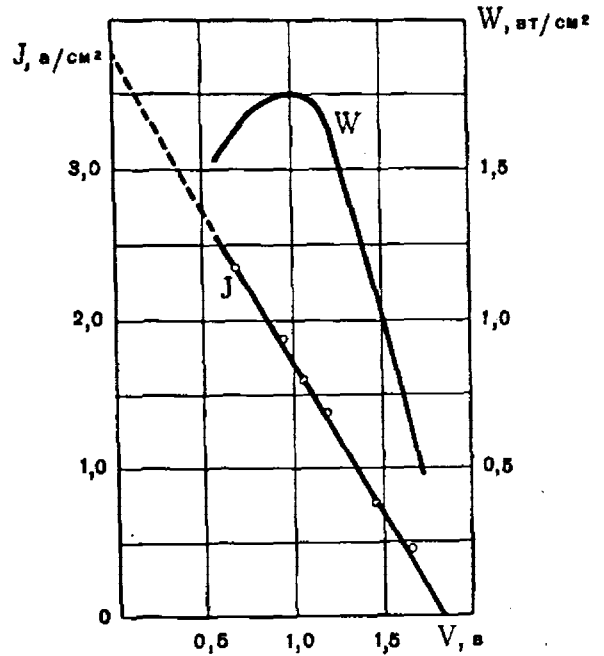


Рис. 17. Вольт-амперная характеристика и выходная мощность для преобразователя с молибденовым катодом. Температура эмиттера $T' = 1600^\circ\text{C}$

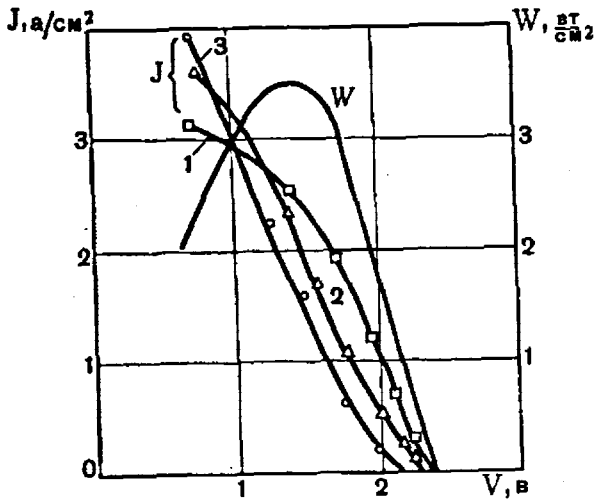


Рис. 18. Вольт-амперная характеристика и выходная мощность для преобразователя с катодом из UC+ZrC. Температура эмиттера $T = 1500^\circ\text{C}$:

1 — $P = 0,15$ мм рт. ст.; 2 — $P = 0,2$ мм рт. ст.;
3 — $P = 4,0$ мм рт. ст.; W для кривой 1

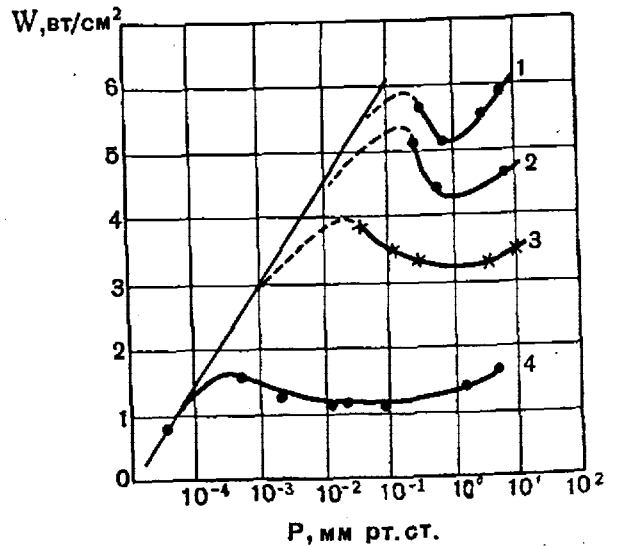


Рис. 19. Зависимость выходной мощности преобразователя W с катодом из UC+ZrC от давления цезия:

1 — $T' = 1600^\circ\text{C}$; 2 — $T' = 1550^\circ\text{C}$; 3 — $T' = 1500^\circ\text{C}$; 4 — $T' = 1250^\circ\text{C}$

На рис. 16 приведена расчетная и экспериментальная зависимость температуры молибденового катода при различной мощности аппарата в режиме холостого хода (1). На этом же рисунке приведена кривая 2, иллюстрирующая электронное охлаждение эмиттера при отборе тока, соответствовавшего оптимальной нагрузке. Типичные характеристики работы преобразователя в реакторе показаны на рис. 17 и 18, где приведены вольт-амперные характеристики и зависимости выходной мощности от напряжения преобразователей с катодами из молибдена и $UC + ZrC$ (вариант без оболочки). На рис. 19 приведена зависимость выходной мощности преобразователя с катодом из $UC + ZrC$ от давления паров цезия при различных температурах катода. В реакторных экспериментах наблюдались колебания тока по характеру и условиям, аналогичные рассмотренным в разд. 5.

Наличие в петлевом канале замкнутой вакуумной системы с пневматическим клапаном позволяло проследить как за выходом продуктов деления из сердечников ТЭП, так и за влиянием вакуума и осколков деления на работу преобразователя. Выход осколков деления из сердечников с UO_2 был заметно выше по сравнению с сердечниками из $UC + ZrC$.

В вакуумной системе наряду с газообразными осколками были обнаружены и твердые осколки, например лантан и др. Характеристики ТЭП в реакторе были достаточно стабильны при периодической откачке межэлектродного зазора преобразователя. При работе с закрытым клапаном ток короткого замыкания заметно изменялся, однако после откачки межэлектродного зазора параметры преобразователя восстанавливались. Ресурс работы при петлевых испытаниях составлял для ТЭП с сердечником из $UC + ZrC$ и сердечником из UO_2 несколько сот часов.

ЛИТЕРАТУРА

1. А. Ф. Иоффе. Полупроводниковые термоэлементы. М.—Л., Изд-во АН СССР, 1960.
2. А. И. Ансельм. Термоэлектронный вакуумный термоэлемент. М., Изд-во АН СССР, 1951.
3. Л. Н. Добрецов. Журн. техн. физ., 30, № 4, 365 (1960).
4. Н. Д. Моргулис. Усп. физ. наук, 70, 679 (1960).
5. W. V. Nottingham. Доклад на 4-й Международной конференции по ионизационным явлениям в газах, Упсала, VIII (1959).
6. G. Hatsopoulos, Dissertation M. I. I. 1956, Cambridge.
7. Р. Я. Кучеров и Л. Э. Рикенглаз. Журн. техн. физ., 32, 1275 (1962).
8. P. L. Auer, H. Hurwitz. J. Appl. Phys., 30, 161 (1959).
9. F. M. Johnson R. S. A. Rev., 22, 21 (1960).
10. Ю. К. Гуськов и др. Журн. техн. физ., 34, № 6 (1964).
11. Н. П. Стаханов и А. С. Степанов. Журн. техн. физ., 34, 399 (1964).
12. Б. Я. Мойжес и Г. Е. Пикус. ФТТ, 2, 756 (1960).
13. Д. Н. Мирлин, Г. Е. Пикус и В. Г. Юрьев. Журн. техн. физ., XXXII, № 6, 762 (1962).
14. В. П. Кармазин и Н. П. Стаханов. ПМТФ, № 5 (1963).
15. В. П. Кармазин, Н. П. Касиков и Н. П. Стаханов. Доклад на XI Всесоюзной конференции по физическим основам катодной электроники, Киев (1963).
16. Н. Д. Моргулис, С. М. Левинский и И. Н. Грошек. РИЭ, 7, 352 (1962).
17. R. L. Aamodt, L. I. Group, W. D. Nichols. J. Appl. Phys., 33.
18. M. Gottlieb, R. I. Zollweg. Bull. Am. Soc., 5, 383 (1960).
19. С. А. Маев и Н. П. Стаханов. Доклад на XI Всесоюзной конференции по физическим основам катодной электроники, Киев (1963).
20. С. А. Маев. ТВТ, в печати. Р. Я. Кучеров и Л. Э. Рикенглаз. Журн. техн. физ., 37, 125 (1959).
21. М. А. Лебедев. Журн. техн. физ. в печати.
22. Ю. К. Гуськов, М. А. Лебедев и Н. П. Стаханов. Доклад на XI Всесоюзной конференции по физическим основам катодной электроники, Киев (1963).
23. Г. Е. Пикус. Журн. техн. физ., 31, 1014 (1961).
24. Н. Д. Моргулис и Ю. Н. Чутов. УФЖ, 7, 1003 (1962).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/317 USSR

Theoretical and experimental studies relating to the development of thermionic reactor-converters

By I. I. Bondarenko et al.

In this paper, the possibilities of using thermionic heat-to-power converters in nuclear engineering for medium- and low-power nuclear reactors are discussed.

The results of theoretical and experimental studies

of basic converter processes under various operating conditions (low pressure with space-charge neutralisation, low mean-free-path range, low-voltage arc range) are presented, and the physical and technical features of these conditions are described.

The results of studies of surface ionisation and the thermo-electronic emission properties of the principal refractory and structural materials are also presented; they include the characteristics of the thermionic low-pressure converter with space-charge neutralisation. Thermo-emission constants are briefly discussed.

The paper also deals with theoretical and practical results relating to the voltage-current characteristics of the converter in the low mean-free-path range, and to the dependence of the saturation current and maximum power on electrode temperature (cesium), vapour pressure and the emission properties of the electrodes. The heat-flux carried away from the cathode by electrons and the converter efficiency are worked out. Some physical parameters of the converter are derived from a comparison of the theoretical and experimental data.

Studies carried out under low-voltage-arc conditions are of especial interest. The dependence of voltage-current characteristics and power output on emission parameters, electrode temperature and vapour pressure of the cesium are presented, as is also the dependence of the breakdown voltage on vapour pressure and cathode temperature. Results are given of probe measurements of electron temperature, plasma density and potential distribution for the low-voltage arc in cesium vapour.

The influence of the external magnetic field on the thermionic converter and low-voltage arc is discussed. The dependence of the voltage-current characteristics and breakdown potential in a longitudinal and transverse magnetic field is described. The dependence of saturation-current and voltage-current characteristics of the converter on the strength of the magnetic field are also studied, both theoretically and experimentally.

Results obtained in theoretical and experimental studies on current fluctuation in thermionic converters are reported. The conditions in which fluctuations occur, and the dependency of their frequency on different physical parameters, are discussed. The cause of such fluctuations is investigated theoretically.

Lastly, the basic scientific and technical problems that will have to be solved before thermionic reactor-converters can be used as a source of power are considered.

A/317 URSS

Etudes théoriques et expérimentales relatives à la mise au point de réacteurs à conversion thermoélectronique

par I. I. Bondarenko *et al.*

Les possibilités d'utilisation en énergétique nucléaire d'un convertisseur thermoélectronique pour des réacteurs de faible et moyenne puissance sont discutées dans le mémoire.

On donne les résultats d'études expérimentales et théoriques des processus fondamentaux intervenant

dans le convertisseur pour différents régimes de fonctionnement (vide à peu près total, diffusion, arc). On étudie les caractéristiques physiques et techniques de ces régimes.

On donne les résultats des études de l'ionisation de surface et des propriétés thermo-ioniques des principaux matériaux à point de fusion élevé, ainsi que les caractéristiques du convertisseur thermoélectronique dans un régime proche du vide. Les valeurs des constantes de l'émission thermo-ionique sont données.

Les caractéristiques tension-courant du convertisseur en régime de diffusion sont étudiées du point de vue théorique et expérimental, ainsi que l'influence de la température des électrodes, de la tension de vapeur du césium et du matériau des électrodes, sur le courant de saturation et la puissance maximale. La quantité de chaleur entraînée à partir des électrodes par les électrons ainsi que le rendement sont calculés. En comparant la théorie et les expériences, on obtient les valeurs de certains paramètres physiques.

L'étude du régime à arc revêt un intérêt tout particulier. On présente les caractéristiques de fonctionnement du convertisseur thermoélectronique dans un tel régime, l'influence du matériau de la cathode, de la température des électrodes et de la tension de vapeur du césium sur les caractéristiques tension-courant et sur la puissance de sortie. On donne la relation entre, d'une part, le potentiel d'amorçage de l'arc à basse tension et, d'autre part, la tension de vapeur du césium et la température des électrodes; on indique les résultats de mesures par sonde de la température des électrons, de la densité du plasma et du potentiel dans l'espace entre électrodes pour un arc basse tension dans la vapeur de césium.

On étudie l'influence du champ magnétique sur l'arc basse tension et sur le fonctionnement du convertisseur thermoélectronique. On montre les variations des caractéristiques tension-courant et du potentiel d'amorçage de l'arc basse tension dans un champ magnétique longitudinal et perpendiculaire. On étudie théoriquement et expérimentalement l'influence de l'intensité du champ magnétique sur le courant de saturation et sur l'aspect des caractéristiques tension-courant du convertisseur.

Les résultats théoriques et expérimentaux de l'étude des oscillations du courant dans le convertisseur thermoélectronique sont donnés. On étudie les conditions dans lesquelles ces oscillations apparaissent et l'influence de différents paramètres physiques sur la fréquence de ces oscillations. La cause de l'apparition des oscillations est étudiée du point de vue théorique.

On étudie les principaux problèmes scientifiques et techniques qu'il est indispensable de résoudre pour la construction d'un réacteur à conversion thermo-ionique.

A/317 URSS

Estudios teóricos y experimentales sobre el desarrollo de reactores convertidores termoelectrónicos

por I. I. Bondarenko et al.

En la memoria se analizan las posibilidades de utilización de un convertidor termoelectrónico, en el campo de la energía nuclear, para los reactores de pequeña y de media potencia.

Se exponen los resultados de los estudios experimentales y teóricos sobre los procesos físicos fundamentales, que se verifican en un convertidor y de los diversos regímenes de trabajo del convertidor termoelectrónico (baja presión con neutralización de carga, pequeño alcance del libre recorrido medio y alcance del arco de baja tensión). Se describen las características físicas y técnicas de dichos regímenes.

Se dan los resultados de la investigación de la ionización superficial y de las propiedades termoemisoras de los principales refractarios y de los materiales estructurales así como las características del convertidor termoelectrónico de baja presión con neutralización de carga. También se dan los valores de las constantes de termoemisión.

Se consideran, desde los puntos de vista teórico y experimental, las características voltaje-corriente del convertidor en el pequeño alcance del libre recorrido medio y cómo varían la corriente de saturación y la potencia máxima en función de la temperatura de los electrodos, de la presión de los vapores de cesio y del material de los electrodos. Se calcula la cantidad de calor extraída del cátodo por los electrones, y el rendimiento. Basándose en una comparación de la

teoría con los experimentos se han obtenido los valores de una serie de parámetros físicos.

Ofrece un interés particular el estudio del régimen de arco de bajo tensión. Se presentan las características voltaje-corriente y la potencia obtenida en función de la naturaleza del material del cátodo, de la temperatura de los electrodos y de la presión de los vapores de cesio. Se da la relación que liga el potencial de cebado de un arco de poco voltaje con la presión de los vapores de cesio y la temperatura de los electrodos. Se presentan los resultados de medidas, con sondas, de la temperatura electrónica, de la densidad del plasma y del potencial en el espacio comprendido entre los electrodos, para un arco de baja tensión en vapores de cesio.

Se considera la influencia del campo magnético sobre un arco de baja tensión y el funcionamiento de un convertidor termoelectrónico. Se expone de qué dependen las características voltaje-corriente y el potencial de cebado de un arco de baja tensión en un campo magnético longitudinal y transversal. Se ha estudiado (teórica y experimentalmente) cómo varían la corriente de cebado y el aspecto de las características voltaje-corriente del convertidor en función de la intensidad del campo magnético.

Se presentan los resultados del estudio teórico y experimental sobre las oscilaciones de la corriente en un convertidor termoelectrónico. Se consideran las condiciones en las cuales se producen oscilaciones y cómo varía su frecuencia en función de diversos parámetros físicos. Se analiza teóricamente la causa de las oscilaciones.

Por último, se consideran los problemas fundamentales, científicos y técnicos, que es preciso resolver para poder construir un reactor convertidor termoelectrónico.

Высокотемпературный реактор-преобразователь «Ромашка»

М. Д. Миллионщиков, И. Г. Гвердцители, А. С. Абрамов,
Л. В. Горлов, Ю. Д. Губанов, А. А. Ефремов, В. Ф. Жуков,
В. Е. Иванов, В. К. Ковырзин, Е. А. Коптелов, В. Г. Косовский,
Н. Е. Кухаркин, Р. Я. Кучеров, С. П. Лалыкин, В. И. Меркин,
Ю. А. Нечаев, Б. С. Поздняков, Н. Н. Пономарев-Степной,
Е. Н. Самарин, В. Я. Серов, В. А. Усов, В. Г. Фадин,
В. В. Яковлев, М. В. Якутович, В. А. Ходаков, Г. В. Компаниец*

ВВЕДЕНИЕ

Эффективное использование ядерной энергии в установках различного назначения связано с поисками и разработкой новых способов преобразования энергии. Большой интерес представляет разработка реакторов-преобразователей с прямым преобразованием тепловой энергии в электрическую в термоэлектрическом или термоэмиссионном преобразователе.

Одной из таких установок является экспериментальная энергетическая установка «Ромашка» Института атомной энергии. В этой установке используется одна из наиболее простых по конструкции и надежных в работе систем. Реактор-преобразователь сконструирован в единый агрегат, в котором тепло, генерируемое в активной зоне реактора, передается за счет теплопроводности материалов на расположенный на наружной поверхности отражателя термоэлектрический преобразователь.

В реакторе используются тепловыделяющие элементы на основе дикарида урана, который по своим свойствам — высокой рабочей температуре и достаточно высокой теплопроводности — является перспективным материалом для ТВЭЛов. Хорошие теплофизические и нейтронно-физические параметры реактора обеспечиваются за счет применения в установке в качестве материала отражателя металлического бериллия и в качестве конструкционного материала ак-

тивной зоны — графита. Применение этих материалов в реакторе позволило использовать высокотемпературный преобразователь на основе полупроводников из кремний-германиевого сплава.

ОПИСАНИЕ РЕАКТОРА-ПРЕОБРАЗОВАТЕЛЯ

Ядерный реактор (рис. 1) представляет собой нейтронно-физическую систему, работающую на быстрых нейтронах. Реактор служит источником тепловой энергии, которая преобразуется с помощью термоэлементов в энергию электрическую.

Тепло, выделяющееся в активной зоне реактора при делении U^{235} , путем теплопроводности передается в радиальном направлении на отражатель и далее с боковой поверхности отражателя на коаксиально расположенный, примыкающий к отражателю полупроводниковый преобразователь. Реактор цилиндрической формы состоит из активной зоны и отражателя (радиального и торцовых). Расположение реактора вертикальное.

Активная зона реактора по высоте набирается из тепловыделяющих элементов, каждый из которых выполнен из графитового корпуса и топливных пластин из дикарида урана с обогащением 90% по U^{235} .

Общее количество U^{235} в активной зоне составляет 49 кг. Радиальный отражатель реактора собран из коаксиально расположенных элементов из бериллия и графита. Торцовые отражатели изготовлены также из металлического бериллия. Для уменьшения утечки тепла через торцы реактора применяется теплоизоляция.

* Институт атомной энергии им. И. В. Курчатова, Физико-технический институт Государственного комитета по использованию атомной энергии СССР, Физико-технический институт Академии наук Украинской ССР.

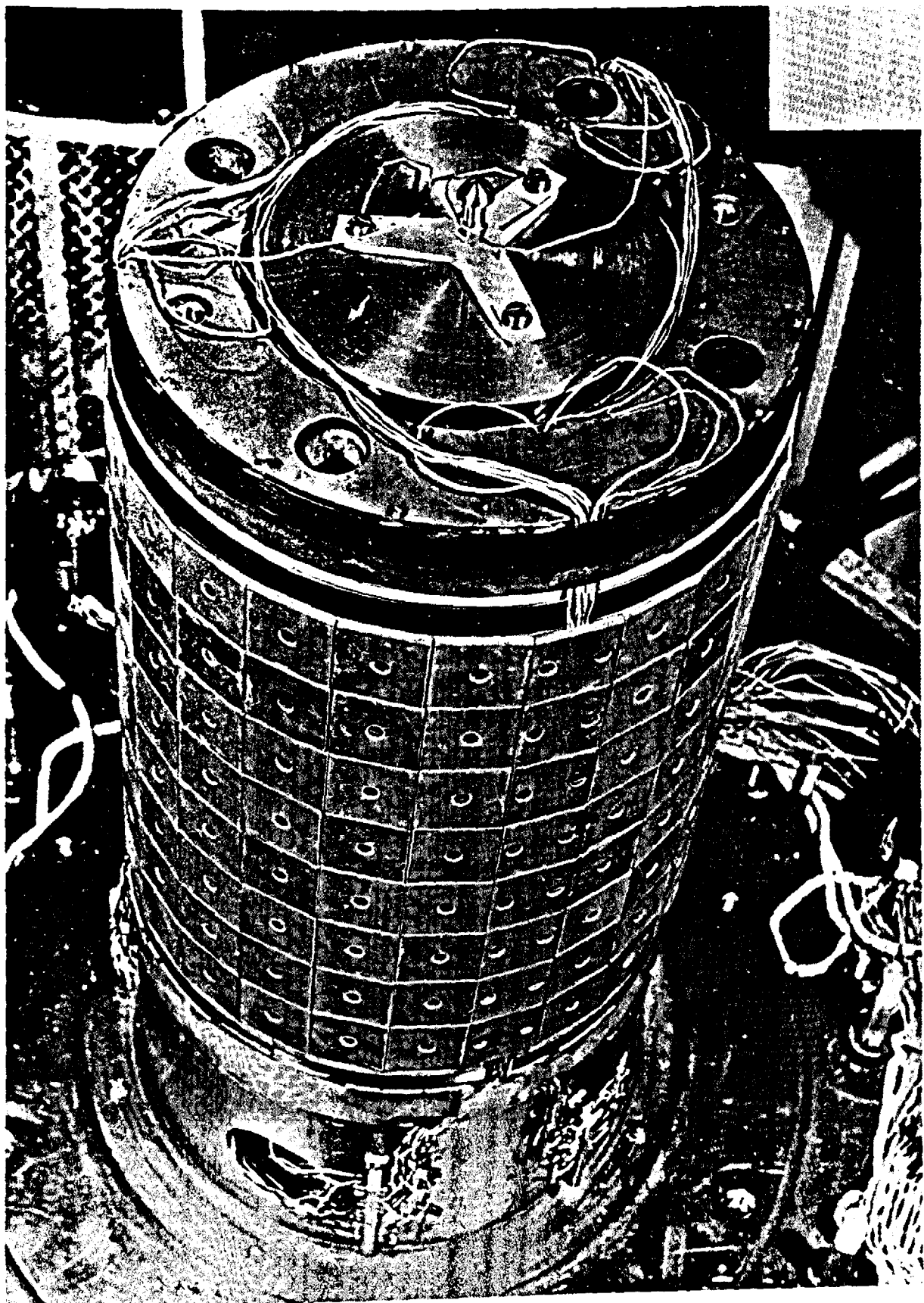


Рис. 1. Общий вид реактора

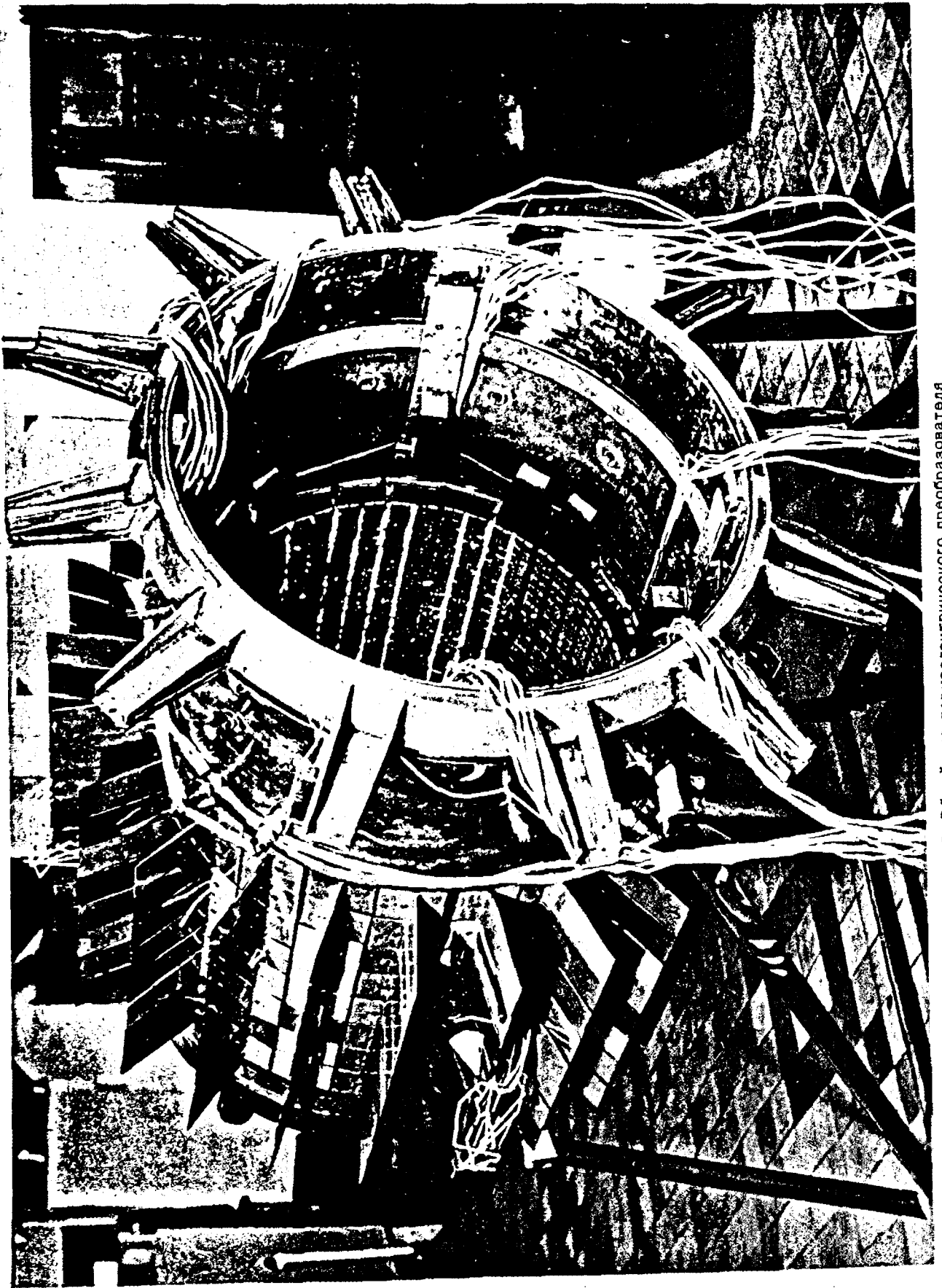


Рис. 2. Общй вид термоэлектрического преобразователя

Основные параметры реактора-преобразователя

№ п/п	Наименование параметра	Размерность	Величина
1. Теплоэнергетические параметры установки			
1	Электрическая мощность	квт	0,50 ÷ 0,80 *
2	Общая тепловая мощность	квт	40 **
3	Максимальная температура бериллиевого отражателя	°С	1200
4	Максимальная температура наружной поверхности бериллиевого отражателя	°С	980
5	Средняя температура основания излучающих ребер	°С	550
6	Максимальная температура твэла из дикарбида урана	°С	1900
2. Нейтронно-физические характеристики реактора			
1	Загрузка U ²³⁵	кг	49
2	Эффективность стержня АР	%	0,2
	Эффективность стержня РР	%	0,4
3	Эффективность стержня АЗ	%	0,4
4	Эффективность всех стержней регулирования	%	1,4
5	Эффективность подвижного торцового отражателя	%	3,5
6	Общий поток нейтронов в центре активной зоны	$\frac{\text{нейтр}}{\text{см}^2 \cdot \text{сек}}$	10 ¹²
7	Общий поток нейтронов на границе активной зоны реактора	$\frac{\text{нейтр}}{\text{см}^2 \cdot \text{сек}}$	7 · 10 ¹²
8	Утечка нейтронов из реактора	$\frac{\text{нейтр}}{\text{см}^2 \cdot \text{сек}}$	3 · 10 ¹¹

* В зависимости от температурных условий.

** С учетом растечек.

Система регулирования реактора состоит из четырех стержней, расположенных в радиальном бериллиевом отражателе, и нижнего торцового отражателя. Автоматическое регулирование реактора в процессе работы осуществляется движением стержня АР из бериллия и окиси бериллия в оболочке из жаропрочной стали, расположенного в радиальном отражателе. Ручное регулирование реактора осуществляется движением стержня РР, расположенного в радиальном отражателе. Стержень РР комбинированный, он состоит из рассеивающей части на основе окиси бериллия и бериллия и поглотительной части на основе борсодержащего сплава. Компенсация температурного эф-

фекта осуществляется движением нижнего торцового отражателя. Для аварийной защиты реактора используются два аварийных стержня АЗ в радиальном отражателе и нижний торцовый отражатель. По конструкции стержни АЗ аналогичны стержню РР. Привод всех органов регулирования, кроме стержня автоматического регулирования АР, осуществляется с помощью гидравлической системы. Перемещение стержня АР производится сервоприводом с электрическим питанием. Приводы органов регулирования и защиты расположены снизу под корпусом реактора.

В качестве термоэлектрического преобразователя в установке используется преобразователь на основе кремний-германиевого сплава. Термоэлементы представляют собой пару термостолбиков с *n*- и *p*-проводимостью, соединенных по горячей стороне коммутационной пластиной. По холодной стороне отдельные пары термостолбиков коммутируются между собой в единую цепь. В целом термоэлектрический преобразователь установки разбит на четыре группы термоэлементов, каждая из которых имеет независимые силовые выводы. Таким образом, конструкция преобразователя установки позволяет проводить исследования характеристик как отдельных групп преобразователя, так и всего преобразователя при последовательном либо параллельном соединении групп. Внутри каждой из четырех групп преобразователя термоэлементы коммутируются последовательно в четыре параллельные цепи. Общий вид преобразователя представлен на рис. 2.

Основные параметры реактора-преобразователя приведены в таблице.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ И РАСЧЕТНО-ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ, ОБОСНОВЫВАЮЩИЕ ВЫБОР ПАРАМЕТРОВ УСТАНОВКИ

Энергетические возможности реактора-преобразователя без теплоносителя определяются предельными характеристиками используемых в нем материалов, размерами его основных элементов и их конструктивным оформлением. Тесная взаимосвязь этих параметров потребовала выполнения широкого круга расчетно-теоретических и экспериментальных теплофизических, нейтронно-физических и материаловедческих исследований, направленных на отыскание оптимальных характеристик установки и обоснование работоспособности ее элементов.

Теплоэнергетические расчеты

Электрическая мощность установки в конечном счете определяется тепловым режимом преобразователя, параметрами его конструкции и физическими свойствами материалов.

Выражение, описывающее величину электрической мощности, можно представить в виде

$$W = \frac{M}{(1+M)^2} \times \frac{1 - \frac{r_k S}{l(\rho_1 + \rho_2)} - \frac{2x_2 S_2}{S(x_1 + x_2)}}{2Q_n I \alpha^2 \left[\frac{1}{M+1} \cdot \frac{T_r - T_x}{T_r - T_x} - \frac{1}{2} \frac{1}{(M+1)^2} \right]} \times \frac{\sum_{i=1}^{n_2} \sum_{k=1}^{n_1} \alpha_i \alpha_k Q_i Q_k}{(x_1 + x_2)^2 \frac{S}{m} \sum_i n_i (\rho_{1i} + \rho_{2i})}$$

- где Q_i — тепловой поток через i зону;
 Q_n — полный тепловой поток через преобразователь;
 x — коэффициент теплопроводности;
 ρ — удельное сопротивление;
 α — коэффициент термо-э.д.с.;
 l — длина термостолбика;
 S — сечение термостолбиков;
 S_2 — сечение теплоизоляции между столбиками;
 n_2 — число зон;
 n — число последовательно соединенных пар;
 m — число параллельно соединенных пар;
 T_r, T_x — температура горячего и холодного спаев полупроводников;
 r_k — сопротивление коммутации одной термодулы;
 M — отношение сопротивления внешней нагрузки к внутреннему сопротивлению преобразователя.

(Индексы 1 и 2 относятся к полупроводниковым материалам n - и p -типа; i или k — номер зон.)

Неравномерность распределения температур и тепловых потоков по внешней поверхности радиального отражателя учитывается этой формулой приближенно, разбиением преобразователя по высоте на кольцевые зоны, в пределах которых температурные условия принимаются одинаковыми. Влиянием неравномерности на эффекты Джоуля и Пельтье пренебрегают.

Особенностью установки является то, что режим работы преобразователя, а следовательно, и выдаваемая им электрическая мощность определяются допустимым уровнем температуры отдельных элементов реактора и преобразователя и возможностями сброса тепла излучателем. В связи с этим для определения энергетических параметров установки необходимо было выполнить тепловой расчет реактора-преобразователя в целом.

Задача о распределении температур в активной зоне, отражателе и преобразователе сводится к решению уравнений теплопроводности в многозонной системе с нелинейными граничными условиями, описывающими передачу тепла излучением. Численное решение этих уравнений было проведено на ЭВМ.

Распределение температур в радиальном отражателе для одного из режимов работы представлено на рис. 3.

Элементы активной зоны реактора находятся в напряженных условиях как по уровню температур, так и по температурным перепадам, определяющим термические напряжения. В связи с этим была решена задача о влиянии возможных нарушений целостности тепловыделяющего элемента на повышение температуры в активной зоне. Решение было выполнено с помощью метода электро моделирования температурных полей на электропроводной бумаге.

В рассматриваемой системе отвод тепла, прошедшего через преобразователь, осуществляется излучением. Максимальный теплоотвод с поверхности при заданной средней температуре холодных слоев преобразователя обеспечивает наибольшую электрическую мощность при прочих равных условиях. Для отыскания оптимальной формы излучающей поверхности (число ребер, размер, профиль) была решена система интегро-дифференциальных уравнений, описывающая распределение температуры в ребрах с учетом взаимного облучения элементов и теплопроводности. На рис. 4 дана зависимость теплоотвода от веса и числа ребер.

С учетом результатов тепловых расчетов системы была определена электрическая мощность установки в зависимости от тепловой мощности, проходящей через преобразователь при вариации величины добротности термоземента.

Нейтронно-физические расчеты

Нейтронно-физические характеристики реактора были рассчитаны на ЭВМ с использованием многогруппового метода статистических испытаний (метод Монте-Карло). Применение этого метода в данном случае позволило надежно учесть геометрические и физические особенности системы, связанные с гетерогенной структурой активной зоны, наличием каналов и зазоров сложной конфигурации, резко неоднородными физическими свойствами материалов активной зоны и отражателя, специфической системой регулирования реактора и т. д. При расчетах использовалась многогрупповая (21 группа) система констант, которая учитывает резонансную структуру сечения U^{235} , реакцию ($n, 2n$) на бериллии и неупругие переходы в первых девяти группах. В процессе расчета прослеживалось около 50 000 нейтронных историй

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИЗУЧЕНИЕ ХАРАКТЕРИСТИК ЭЛЕМЕНТОВ УСТАНОВКИ

Для обоснования параметров, заложенных в проект установки, были проведены экспериментальные теплофизические и металлофизические

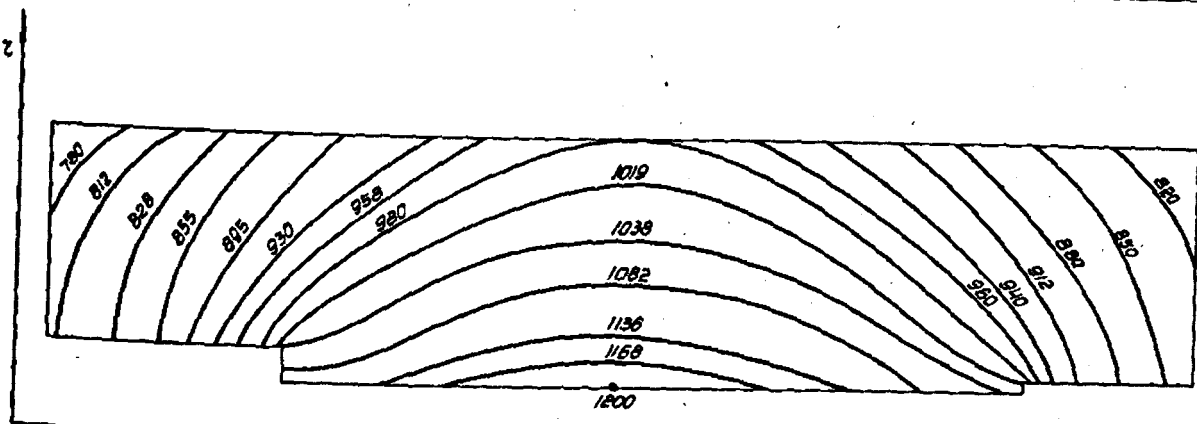


Рис. 3. Распределение температур по сечению радиального отражателя

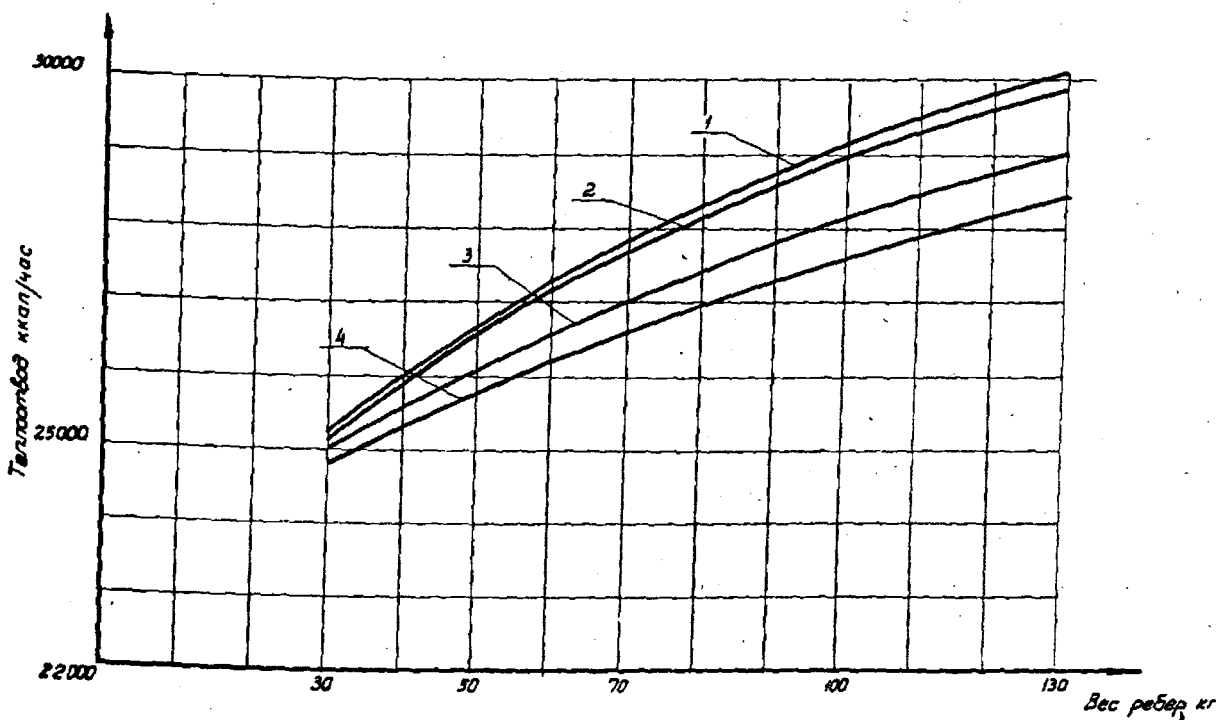


Рис. 4. Зависимость теплоотвода от веса ребер при различном числе ребер (температура основания ребер 600°C):
1—6 ребер; 2—9 ребер; 3—18 ребер; 4—36 ребер

ские исследования материалов и узлов установки.

Исследованы контактное взаимодействие дикарида урана с графитом, испаряемость дикарида урана в инертной среде и в вакууме при температурах до 2000°C (рис. 5). Изучена температурная зависимость коэффициента линейного расширения и коэффициента теплопроводности дикарида урана в широком интервале температур (рис. 6). Эти исследования, наряду с исследованием термостойких характеристик дикарида урана, испытаниями макетных тепловыделяющих элементов и петлевыми

испытаниями образцов из дикарида урана, показали работоспособность тепловыделяющих элементов в рабочих условиях.

Использование в реакторе бериллиевого отражателя, работающего при больших тепловых потоках в области температур, близкой к температуре плавления, потребовало провести экспериментальные исследования взаимодействия металлического бериллия с различными конструктивными материалами, изучить коэффициент теплопроводности бериллия, исследовать деформируемость и термостойкость бериллия.

Для уменьшения растечек тепла по торцам

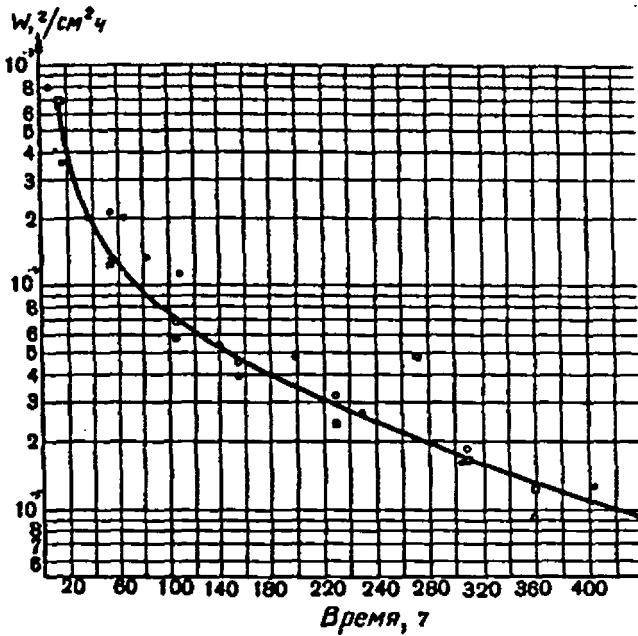


Рис. 5. Скорость испарения диоксида урана в инертной среде при $t = 2000^\circ\text{C}$

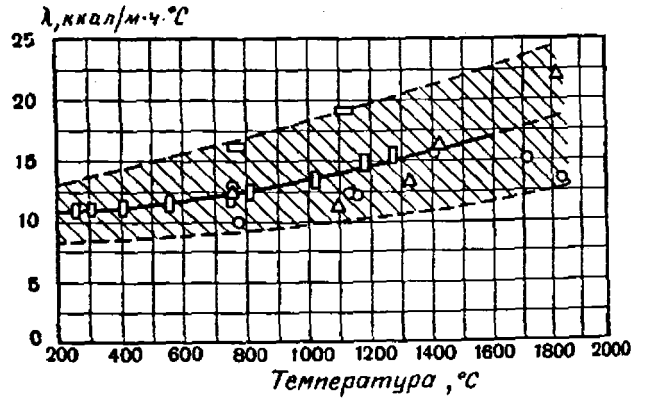


Рис. 6. Зависимость теплопроводности диоксида урана от температуры

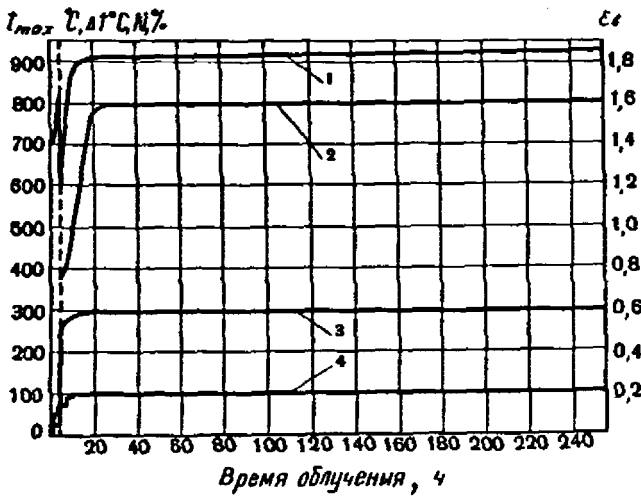


Рис. 7. Изменение основных параметров полупроводниковых термоэлементов в процессе реакторного облучения. Максимальный интегральный поток нейтронов $\sim 3 \cdot 10^{19}$ нейтр/см²

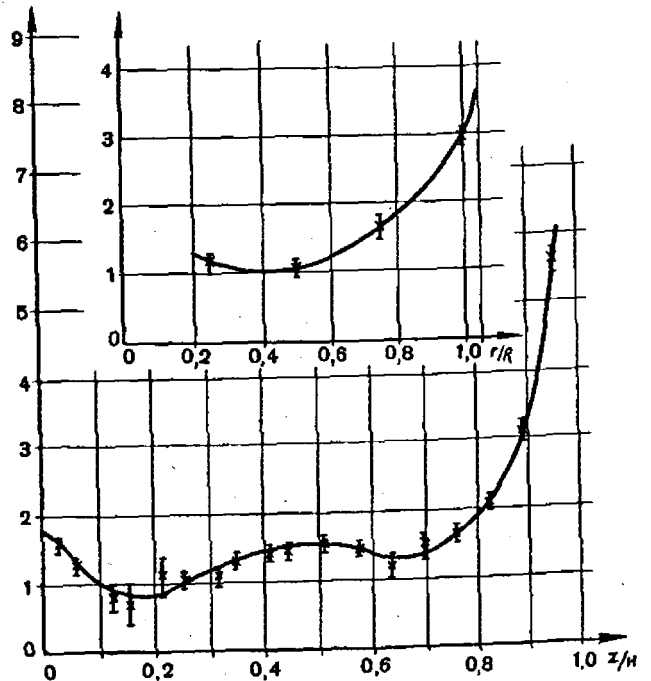


Рис. 8. Относительное распределение тепловыделения по высоте и радиусу активной зоны

реактора и между термоэлементами преобразователя в установке используется высокотемпературная теплоизоляция. В связи с этим была изучена теплопроводность теплоизоляции в различных средах в области рабочих температур.

Одной из важных сторон проведенных исследований явилось изучение работоспособности элементов термоэлектрического преобразователя в потоках нейтронного и α -излучения. Неоднократные многочасовые испытания термоэлементов в петлях реактора РФТ при интегральных потоках тепловых нейтронов $\sim 3 \times 10^{19}$ нейтр/см² позволили сделать вывод, что изменение основных свойств термоэлементов находится в допустимых пределах (рис. 7).

СТЕНДОВЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ НЕЙТРОННО-ФИЗИЧЕСКИХ И ТЕПЛОЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК УСТАНОВКИ

Исследование нейтронно-физических характеристик

Было осуществлено пять сборок с разной концентрацией делящегося материала. На каждой сборке был проведен комплекс исследований, охватывающий широкий круг вопросов: зависимость критических загрузок от состава активной зоны, эффективность отражателей и органов регулирования, распределение тепловыделения в активной зоне, влияние на реактивность конструктивных зазоров и др.

Большое внимание было уделено изучению влияния перемещения нижнего торцового отражателя и профилирования активной зоны на нейтронно-физические характеристики реакторной системы, изучению дифференциальных эффективностей стержней регулирования и полей тепловыделения. Некоторые из полученных результатов даны на рис. 8, где показано распределение тепловыделения по радиусу и высоте активной зоны. Измерение реактивности во всех этих случаях производилось различными методами: по периоду разгона, импульсным и интегральным.

Сравнение результатов измерений реактивности различными методами позволило оценить величину эффективности запаздывающих фото-нейтронов, обусловленных наличием бериллиевого отражателя. Установлено, что в реакторах подобного типа фото-нейтроны практически отсутствуют и для обработки экспериментальных данных могут быть использованы характеристики шести групп запаздывающих нейтронов.

Исследование теплоэнергетических характеристик

Заключительному этапу испытаний реактора-преобразователя на натурном испытательном стенде предшествовали комплексные испытания полноразмерной тепловой модели реактора-преобразователя на стенде с электронагревом.

Целью указанных испытаний явилась проверка работоспособности всей установки в целом и ее отдельных узлов, а также исследование рабочих параметров установки на стационарных и нестационарных режимах.

В процессе испытаний установки постоянно измерялись температурные поля в различных элементах установки. Для этой цели в реакторе и преобразователе были установлены 53 вольфрам-ренийевые термопары и 86 хромель-алюмелевых термопар.

Замер электрических характеристик преобразователя производился с помощью специального электрического пульта, который позволял:

а) для каждой из четырех групп термоэлементов плавно менять нагрузку от 0,1 до 10 ом и производить измерения электродвижущей силы, тока короткого замыкания, рабочего тока и напряжения;

б) производить электрические измерения не только отдельно по группам, но и при последовательном и параллельном соединении групп.

Электрическая мощность преобразователя определялась в режиме максимальной мощности. На номинальном режиме установка испытывалась более 1000 ч.

Анализ результатов ресурсных испытаний установки позволил сделать вывод о хорошей работоспособности всех основных элементов реактора-преобразователя. Установка обладала достаточно стабильными характеристиками в течение всего времени испытаний. Термоэлектродвижущая сила преобразователя практически на протяжении всего ресурса оставалась постоянной. К концу испытаний было замечено некоторое увеличение внутреннего сопротивления преобразователя, в связи с чем электрическая мощность, снимаемая с преобразователя (в режиме максимальной мощности), уменьшилась в среднем на 10%.

Проведенные испытания позволили изучить и показать работоспособность активной зоны, отражателя и преобразователя в рабочих условиях.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/873 URSS

The high-temperature direct conversion reactor « Romashka »By M. D. Millionshchikov *et al.*

The paper describes a high-temperature, experimental nuclear power installation consisting of a nuclear reactor and a convertor, combined to form a single unit.

The main stages in a series of studies carried out during the construction and assembly of the installation and its individual components are described, together with the results obtained.

Data on the characteristics of the installation, derived from neutron physics and energy studies, are also presented, with information about its basic parameters.

A/873 URSS

Le réacteur à conversion directe à haute température Romashkapar M. D. Millionshchikov *et al.*

Les auteurs décrivent une installation nucléaire expérimentale à haute température pour la production d'électricité, composée d'un réacteur nucléaire intégré avec un convertisseur d'énergie.

Ils décrivent les principales étapes et les résultats des études qu'ils ont faites pour mettre au point l'installation et ses différents éléments.

Les auteurs indiquent les caractéristiques de l'installation, établies par des études dans les domaines de la physique neutronique et de l'énergie, ainsi que les paramètres fondamentaux du réacteur convertisseur.

A/873 URSS

El generador nuclear de conversión directa, de alta temperatura, « Romashka »por M. D. Millionshchikov *et al.*

La memoria describe un generador nuclear experimental de alta temperatura compuesto de un reactor nuclear y de un convertidor de energía.

Se exponen las principales etapas y los resultados de las investigaciones realizadas para la construcción de la instalación y de sus elementos.

Se presentan los resultados del estudio de las características de la instalación en la esfera de la física neutrónica y de la energía, así como los parámetros fundamentales del generador nuclear.

Isotopic power sources coupled with thermoelectric converters

By J. G. Morse and D. G. Harvey *

Generation of electrical energy from the decay heat of radioisotopes has provided compact and reliable direct-conversion power sources capable of long-term, unattended operation. Feasibility of this technology was established under the USAEC SNAP (Systems for Nuclear Auxiliary Power) Program, which began in 1956 and led to the fabrication of a number of systems now providing dependable power for satellites in outer space, weather stations on land, and navigation buoys at sea [1].

This paper describes factors affecting the design of these power supplies and the status of technology in terms of performance specifications of systems in being or in design. Areas of technical growth required for broader use of these systems are also indicated.

DESIGN CONSIDERATIONS

A thermoelectric generator, as shown in Fig. 1, consists of a sealed capsule of radioisotope fuel enclosed in a heat accumulator or metal block which provides sufficient surface on which to mount the thermoelectric converter. Thermal insulation is used to direct the heat efficiently from the fuel capsule to the converter with minimum heat leakage. Unconverted heat is rejected to the environment through the outer surface of the generator. The environment to which heat is rejected and the heat transfer technique used depend upon the end-use of the power plant.

HEAT SOURCE

Since the driving thermal energy results from the absorption of radiations emanating from the encapsulated radioisotope, proper selection of the fuel and its containment are basic to the design of the device. Half-life must be compatible with mission objectives; high power density (watts per cubic centimeter) is necessary to minimize size and weight; the type of radiations from the source and its daughters in secular equilibrium will dictate shielding requirements con-

sistent with the foregoing criteria; chemical form of fuel must satisfy safety requirements; cost and availability must also be consistent with the mission needs.

Fuels are obtained by purifying fission products or irradiating suitable target materials. Fissioning of uranium yields several hundred radioisotopes; of these, only four radionuclides are applicable to power generators. These are identified in Table 1. Several predictions of quantities of fission wastes in a growing reactor economy have been made. One such estimate for strontium-90 suggests 10^9 curies or 5 megawatts of thermal power by 1980, indicating large quantities of fuel materials for remote power applications [2].

The second source of fuels provides alpha-emitting radioisotopes which are particularly important for certain missions where little or no radiation or shielding weights can be tolerated. The problems of shielding isotopic power sources for space missions are covered in [3].

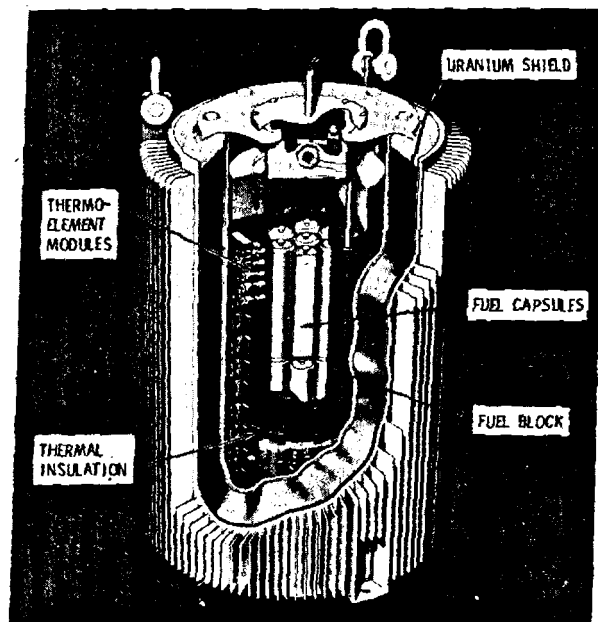


Figure 1. SNAP 7B. A fully shielded terrestrial generator (see Table 3)

* Small Power Systems Department, Martin Company.

Certain alpha-emitters undergo spontaneous fission and also enter into alpha-neutron reactions when combined with elements of low atomic number [3, 4]. They are performed more costly than fission products; and because of this, various fuel forms of strontium-90 are under active development for space missions. This radionuclide has already demonstrated its utility in terrestrial applications.

FUEL ENCAPSULATION

The quantities of fuel required for power generation normally represent a radioisotope inventory of considerable size, and would cause a significant hazard if improperly released to the biosphere. Absolute containment of the fuel, therefore, must be assured until decay has rendered the isotope harmless. Space generators use multiwalled cobalt or nickel-base superalloys in cylindrical geometry with welded end closures. Such capsules, with simulated fuel, have been extensively tested and found to satisfy the stringent containment requirements for aborted missions. Fire and explosion of the vehicle on the launching pad (3 200 °C for microseconds, falling off rapidly to between 900 and 1 600 °C; integrated thermal fluxes produced will not melt the capsule or release fuel); blast overpressures (700 atm will not breach the fuel housing and will not result in release of the fuel); high velocity impact against granite targets at operating temperatures to duplicate the environment of an ascent abort show that the fuel remains contained within the capsule. Testing has also assured containment of fuel when the capsule is subjected to high internal pressures. This was necessary since alpha-emitters such as ²³⁸Pu, ²¹⁰Po, etc., release helium atoms upon decay [5].

Terrestrial systems have relied on Hastelloy-C, a nickel-base alloy, for primary containment. Tests have shown that the rate of sea-water corrosion of this material is less than 2.5×10^{-4} g/y. Suitable wall thicknesses will provide containment in an ocean environment for more than 20 half-lives of ⁹⁰Sr.

ENERGY CONVERSION

The phenomenon of thermoelectricity was described first by Seebeck in 1832, who noticed that a temperature difference imposed across a junction of two dissimilar metals will generate an electrical potential [6]. Intensive investigations to develop suitable semiconductor materials for this end use have yielded Bi₂Te₃, PbSnTe, GeSi, and a few others, each with its attendant advantages and disadvantages. The conversion efficiency is directly related to the Carnot efficiency and to the figure of merit (*Z*), a term that is dependent upon both materials properties and temperature [7].

$$Z = \frac{\alpha^2}{\rho K}$$

where:

Z = Figure of merit (°C)⁻¹

ρ = Electrical resistivity (ohm-centimeters)

α = Seebeck coefficient (volts) (°C)⁻¹

K = Thermal conductivity (watts) (°C)⁻¹ (centimeters)⁻¹

ZT, a dimensionless number, is plotted in Figs. 2 and 3 for these materials in both "N" and "P" doping conditions. For maximum conversion efficiency, materials are selected for highest average values over the temperature range determined by the boundary conditions; namely, heat source and radiator temperatures. Space systems will require higher radiator temperatures than terrestrial systems, to economize on weight and size. Higher power-to-weight ratios are obtained, however, at the expense of efficiency [7].

Figure 4 illustrates the typical characteristics of a thermoelectric generator, all of which are predictable on the basis of simple theory. The generator behaves as a voltage source and, when connected in series with a resistor, yields maximum power at a given point of matched impedance. The power curve for a given generator is obtained by first measuring variation of voltage with current from short to open circuit under conditions of steady-state performance. Peltier cooling will affect the hot-side temperature slightly. This

Table 1. Properties of radioisotopes

Nuclide chemical form	Type of decay	Half- life	Specific activity (thermal)			Availability megacuries/yr ^a		
			W/g	W/cm ³	Curies/W	1964	1970	1980
⁹⁰ SrTiO ₃	β	27.7 yr	0.21	0.7	154	3	25	100
¹³⁷ Cs (glass)	β, γ	27 yr	0.072	0.215	210	1	25	100
¹⁴⁷ Pm ₂ O ₃	β	2.6 yr	0.18	1.0	2 700	0.1	50	150
¹⁴⁴ CeO ₂	β, γ	285 d	2.3	13.8	128	1	200	4 000
²¹⁰ Po (metal)	α, β	138 d	140	1 320	31.6	0.1	3	30
²⁴² Cm ₂ O ₃	α	162 d	120	1 170	27.6	0.06	0.3	—
²⁴⁴ Cm ₂ O ₃	α	18 yr	2.5	22.5	28.6	—	0.2 ^c	—
²³⁸ Pu (metal)	α	90 yr	0.48	9.3	29.0	0.1	0.6	1.5

^a AEC Isotopic Fuels Program, division of Isotopes Development, presentation by W. K. Eister to Chicago Biology and Medicine meeting 30 January 1964.

^b Gamma abundance is 0.013% at 0.8 MeV.

^c Only scheduled production, but quantities could be equivalent to ²³⁸Pu after 1970.

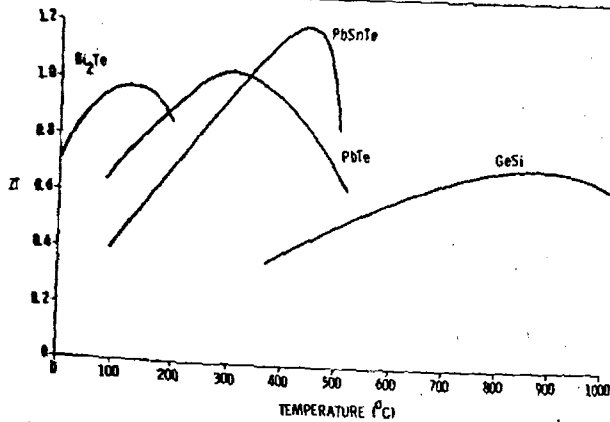


Figure 2. Performance characteristics of "N" materials

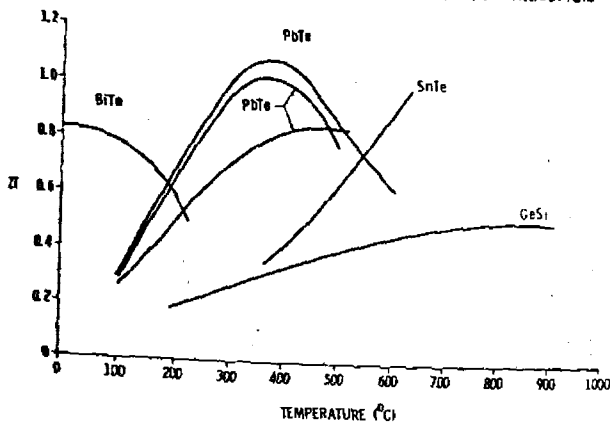


Figure 3. Performance characteristics of "P" materials

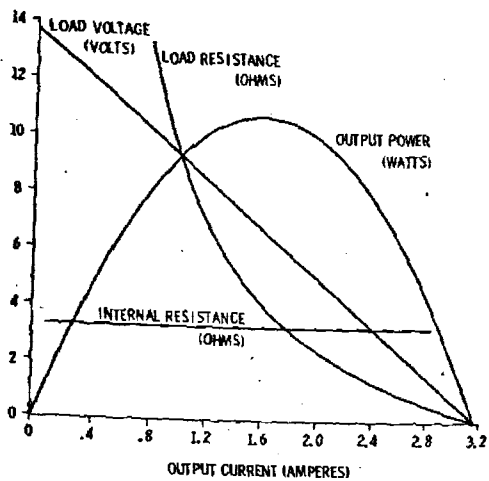


Figure 4. Electrical characteristics of a thermoelectric generator

temperature is at a maximum under conditions of zero current, since none of the heat is converted into electricity; it is lowest at short circuit where maximum electric cooling occurs. The nonlinearity in the $E-I$ curve is due to material property dependence on temperature. The internal resistance curve also reflects this nonlinearity. Open circuit voltage, as well as the short-circuit condition, can be computed from the Seebeck voltage and the temperature range of operation. All other properties can be determined from temperature range and property data.

These characteristics show how the radioisotope thermoelectric generator may be used most effectively. The nature of the power curve indicates that the system is ideal for conditions of constant, continuous power. It will not, however, tolerate significant deviations in load voltage from the maximum power point. In addition, it makes an excellent battery charger, in that its voltage will follow that of the battery and will trickle charge without boiling off the electrolyte. This provides a technique for furnishing power to systems requiring high peak power on a partial duty cycle.

A further characteristic is that it is a high-current, low-voltage device requiring series (or series-parallel) connections within each bank of thermocouple pairs to increase the over-all voltage. To match the electrical characteristics of the power supply to the requirements of the payload, a static, solid-state, dc-to-dc converter is often used. These have operated at efficiencies of up to 92% between 3 and 30 volts. The efficiency is largely dependent on the degree of regulation required.

POWER FLATTENING

Unique with radioisotope power technology is the reduction of thermal input power with time as the fuel decays. With radioisotopes of short half-life, such as ^{210}Po , ^{242}Cm , etc., a controllable thermal bypass is introduced around the thermoelectric elements to maintain a constant hot-side temperature over the mission life. In SNAP 11, a thermal shutter exposed the fuel capsule to space at the beginning of life. Figure 5 shows shutter actuation accomplished by means of a thermal sensing device operating by the expansion of a liquid metal. The SNAP 7 series uses a thermally conductive gas, which may be replaced by a less conductive gas after an interval of several years to raise the hot-side temperature to approximately its initial value. However, with generators fueled with long-lived isotopes such as ^{238}Pu or ^{90}Sr , a small initial overload of inventory and operation below the maximum power point on the curve in Fig. 5 will provide essentially constant power for a 10-year period.

GENERATOR SAFETY

An extensive discussion of generator safety is given in [10]. Although reliance is placed first on fuel containment, generator systems are tested against environmental criteria basic to their end-use. These include thermal and mechanical shock and vibration peculiar to the mission. Terrestrial generators have been fueled with strontium-90 titanate, a chemical compound that has demonstrated extremely low solubility in fresh and sea water [8]; good thermal conductivity; a melting point that is at least a factor of two higher than the centerline temperature of the fuel capsule within the operating generator; and no decomposition

Table 2. Space thermoelectric generator specifications

Generator	Design power (W(e) End-of-life)	Design life (yr)	Fuel	End-of-life output			Radiator surface		Configuration		Operation date	Mission
				Voltage V	Current A	External load Ω	Fins m ²	Housing m ²	Length cm	Diameter cm		
Modified												
SNAP 3	2.7	5	²³⁸ Pu	2.7	1.1	3.0	None	0.055	13.97	12.19	1961	DOD satellite
SNAP 9A	25.0	6	²³⁸ Pu	6.4	4.6	2.0	0.193	0.154	24.13	50.80	1963	DOD satellite
SNAP 11	18.6 ^a /25 ^b	1/4	²⁴¹ Cm	3.0	8.33	0.42	0.093	0.151	27.94	45.72	1965	Surveyor
SNAP 17	25.0	5	⁹⁰ Sr	6.6	3.8	1.75	0.121	0.140	31.75	16.76	1965	Communication satellite
SNAP 19	22.0	3	²³⁸ Pu	4.75	4.65	1.02	0.095	0.094	24.76	13.56	1965	Interplanetary monitoring
Undesignated	6-10	>1	²³⁸ Pu or ⁹⁰ Sr	—	—	—	—	—	—	—	—	Lightweight demonstration device

^a Lunar day. ^b Lunar night.

on melting. These generators are fully shielded, using depleted uranium to attenuate the radiation flux to less than 10 millirads per hour at one meter from centerline.

The design of space generators must reflect the ultimate fate of the nuclear fuel. Under conditions of uncontrolled re-entry from earth orbit, burnup of the fuel to micron-size particles must occur at altitudes greater than 30 480 meters to achieve dispersal in the stratosphere. However, the orbit selected for SNAP 9A reflects a lifetime that is equal to about 10 half-lives of ²³⁸Pu. Extensive laboratory and flight test programs prior to meeting mission requirements have demonstrated the sound technical basis for satisfying this philosophy. Alpha-emitters could conceivably be designed to re-enter intact, recognizing the weight penalty required for the ablator or heat shield materials [9].

Launch trajectories are analysed carefully to determine the region of impact in the much less probable event of partial burnup. Launch azimuths are selected with care to confine these regions to ocean areas of essentially zero population density [10].

OPERATIONAL SYSTEMS

With the launching of the modified SNAP 3 and SNAP 9A systems, illustrated in Fig. 6, the first use of nuclear power in space was achieved. The initial satellite was orbited in June 1961. Although the first units shared the power load with companion solar cells, after less than a year of operation the SNAP system was the only source of power. It continues to provide power at this time. The second, launched in November 1961, failed suddenly six months later. Analyses of telemetry data indicate the failure to be external to the generator. The SNAP 9A systems are providing design power to the load.

Projects IMP (Interplanetary Monitoring Probe), Nimbus, Surveyor, and ComSat (Communications Satellite) will use advanced generator technology to provide higher performance systems. ComSat anticipates using ⁹⁰Sr, which will necessitate further safety development, particularly the ability to handle the fission product at the launching pad with minimum perturbations during the countdown procedures. Data on these systems are listed in Table 2.

Table 3. Terrestrial thermoelectric generator specification

Generator	Design power (W)	Design life (yr)	Nuclide fuel				Length (cm)	Diameter (cm)	Operation date	Mission
			Kind	Quantity (kg)	Weight (lb)					
SNAP 3	2.5	1/4	²¹⁰ Po	2	4	13.97	12.19	1959	Proof-of-principle device	
Undesignated	4.5	2 (min)	⁹⁰ Sr	18	1 680	50.80	45.72	1961	Weather station, Axel Heiberg	
SNAP 7A,	10	10	⁹⁰ Sr	40	1 870	53.34	50.80	1962	Navigation buoy	
7C								1962	Weather station, Antarctica	
SNAP 7B,	60	10	⁹⁰ Sr	225	4 600	87.63	55.88	1963	Fixed light station	
7D								1964	Barge weather station	
SNAP 7E	6.5	10	⁹⁰ Sr	31	8 000 ^b	162.54	80.01	1964	Undersea beacon	
SNAP 15A ^a	0.001	4	²³⁸ Pu	2g	1	12.70	6.35	1965	Control systems	
SNAP 15B ^a	0.001	4	²³⁸ Pu	2g	1	8.92	7.62	1965	Control systems	
SNAP 21 ^a	10	5	⁹⁰ Sr	—	—	—	—	1965	Deep sea generator	

^a Preliminary design.

^b Special pressure vessel for deep ocean mooring.

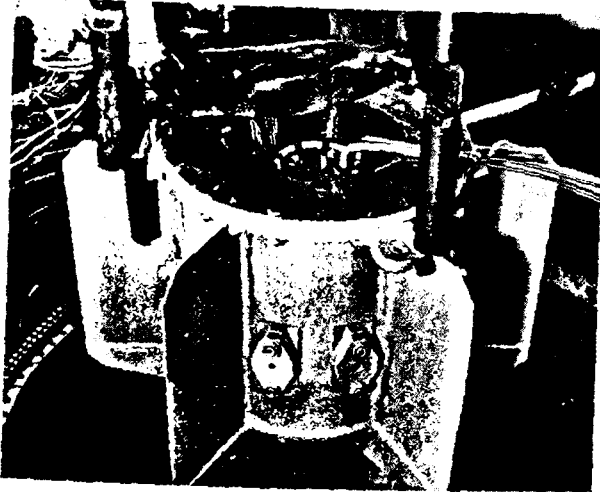


Figure 5. SNAP 11 rest unit, showing thermal shutter

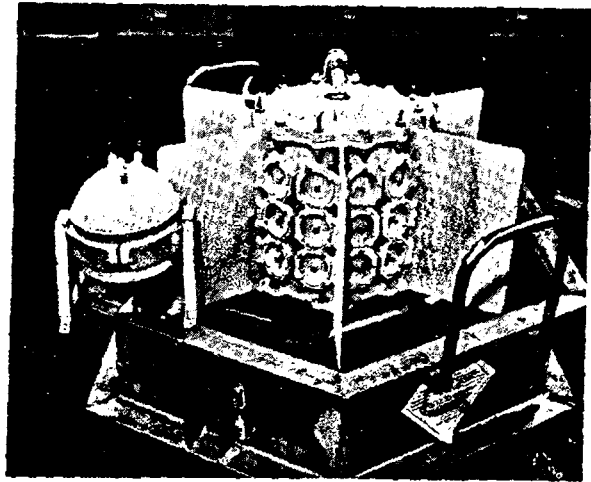


Figure 6. First nuclear power plant in space (modified SNAP 3 on left, SNAP 9A on right)

The first operational terrestrial system to use radioisotope power is seen in Fig. 7. It sensed and transmitted weather data at three-hour intervals in an unattended, remote Arctic weather station for more than two years [11]. After exceeding its design life by several months, a failure in the electronics system required dismantling the station. The generator is awaiting re-installation this summer, with electronics equipment commensurate with the inherent reliability of the generator. The SNAP 7 series, as noted in Table 3, represents improvement in power and design over the earlier device. Modularization of the thermoelectric

elements has contributed markedly to the ease of assembly. Advanced systems will employ internally shielded thermoelement modules and more efficient thermal insulation, yielding lighter and higher performance devices.

Advanced development will focus on improved thermoelectric materials, as well as more effective use of existing materials. The latter relates to Figs. 2 and 3, in which the most effective use of the compositions noted is restricted to a narrow portion of the temperature range. At present, thermoelectric configurations in



Figure 7. Axel Heiberg weather station, artist's concept

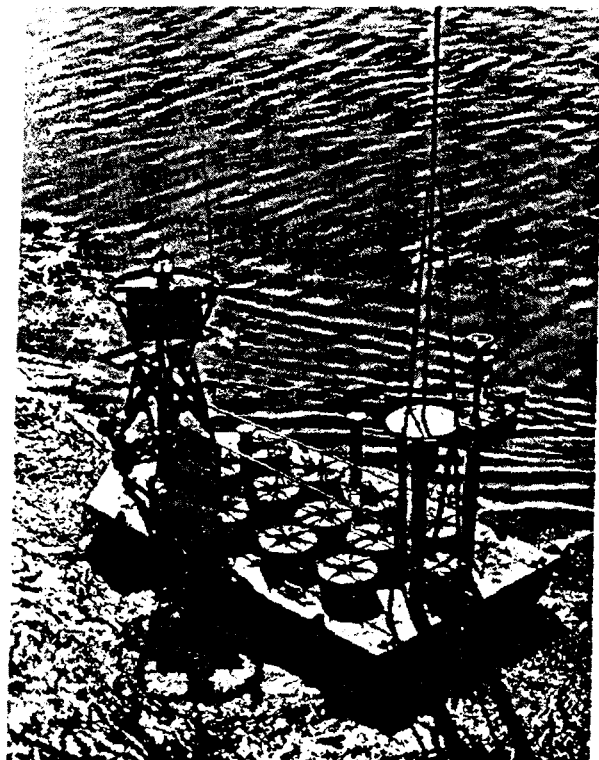


Figure 8. SNAP 7D, powered weather barge in Gulf of Mexico

operational systems are composed of "P" and "N" legs of a single composition. Significant advantages will accrue when elements are constructed as composite materials, operating over a wider temperature range. A temperature profile along the axis of such an element would indicate the transition of one material to another, corresponding to the intersections of their ZT curves. The highest average ZT for each material would be obtained, thus maximizing the potential efficiency. Although values of about 20% are theoretically possible, practical considerations, such as heat sink, source temperature, and thermal leakage for a given application will tend to reduce this value. Other such factors as material interface problems, compatibility, etc., will likewise impose limitations; but the approach is nonetheless worthy of intensive investigation.

Further considerations for technological improvement will include efficient high temperature thermal insulation, heat source, cladding, and encapsulation materials, all of which will provide a basis for the designing of truly advanced generators.

CONCLUSIONS

The advantages of isotope power sources are many. They are compact, light in weight, without moving parts, and reliable for a long term. In space, these systems are completely independent of the sun, eliminating the need for reliance on vehicle placement, orientation, and complex solar acquisition mechanisms. They are insensitive to radiation belts, and they obviate the need for energy storage in batteries. They lend themselves to long-lived satellites and to lunar and planetary probes exploring environments and surfaces where reliability is a major consideration. Their useful power range extends to the low kilowatt region, offering a power capability to satisfy a number of manned mission requirements.

Terrestrial systems have demonstrated continuous, reliable performance which recommends their use in barren, inaccessible places for unattended applications. These have already included automatic weather in polar regions and at sea, navigation aids, and ocean-bottom signal devices. A barge weather station, using SNAP 7D, is seen in Fig. 8. These applications will soon encompass networks of remote weather stations providing data to computation centers, radio-navigation aids for aircraft, telephone repeater power supplies, and precise, undersea markers for shipping and transportation.

The growth in usage of radioisotope power systems has developed with caution and responsibility, with respect for the inherently hazardous nature of the materials themselves. Each mission was adjudged to be safe only after extensive testing peculiar to the mission profile; this effort will continue for each operational system.

Although the cost of fuel materials is the dominant factor in the cost of the power supply, it is more often a smaller factor in the over-all mission cost, particularly in space, where long-term reliability and low weight must be considered along with other ways of providing power. Terrestrial radioisotope units reduce considerably the logistics of resupply and will be truly competitive when (a) the equipment requiring power has both life and reliability compatible with those of the power source, and (b) fission products become available in massive quantities from the now planned USAEC production facility [1].

Radioisotope fueled thermoelectric generators have already shown, and continue to demonstrate, their utility and practicability to provide reliable, long-term power for missions involving all regions of earth and outer space.

REFERENCES

1. Stewart, D. H., Anderson, G. M., Jordy, G. Y., and Weiner, M., *An Evaluation of Systems for Nuclear Auxiliary Power*, USAEC Report TID-20079 (1964).
2. Belter, W. G., *Intern. Sci. Technol.*, 12, 42 (1962).
3. Nichols, J. P., and Arnold, E. D., *Shielding Isotopic Power Sources for Space Missions*, *Nucleonics*, 22 (2), 52 (1964).
4. Seaborg, G. T., *The Transuranium Elements*, *Nucl. Sci. Eng.*, 9 (4), 475 (1961).
5. Morse, J. G., *Radionuclide Power Sources*, *J. Brit. Interplanet. Soc.*, 19 (3), 87 (1962).
6. Joffe, A. F., *Semiconductor Thermoelements and Thermoelectric Cooling*, Infosearch, Ltd. (1957).
7. Psarouthakis, J. and Streb, A. J., *Radioisotope Space Power*, XIV International Astronautic Congress, Paris, September 1963.
8. Bloom, J. L., and Riggs, C. O., *Significance of Solubility Data in Determining Rates of Solution and Diffusion of Strontium-90 in the Form of Strontium Titanate*, *Health Physics Soc. Annual Meeting*, Chicago, June 1962.
9. Schulman, F., *Generator Performance and Mission Prospect*, *Nucleonics*, 21 (9), 54-58 (1963).
10. Harvey, D. G., Dick, P. J., and Fink, C. R., *Isotope Generator Reliability and Safety*, *Nucleonics*, 21 (4), 56 (1963).
11. Morse, J. G., *Energy for Remote Areas*, *Science*, 139 (3560), 1175-1180 (1963).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/217 Etats-Unis d'Amérique

Sources d'énergie isotopiques couplées
à des convertisseurs thermoélectriques

par J. G. Morse et D. G. Harvey

Des générateurs thermoélectriques alimentés par des radioéléments fournissent maintenant sans aléas de l'énergie électrique à des engins spatiaux ou à des systèmes terrestres isolés. Cette technologie, mise au point dans le cadre du programme SNAP (Sources d'électricité auxiliaires nucléaires), s'est révélée utilisable en 1959. La première application pratique a eu lieu en 1961, quand on a choisi cette technique pour fournir de l'énergie à un satellite et à une station météorologique automatique située à 1 100 kilomètres du pôle Nord. Chaque système a maintenant à son actif plus de deux ans de fonctionnement continu sans incident.

Dans ces systèmes on obtient l'énergie par absorption de l'énergie de décroissance du radioélément choisi et de la chaleur provenant de la dégradation de cette énergie. L'énergie thermique est ensuite transmise à une machine thermique, par exemple un convertisseur thermoélectrique, qui produit de l'électricité. La chaleur non transformée est éliminée du système générateur par un moyen adapté à l'utilisation du système, par exemple par rayonnement dans l'espace et par conduction et convection dans les applications terrestres. Cette technologie, bien utilisée, donne une source d'énergie électrique extrêmement compacte, sûre et légère, d'une durée de vie de dix ans ou plus et dans un domaine de puissances allant de moins de 1 W à quelques kilowatts. Pour les systèmes spatiaux on a déjà obtenu des rapports puissance-poids de plus de 1 W par livre (454 g) avec la possibilité de doubler ce chiffre au cours des prochaines années.

L'étude du générateur d'énergie exige que l'on envisage son mode d'utilisation (spatial ou terrestre) et sa durée de vie, les conditions de sûreté, le choix du combustible (émetteurs alpha ou bêta-gamma), les matériaux thermoélectriques, l'isolement, la protection radioactive, les mécanismes d'élimination de la chaleur et le conditionnement de l'énergie.

Les combustibles isotopiques utilisables ont deux sources: les produits de fission séparés et purifiés et l'irradiation neutronique de cibles (par exemple curium 242 préparé par irradiation d'américium 241). Les critères du choix sont la demi-vie, la puissance spécifique (watts thermiques par centimètre cube), la forme physique et chimique, le coût et la disponibilité. Les quantités d'isotopes nécessaires à la production d'électricité pourraient présenter un danger non négligeable si elles étaient dispersées accidentellement dans la biosphère. La sûreté est donc un facteur essentiel pour décider de l'utilisation de cette technique, et il faut s'assurer pour chaque application que l'emploi de la source d'énergie n'aura pas d'effets nuisibles pour l'homme. Enfin, une caractéristique fondamentale du convertisseur thermoélectrique est qu'il constitue un système à haute intensité et basse tension, nécessitant le montage en série des éléments thermoélectriques pour augmenter la tension aux bornes. Il faut conditionner l'énergie pour adapter la puissance fournie par le générateur à la demande. Des appareils de conditionnement statiques, à éléments à l'état solide, ont été construits et fonctionnent avec des rendements atteignant 85% entre 3 et 30 V. Les combustibles isotopiques sont ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{238}Pu , ^{242}Cm , ^{210}Po et ^{244}Cm .

Plusieurs de ces générateurs sont à des stades variés de mise au point aux Etats-Unis. On peut mentionner les Transit 4-A et -B (2,7 W, ^{238}Pu), SNAP 9A (25 W, ^{238}Pu), SNAP 11 (25 W, ^{242}Cm), SNAP 13 (12 W, ^{232}Cm), un générateur pour station météorologique (4,5 W, ^{90}Sr), le SNAP 7A et C (10 W, ^{90}Sr), SNAP 7E (6,5 W, ^{90}Sr) et SNAP 7B et D (60 W, ^{90}Sr). On décrit les résultats obtenus avec quelques-uns de ces générateurs actuellement en service, notamment le niveau de puissance, le rendement, les durées de vie, la fiabilité et la sûreté. On décrit les perfectionnements escomptés dans la technologie et les utilisations spéciales de ces appareils.

A/217 США

Изотопные источники энергии с термоэлектрическими преобразователями

Дж. Г. Морзе, Д. Г. Харвей

Термоэлектрические генераторы с радиоизотопными источниками энергии в настоящее время успешно снабжают энергией как космические системы, так и установки, расположенные в труднодоступных районах земли. Этот метод, разработанный под руководством КАЭ США в рамках программы SNAP (Systems for Auxiliary Nuclear Power), то есть программы по разработке вспомогательных ядерно-энергетических установок, был впервые научно обоснован в 1959 году. Практическое использование этого метода было начато в 1961 году, когда изотопные генераторы были установлены

на искусственном спутнике земли и метеорологической станции, расположенной в 1120 км от Северного Полюса и работающей без обслуживающего персонала. Уже больше двух лет обе эти установки успешно работают, непрерывно генерируя электрический ток.

Тепловая энергия в таких установках получается в результате поглощения энергии распада радиоактивных изотопов. Это тепло затем в тепловой машине — в данном случае в термоэлектрическом преобразователе — преобразуется в электричество. Неиспользованное в генераторе тепло отводится из системы наиболее подходящим для данного применения способом, например излучением в условиях космоса или же проводимостью и конвекцией в земных условиях. При соответствующей комбинации такая система может дать очень компактный, легкий и надежный источник электроэнергии, способный работать свыше десяти лет и давать мощность от 1 вт до нескольких киловатт. Изотопные генераторы космического назначения уже достигли отношения мощности к весу более 2 вт/кг, и предполагается, что в течение ближайших лет это соотношение будет удвоено.

При проектировании подобной энергетической системы необходимо учитывать целый ряд соображений, например назначение установки (космическое или земное), требуемый срок службы, безопасность, выбор топлива (α - β - или γ -излучатели), выбор термоэлектрических материалов, способов изоляции, экранировки, механизмов отвода тепла и энергетические параметры.

Подходящие радиоизотопные источники изготавливаются двумя способами: либо из разделенных продуктов деления, либо путем облучения мишеней нейтронами (например, Cm^{242} получается облучением Am^{241}). Критериями для выбора изотопного источника являются: период полураспада, удельная тепловая мощность (вт/см³), физическая и химическая форма материала, а также его стоимость и доступность. Радиоактивные изотопы в тех количествах, которые нужны для практического производства энергии, могут представлять большую опасность в случае их неправильного сброса в биосферу. Безопасность является самым важным фактором в использовании таких систем, поэтому нужно иметь полную уверенность, что избранный источник энергии не будет представлять опасности для человека. Важной характеристикой термоэлектрических преобразователей является то, что они представляют собой высоковольтную и низковольтную систему. Для повышения общего напряжения преобразователя термоэлементы должны соединяться последовательно. Для согласования мощности генератора с нагрузкой требуется специальный регулятор. В качестве таковых употребляются полупроводники с фиксированными параметрами, которые дают коэффициент полезного действия до 85% в интервале напряжения от 3 до 30 в. Обычно используются следующие радиоактив-

ные изотопы Sr^{90} , Cs^{137} , Ce^{144} , Pu^{238} , Cm^{242} , Po^{210} , Cm^{244} .

В настоящее время в США несколько таких установок находятся на разных стадиях разработки. Среди них следующие Transit 4-A и B (2,7 вт, Pu^{238}), SNAP-9A (25 вт, Pu^{238} , SNAP-11 (25 вт, Cm^{242}), SNAP-13 (12 вт, Cm^{242}), Метеорологическая станция (4,5 вт, Sr^{90}), SNAP-7A, C (10 вт, Sr^{90}), SNAP-7E (6,5 вт, Sr^{90}), SNAP-7B, D (60 вт, Sr^{90}). В докладе описываются эксплуатационные характеристики некоторых из этих установок, в частности рабочая мощность, коэффициент полезного действия, срок службы, надежность и безопасность.

Описаны также планируемые усовершенствования технологии и уникальные применения этих установок.

A/217 Estados Unidos de América

Fuentes isotópicas de energía acopladas a convertidores termoeléctricos

por J. G. Morse y D. G. Harvey

Los generadores termoeléctricos alimentados con radionúclidos se emplean ya como fuentes de energía en los vuelos espaciales y en sistemas terrestres situados en zonas remotas. En 1959 se demostró que esta tecnología era posible y se ha desarrollado gracias al programa SNAP (Systems for Nuclear Auxiliary Power) de la Comisión de Energía Atómica de los Estados Unidos. En 1961 comenzaron a funcionar los primeros dispositivos para suministrar energía a un satélite y a una estación meteorológica situada a 700 millas del Polo Norte; ambos sistemas funcionan desde hace más de dos años sin haber sufrido avería.

La electricidad se obtiene por absorción de la energía de desintegración del radioisótopo elegido, su transformación en calor y el empleo de éste en un convertidor termoeléctrico. El calor no convertido se elimina de manera adecuada al uso que se haga del dispositivo, por ejemplo, por radiación en el espacio y por conducción y convección en las instalaciones terrestres. Empleados debidamente, estos dispositivos constituyen una fuente de energía sumamente compacta, ligera y segura, capaz de operar durante 10 o más años a potencias desde menos de 1 W hasta algunos kilovatios. En los sistemas utilizados en los vuelos espaciales se han logrado ya relaciones de potencia a peso superiores a 1 W/lb y parece posible duplicar esta cifra en los próximos años.

Al proyectarlos se ha de tener en cuenta dónde se van a aplicar (en el espacio o en tierra), su duración, el análisis de su seguridad, el tipo de combustible (emisores alfa o beta-gamma), los materiales termoeléctricos de aislamiento y blindaje y los mecanismos

de eliminación de calor y de transformación de potencia.

Los radionúclidos empleados proceden bien sea de productos de fisión separados y purificados o de la irradiación neutrónica de materiales blanco (por ejemplo, curio-242 procedente de la irradiación de americio-241) y para su selección se debe considerar el período, la densidad de potencia (vatios térmicos por centímetro cúbico), la forma física y química, el coste y la disponibilidad. Las cantidades de radioisótopo que se requieren constituirían un peligro bastante grave si se liberasen incontroladamente en la biosfera, por tanto, uno de los primeros factores para establecer la viabilidad de esta tecnología es la seguridad completa en cada caso de que su empleo no ocasionará peligros para el hombre. Finalmente, una característica fundamental de un convertidor termoeléctrico es que constituye un sistema de elevada intensidad y baja tensión que requiere la conexión en serie de elementos termoeléctricos para aumentar

la tensión; se precisa, pues, un acondicionador para que la producción del generador sea adecuada a la demanda de carga. Se han construido acondicionadores estáticos de estado sólido que funcionan entre 3 y 30 V con rendimientos de hasta el 85%. Entre los radionúclidos que se emplean como combustibles se cuentan el ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{238}Pu , ^{242}Cm , ^{210}Po y ^{244}Cm .

En los Estados Unidos existen hoy varias de estas fuentes de energía en diversas fases de desarrollo, entre ellas, Transit 4-A y -B (2,7 W, ^{238}Pu), SNAP 9A (25 W, ^{238}Pu), SNAP 11 (25 W, ^{242}Cm), SNAP 13 (12 W, ^{242}Cm), Estación meteorológica (4,5 W, ^{90}Sr), SNAP 7A ; C (10 W, ^{90}Sr) ; SNAP 7E (6,5 W, ^{90}Sr) y SNAP 7B,D (60 W, ^{90}Sr). La memoria describe el funcionamiento de algunas de ellas, y en especial la energía producida, rendimiento, duración, la seguridad de operación y la eliminación de todo riesgo. Describe también las mejoras que se espera lograr en la tecnología y en las aplicaciones de estos dispositivos.

Reactor direct-conversion units

By H. M. Dieckamp, R. Balent and J. R. Wetch*

The significant and peaceful utilization of space will demand large quantities of reliable and long-lived power. The first six years of the space age have seen an ever-increasing number of satellites and space vehicles of growing complexity and sophistication. All spacecraft require electrical power for instrumentation, electronic data handling, guidance and communication. To date, the electrical power has been supplied by batteries, solar cells and radioisotope systems. The power level has been of the order of a few watts up to a few hundred watts. To solve the power requirements of more advanced missions, the United States Atomic Energy Commission initiated the SNAP (Systems for Nuclear Auxiliary Power) program to develop compact, high-powered and long-lived electric power units for utilization in space through the application of nuclear heat sources. The current SNAP development program encompasses both isotopic and fission heat sources. The fission or reactor-powered units employ both direct and dynamic power conversion and cover the subkilowatt to megawatt range of electrical power. The first space demonstration of a reactor powered unit is scheduled for 1965 with the developmental flight testing of SNAP 10A which is a 500-watt unit employing thermoelectric power conversion.

The difficulty of supplying power for the needs of space technology and the unique energy density advantage of nuclear fission were recognized in the early 1950s. Atomics International, a Division of North American Aviation, Incorporated, conducted studies on the relative merits of radioisotope and fission heat sources in 1953. It was immediately recognized that significant power, greater than a few hundred watts, in space would require a reactor heat source. System conceptual design studies identified the mutually dependent reactor heat source and power conversion requirements and concept selection criteria. By 1955 these studies had resulted in the identification of a reactor and power conversion concept for the 0.5 to 10 kW(e) power range. Uranium-235 fueled and zirconium hydride moderated reactor with liquid metal coolant was chosen on the basis of minimum

reactor weight, applicable operating temperature, and a reasonable extrapolation of reactor and materials state of the art. A mercury rankine cycle power conversion subsystem was selected on the basis of minimum radiative heat rejection area requirement within the temperature constraint implied by reactor heat source development cost and schedule.

These studies formed the basis for the establishment of the SNAP program by the Atomic Energy Commission in May 1956. Specific objectives for a reactor-powered 3 kW(e) mercury rankine system, SNAP 2, were established in 1957 and system development was initiated. Reactor concept verification by means of a critical assembly was achieved concurrent with the start of the space age in October 1957. The development of a mercury rankine cycle system capability for large amounts of power in space is a continuing objective of the SNAP program.

Interest in thermoelectric power conversion for space systems was initiated in 1958. The specific objectives of the SNAP 10A 500-watt system were established in December 1960. Since this system has now progressed through the complete development cycle from concept identification to flight readiness, it has been chosen as the principal subject matter for this paper.

SNAP 10A

The specific objective of the SNAP 10A program is to provide a 500-watt reactor power source for space application. The power unit weight including a shadow shield for the protection of a semiconductor payload is 950 pounds. The unit employs direct thermoelectric conversion of heat to electricity. The reactor heat source is controlled by the inherent negative coefficients of reactivity. As a result SNAP 10A requires no dynamic control or moving parts after start-up in orbit. The system lifetime in space is specified as one year.

Reactor

The reactor heat source for SNAP 10A is actually a temperature and power-derated version of the reactor concept chosen for SNAP 2. The basic criteria for and the requirements of a heat source for a reactor thermo-

* Atomics International.

electric power system for space confirm the applicability of that concept. The extreme cost of delivering equipment into space, about \$1 000/lb, provides a strong incentive for minimum weight. In addition to minimum heat source weight, the reactor concept selection must be compatible with a total system of minimum weight. The radiative heat rejection requirement of a space power conversion system contributes a rapidly decreasing element of the system weight as source temperature increases. Thus, the reactor concept selection must provide the lightest weight and highest temperature heat source within the constraint of attainable reactor and power conversion technology.

Early in the reactor concept selection, fast reactors were eliminated because of the extreme cost of the uranium inventory, about \$1 million, and because of the more complex control problems of fast reactors. Furthermore, the use of a fast reactor employing a compound of uranium (UO_2 or UC) applicable to the required temperature would offer no weight advantage over the current SNAP hydride reactor.

The homogeneous reactor provides the most efficient utilization of the fuel and thus the smallest thermal reactor. Similarly, maximum enrichment of a uranium reactor leads to minimum size. The critical size of a small reactor is dominated by leakage considerations wherein the moderator slowing down distance is the controlling parameter. It is apparent that a high temperature, high density hydrogenous material could provide the basis for a small reactor. Zirconium hydride, ZrH_x , has sufficient thermodynamic stability to provide hydrogen at the density contained in cold water at 1 200 °F (652 °C) with a dissociation pressure of less than one atmosphere. Thus, a homogeneous reactor of fully enriched ^{235}U and ZrH_x can result in a reactor with dimensions similar to those of the aqueous homogeneous reactor. Since the density of the U- ZrH_x fuel moderator material is about 6, a bare reactor will weigh about 200 pounds (90 kg). To utilize the metal hydride concept a positive means to restrain the thermal dissociation of the zirconium hydride is required. This is accomplished in the SNAP reactor by canning individual fuel moderator elements in a cladding which incorporates a hydrogen diffusion barrier.

The SNAP hydride reactor fuel moderator material contains 10 wt % ^{235}U in zirconium metal which has been hydrided to a hydrogen density of 6 to 6.5×10^{22} atoms/cm². The resulting core material has a hydrogen to uranium ratio (H/U) of about 50 which results in a mean fission energy of about 0.2 eV.

The weight of a small bare reactor can be reduced by replacing the outer region by a material of lower density but high neutron reflectivity. In the case of the SNAP reactor the weight is minimum at a beryllium metal thickness of about 2 to 3 inches. The addition of a reflector region reduces the minimum weight

reactor's critical mass to about 4 kg of ^{235}U . The reflector region allows two significant practical results: (a) the reactor can be rendered far subcritical by removing the reflector region without modifying the core geometry or integrity; (b) the reactor can be controlled by varying the reflector thickness or effectiveness.

Finally, the reactor must employ a high temperature, low pressure, and low neutron cross-section coolant for the required source temperature range. The alkali metals meet these requirements. The eutectic NaK-78 is specifically chosen because of its wide liquid range. Thus the reactor concept chosen for SNAP 10A to provide the lightest weight high temperature reactor for the thermoelectric power conversion system is homogeneous, ^{235}U fueled, zirconium-hydride moderated, beryllium reflected, reflector controlled and liquid-metal cooled.

After verification of the reactor physics with the correlation of analysis and experimental results from a critical assembly in October 1957, the next major program objective was the power, temperature and life demonstration of the reactor concept. The final feasibility of the concept rested on demonstrating the required hydrogen retention ability of the fuel cladding under the reactor conditions of power, temperature and radiation. The SNAP Experimental Reactor, SER, began operation in September 1959 and was operated until the conclusion of the test program in November 1960. During the test program the SER produced an integral energy output of 225 000 kWh(th). Of the 6 035 total test hours, 3 300 were at temperatures in excess of 900 °F (482 °C) and 1 900 hours were at 1 200 °F (652 °C) coolant outlet.

The next step in the SNAP reactor development was the fabrication and testing of a second generation design which more nearly approximated the detailed requirements of a space reactor. This reactor, the SNAP Development Reactor, SDR, began operation in April 1961 and the test program was completed in December 1962. Of the total 11 300 test hours, 6 900 were at temperatures in excess of 900 °F (482 °C) and 2 100 hours were at 1 200 °F (652 °C) coolant outlet.

In addition to forming the basis for the reactor heat source for SNAP 10A, the SER and SDR provided the necessary fuel, physics and reactor operating experience to design the high power and high temperature reactor for SNAP 8 which is a joint AEC-NASA program to develop a 35 to 55 kW(e) space power system using mercury rankine cycle power conversion. The SNAP 8 Experimental Reactor (S8ER) is now operating at design conditions. From 3 April 1964, the S8ER has operated for 48 days at 450 kW(th) and 1 300 °F (704 °C) and has produced an integral power output of over 1 000 000 kWh(th). This reactor also constitutes an available heat source for large thermoelectric power systems in the 10 to

Table 1. SNAP hydride reactors

	SER	S2DR	S8ER	SNAP 10A design
<i>Fuel-moderator elements</i>				
Diameter (cm — in)	2.54 — 1.0	3.18 — 1.25	1.42 — 0.56	3.18 — 1.25
Length (cm — in)	35.6 — 14.0	33.0 — 13.0	36.8 — 14.5	33.0 — 13.0
N_H (H atom/cm ² × 10 ⁻²¹)	6.0	6.5	6.0	6.5
Wt %U fully enriched ²³⁵ U	7	10	10	10
No. of elements	61	37	211	37
Total ²³⁵ U (kg)	2.9	4.3	6.56	4.3
Cladding thickness (mm — in)	0.25 — 0.010	0.33 — 0.013	0.25 — 0.010	0.38 — 0.015
<i>Reactor</i>				
Core vessel diameter (cm — in)	24.1 — 9.5	22.8 — 9.0	24.8 — 9.75	22.7 — 8.94
height-nominal (cm — in)	40.6 — 16	40.6 — 16	53.4 — 21	39.6 — 15.6
Be reflector thickness-nominal (cm — in)	7.6 — 3	5.8 — 2.3	7.6 — 3	5.1 — 2
No. of control drums-safety elements	3-3	2-2	6	4
Core volume (m ³ — ft ³)	0.74 × 10 ⁻² — 0.26	0.68 × 10 ⁻² — 0.24	1.59 × 10 ⁻² — 0.54	0.85 × 10 ⁻² — 0.3
Weight with refl. control assembly (kg — lb)	159 — 350	137 — 300	250 — 550	114 — 250
Fuel element spacing-triangular matrix (cm — in)	2.58 — 1.015	3.20 — 1.26	1.45 — 0.57	3.20 — 1.26
<i>Operating characteristics</i>				
Coolant flow (l s ⁻¹ — gpm)	1.7 — 23	1.7 — 23	8.8 — 140	0.83 — 13.1
Inlet temperature (°C — °F)	538 — 1 000	538 — 1 000	593 — 1 100	482 — 900
Outlet temperature (°C — °F)	649 — 1 200	649 — 1 200	704 — 1 300	543 — 1 010
Maximum fuel temperature (°C — °F)	702 — 1 295	693 — 1 280	788 — 1 450	585 — 1 085
Power [kW(th)]	50	50	600	34
Power density-avg [MW(th)l ⁻¹ — MW(th)ft ⁻³]	0.00675 — 0.192	0.00735 — 0.206	0.0378 — 1.11	0.0040 — 0.113
Heat flux-avg (kcal m ⁻² h ⁻¹ — Btu ft ⁻² h ⁻¹)	35 000 — 12 800	48 000 — 17 600	150 000 — 55 000	28 000 — 10 200
Neutron flux-avg (n/cm ² s)	3.1 × 10 ¹¹	3.2 × 10 ¹¹	2.3 × 10 ¹²	1.7 × 10 ¹¹

20 kW(e) power range. The basic design conditions of the three test reactors of the SNAP hydride concept are shown in Table 1 along with the design parameters of the SNAP 10A reactor.

The specific reactor for SNAP 10A is illustrated in Fig. 1 (a-d). The core consists of 37 cylindrical 1.25 in (3.18 cm) diameter fuel moderator elements (see Fig. 1a) on a close-packed triangular matrix contained within a 9 in (22.7 cm) diameter core vessel (see Fig. 1b). The NaK coolant flows axially through the core in the interstitial region between fuel elements. The region between the resulting hexagonal parallelepiped and the cylindrical core vessel is filled by beryllium metal. The bulk of the radial reflector is located outside of the core vessel. The reactor control elements are four half-cylindrical sections of the radial reflector region. Rotation of these sections changes their proximity to the core and provides reactor control by neutron leakage variation. The complete radial reflector control subassembly is split into two integral sections and is completely removable from the core vessel without modifying the integrity of the sealed NaK coolant system (see Fig. 1c). These sections are held in place by a retention band which can be severed by command or by re-entry heating. Stored energy in springs ejects the reflector halves when the band is released.

During startup, release of the control elements by

means of an explosive pin puller by ground radio command allows the elements to move inward to add reactivity. Two elements are driven in rapidly by spring energy. The remaining two elements are driven in slowly by electrical stepper motors. Reactor power responds to provide the system temperature increase necessary to offset the slow ramp reactivity insertion by means of the reactor temperature coefficient of reactivity. The reactivity insertion is stopped when design temperature is achieved.

The thermomechanical performance of the SNAP 10A flight reactor hardware under simulated conditions of checkout, launch and orbital operation has been verified by means of a Development Reactor Mockup, DRM. This assembly (see Fig. 1d) was successfully tested for 90 days of continuous operation with electrical heat at the SNAP 10A temperature conditions in a vacuum of 10⁻⁶ torr.

Power conversion

The direct conversion of heat to electricity was discovered by Thomas Seebeck in 1822. For over 100 years the approach was considered to be of no practical significance because of the low efficiency of known materials. The efficiency of a thermoelectric power conversion device is a function of the material's

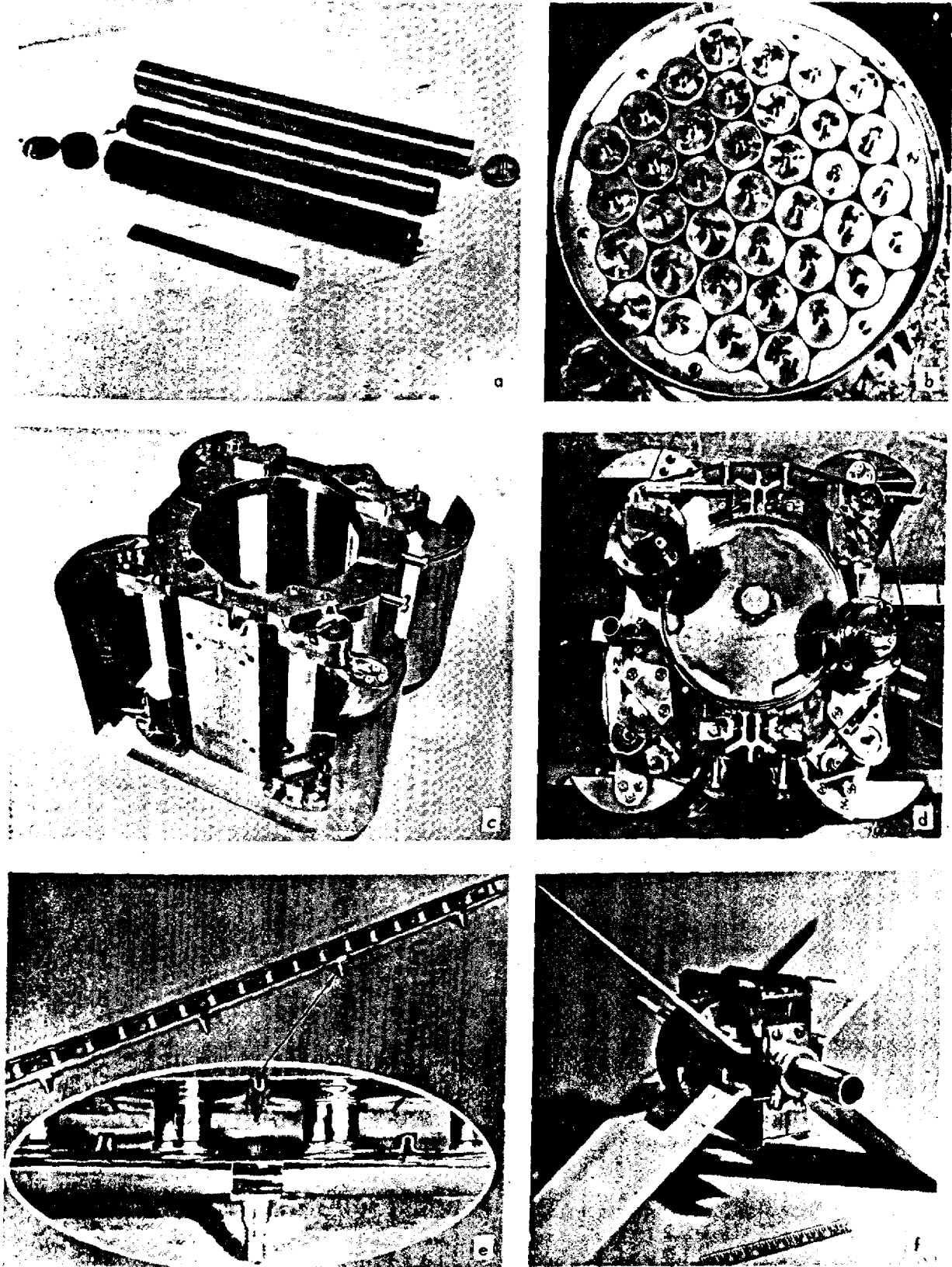


Figure 1. SNAP 10A components

(a) Fuel element; (b) Core; (c) Reflector; (d) Reactor, top view; (e) Thermoelectric converter module; (f) Thermoelectric pump

figure of merit, Z , which is defined as $s^2/\rho K$ where s is the Seebeck coefficient in $V/^\circ C$, ρ is the electrical resistivity in ohm cm, and K is the thermal conductivity in $W/cm^\circ C$. The development of semiconductor materials in the late 1950s resulted in the identification of a number of intermetallic compounds and alloys of low thermal conductivity that could be doped to provide a carrier concentration leading to a maximum Z . For a semiconductor material with a Z of $2 \times 10^{-3} ^\circ C^{-1}$, the ideal efficiency is about 10% at a temperature difference of $200^\circ C$. This is still a low efficiency. However, the large energy content of a reactor minimizes the significance of this inefficiency, and the disadvantage is further offset by the inherent reliability of direct conversion with no moving parts. In practical large space power units, the high heat rejection temperature required for minimum radiator area and weight will result in converter net efficiencies of 2 to 3%.

Of practical importance are the identification of a converter design capable of capturing a maximum fraction of the available theoretical materials efficiency and the degree to which the physical and metallurgical properties of a given thermoelectric material control the design. The design of a practical thermoelectric converter must provide the following: (a) the individual thermocouples must be electrically isolated to allow a series connection to provide a useful output voltage; (b) the transfer of heat from source to radiator must have minimum thermal impedance in series with the thermoelectric material because any loss of available temperature difference directly diminishes the converter efficiency; (c) the electrical impedance of all interconnections and contact junctions in series with the thermoelectric material must be minimal because all extraneous electrical losses directly diminish the converter efficiency; and (d) all shunt heat transfer from source to radiator must be minimal.

The physical and metallurgical properties of the thermoelectric material can greatly influence the converter design and efficiency. For example: (a) the extraneous converter resistance is strongly influenced by the ability to make metallurgically stable minimum resistance electrical contacts to the thermoelectric material; (b) any requirement for a coating or barrier on the thermoelectric material to suppress sublimation provides a shunt heat path; (c) the physical strength of the thermoelectric material can determine structural or thermal stress limitations.

The SNAP 10A converter has to operate for one year in space at about $1000^\circ F$ ($558^\circ C$) with an efficiency degradation of less than 10% and must survive, without loss of electrical integrity, the rocket launch into space which imposes 10 g acceleration, 50 g shock, and 5 g vibration in the range of a few to several thousand cycles per second.

In the case of the SNAP 10A converter, the contend-

ing thermoelectric materials were PbTe and SiGe alloy. In the final selection, SiGe alloy was chosen despite its lower figure of merit because: (a) SiGe is stable to above $1800^\circ F$ ($980^\circ C$) whereas PbTe sublimates at temperatures above $800^\circ F$ ($426^\circ C$) and would require an encapsulant; also the potential of high temperature operation of SiGe provides future performance growth; (b) stable low resistance electrical contacts can be made to SiGe by metallurgical bonding, whereas experience with PbTe indicates unstable higher resistance mechanical contacting only; (c) the mechanical properties of SiGe alloy are more uniform and less restrictive. The specific SNAP 10A converter design is illustrated in Fig. 1e and Fig. 2.

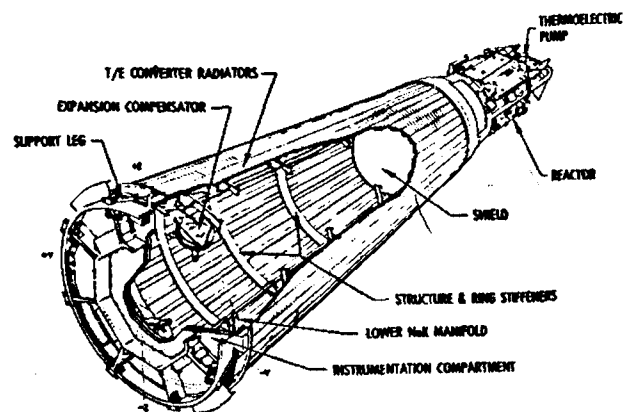


Figure 2. SNAP 10A system design

The full 500-watt SNAP 10A converter is divided into 120 sections called modules. The module is the basic end product of the converter fabrication process. The effective heat source is translated to the NaK tube portion of the module by the flow of NaK-78 from the reactor heat source. Twenty-four cylindrical pellets of N and P doped SiGe alloy thermoelectric material are alternately spaced along the length of each module NaK tube. The pellets are electrically insulated from the NaK tube by means of thin alumina disks. The pellets are electrically connected in series with copper straps at the hot end and aluminum combination strap radiators at the cold end. Each aluminum radiator platelet is electrically insulated from adjacent platelets by a clearance gap. All material interfaces from the NaK tube through the aluminum radiator are metallurgically bonded. The basic SNAP 10A module captures a maximum fraction of the available material efficiency and utilizes the available heat to maximum advantage as a result of the following: (a) the 100% metallurgically bonded structure provides minimum thermal and electrical impedance and an assembly strength which is a factor of 100 greater than the anticipated launch loads; (b) the use of clearance gaps between radiator platelets eliminates the thermal impedance of one electrical insulating barrier that would otherwise be required; (c) the completely self-

supporting structure of the thermocouple radiator subassembly eliminates the shunt heat paths of auxiliary structural members; and (d) radiative heat shunting is minimized by low emissivity surfaces on both the NaK tube and the radiator back side. The electrical and thermal performance of the SNAP 10A converter is summarized in Table 2.

Table 2. SNAP 10A thermoelectric converter performance

Thermoelectric material	SiGe alloy
Figure of merit (Z)	$0.58 \times 10^{-3} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$
Average source temperature	935° F — 502 °C
Average radiator base temperature	600 °F — 315 °C
Materials efficiency (η_m)	9.4%
ΔT total (ΔT_c)	335 °F — 187 °C
ΔT thermoelectric material (ΔT_{te})	305 °F — 170 °C
Series thermal efficiency ($\eta_{ts} = \Delta T_{te}/\Delta T_c$)	90%
Thermoelectric material resistance (R_{te})	1.41 ohms
Converter resistance (R_c)	1.60 ohms
Electrical efficiency ($\eta_e = R_{te}/R_c$)	88%
Heat radiated (Q_r)	33 kW
Heat through thermoelectric material (Q_{te})	30 kW
Shunt heat losses (Q_p)	3 kW
Shunt thermal efficiency ($\eta_{tp} = Q_{te}/Q_R$)	91%
Device efficiency ($\eta_d = \eta_e \times \eta_{tp} \times \eta_{ts}$)	72%
Carnot efficiency (η_c)	24%
Over-all efficiency ($\eta_o = \eta_c \times \eta_d \times \eta_m$)	1.63%
Power = $\eta \times Q_R$	540 W
Total thermoelectric couples	1440
Open circuit voltage per couple	0.084 V
Converter open circuit voltage (720 in series)	61 V
Converter working voltage	28.5 V
Current	19 A
Emissivity (η_e)	89%
Fin effectiveness (η_f)	90%
Fraction of theoretical power density	58%

In the complete 500-watt converter three module NaK tubes are welded together to form one converter leg. Forty legs are mounted on the surface of a truncated conical structure with all legs forming parallel NaK circuits between inlet and outlet headers. The total weight of the 120 modules is 150 pounds (68 kg) and the total converter radiator surface area is 62 ft² (5.8 m²). In order to eliminate the possible loss of the complete converter power output due to one element or interface fracture, the converter is electrically arranged into a series parallel circuit, i.e., the converter is made up of a series connection of parallel pairs of thermocouples. The converter delivers 500 watts into a matched load of about 1.6 ohms at a potential of 28.5 volts.

The demonstrated failure rate of the thermocouples is such that the launch survival probability for the full converter is 99.6% at 90% confidence. The program to date has fabricated in excess of 1000 modules. Some modules have been on test for in excess of 12 000 hours. The total integral of test modules times test hours at design temperature is about 500 000 module-hours.

System

In order to integrate the reactor heat source and the thermoelectric power conversion into a complete useful space power system, it is necessary to consider spacecraft integration and operational criteria. The most important of these are:

- (1) Thermal isolation from the spacecraft payload;
- (2) Operation in the space environment of vacuum and micrometeorites;
- (3) Remote startup in orbit via radio command;
- (4) Capability to operate without subjecting the spacecraft to excessive disturbing torques;
- (5) Design and installation to permit efficient low weight shadow shielding of payloads;
- (6) Minimum interference and interaction with basic booster and payload subsystems;
- (7) Configuration within vehicle structural and flight stability criteria;
- (8) Capability to withstand the severe shocks, vibrations, gravity, pressure and temperature transients during vehicle launch;
- (9) Pre-launch installation and checkout with maximum safety and minimum vehicle and facility interference;
- (10) Capability of low cost quantity production with maximum reliability.

The basic thermodynamic coupling of the reactor heat source and the thermoelectric converter (see Fig. 2) is accomplished by a pumped liquid metal loop of NaK-78. The objective of no moving parts is maintained by the application of a dc conduction pump. The SNAP 10A pump derives its high dc current (700 A) from two "large" parallel PbTe thermocouples with the output "shorted" directly through the pump throat. The pump's integral PbTe current source derives its power directly from the liquid metal flowing through the pump. The necessary heat flow and temperature difference are imposed by rejecting heat (700 W) to space by extended aluminum radiator fins attached to the cold junction of the thermocouples. The required magnetic field (2 400 gauss) is provided by an Alnico V permanent magnet. The SNAP 10A pump (see Fig. 1f) weighs about 20 pounds (9.1 kg) and produces a pressure rise of about 1.4 psia (0.95 atm) at 13 gpm (0.82 l/s). The net pump efficiency, heat to fluid power, is about 1%.

In addition to the thermoelectric pump, the NaK circuit, which is completely sealed, contains a bellows device which absorbs the thermal expansion of the liquid metal inventory while maintaining the NaK circuit pressurization above the cavitation limits of the pump and below the limit of piping creep.

The system configuration is virtually dictated by minimum weight shielding requirements. The shielding

specification for SNAP 10A is to limit the radiation level at the power unit-spacecraft interface to about 5×10^{12} nvt fast neutrons and 4×10^7 r gammas in one year. Beyond this level semiconductor payload hardening causes difficulties. The critical shielding problem is the elimination of neutron scattering from miscellaneous components and structural members. The most efficient shield results when the required payload shadow shield serves the additional function of eliminating unwanted scattering. This is accomplished by locating all components and structural members within the conical shadow of the basic payload shield. The result is a conical configuration with a base diameter determined by the payload, an upper diameter determined by the effective projected area of the reactor source, and a height determined by the total radiator area requirement. SNAP 10A is 5 feet (1.5 m) in diameter at the base and about 12 feet (3.65 m) high (see Fig. 3 and Fig. 4).

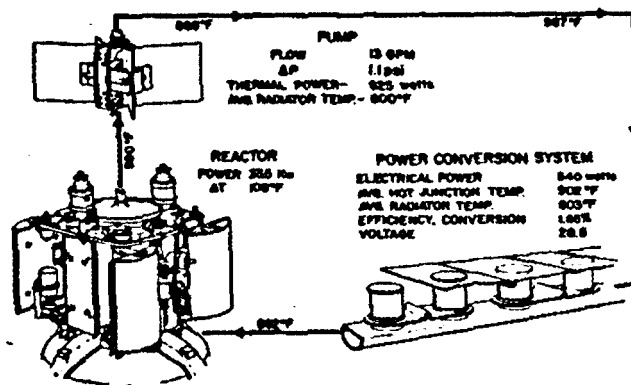


Figure 3. SNAP 10A system configuration

The basic structural member of SNAP 10A is a truncated cone constructed of corrugated titanium with internal stiffening rings. The complete NaK circuit and the 120 converter modules are mounted to the surface of the conical structure. The reactor and shield are independently mounted to the upper load ring of the structure thus allowing the shield to be removed and installed without breaking the liquid metal circuit. The shield weighs 225 pounds (98 kg) and consists of a thin steel casing filled with cold pressed lithium hydride. The shield provides about four decades of neutron attenuation.

The initial system development phase included static and dynamic structural testing of mass mockups, simulated electrical system testing with a spacecraft mockup, and thermal and hydraulic testing of a developmental system design. In order to avoid the complexity of nuclear radiation, much of the system development has been accomplished with the aid of electrical heaters located in the core vessel.

The final preflight qualification of the SNAP 10A power unit consists of two electrically heated tests and

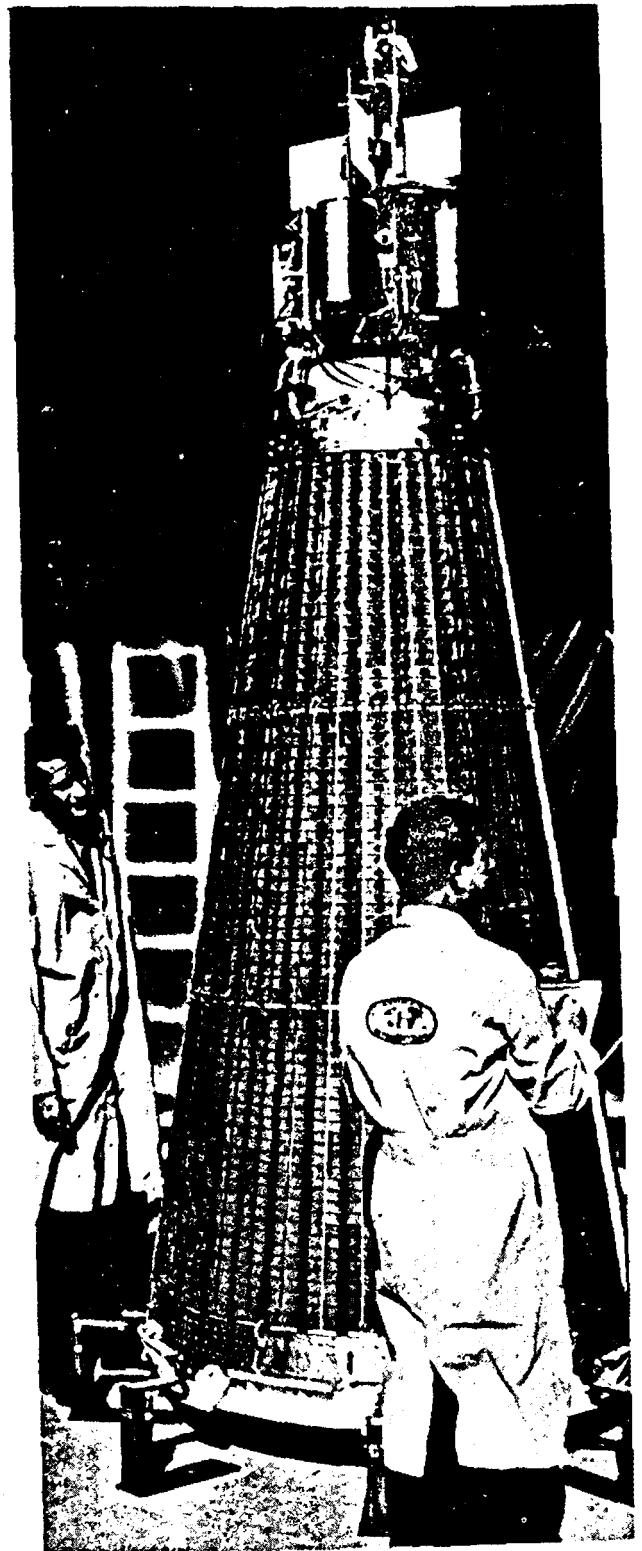


Figure 4. SNAP 10A nuclear preflight qualification unit

one nuclear test of three prototype systems. Each of these units is subjected to a reference factory-to-flight sequence including the simulated shock and vibration of launch. The units are subsequently operated in a vacuum environment. The vacuum provides a proper

heat transfer régime but does not simulate the ultra-vacuum of outer space. One of the electrically heated preflight qualification units completed 90 days of continuous testing during January 1964. This unit operated in a vacuum of 10^{-3} to 10^{-4} torr after launch simulation and produced 400 W of electricity. When corrected for the difference between the outer space heat sink conditions and the water cooled walls of the ground test chamber, this test demonstrated that the SNAP 10A unit will produce in excess of 500 W in space. The testing of the second preflight qualification unit of the SNAP 10A program, i.e., the nuclear test, is in the initial phases of its complete test sequence. A photograph of this unit is shown in Figure 4.

The development of SNAP 10A will culminate in the verification of the system design and operation in the actual space environment. The flight test is scheduled for 1965. Successful space operation of SNAP 10A will provide a basis for the application of reactor power systems and for the future development of higher performance reactor power units for space.

Safety

Throughout the design and development of SNAP, safety has provided the basis for many design decisions. In order to satisfy the objective of maximum safety of the SNAP space reactor systems, a set of safety design criteria for SNAP reactors was formulated. System safety has been maintained without compromise to the operational characteristics of reliability, simplicity and weight.

In order to evaluate the worldwide significance of contributing fission products to the earth's environment through re-entry burnup and dispersal of SNAP systems, the resultant buildup of ^{90}Sr has been considered. The analysis indicates that the equilibrium level of ^{90}Sr resulting from the annual re-entry dispersal of 100 SNAP 10A units would add about one tenth of one per cent to the dose received from the earth's natural radioactive background. The design of the SNAP 10A unit incorporates both ground command and "on-board" shutdown devices such that a decay period in space can be provided prior to re-entry. Orbital lifetime and thus decay time in excess of 250 years reduces the total SNAP 10A fission product inventory at re-entry to less than 1 curie. The SNAP 10A capability of orbital startup and the design shutdown devices can be coupled with long-lived orbits to provide an added margin of safety until complete re-entry burnup and high altitude dispersal has been proven.

In general, radiological considerations need not limit the use of nuclear power in space. The prelaunch and launch period safety can be controlled through operational procedures and appropriate facilities and equipment. Re-entering systems can be used in large numbers without appreciably contributing to the con-

tamination of the earth's surface or atmosphere. The use of high altitude orbits and orbital startup can enhance safety by allowing long decay times prior to re-entry.

Reactor-thermoelectric system performance

The specific power level of SNAP 10A, 500 watt, can be supplied in space by solar cells. The comparative performance of these two space power approaches is shown in Table 3. SNAP 10A at 500 watt is heavier

Table 3. System performance comparison

	Current SNAP 10A (500 W and 1 000 °F -538 °C)	Solar cells	Advanced reactor thermoelectric (1 500 W and 1 300 °F -704 °C)
Weight, W/lb . . .	1/2	1	1.5
Area, W/ft ²	9	2 to 5 ^a	27
Cost, \$/W.	2 000	1 000 to 8 000	700

^a Unoriented-oriented.

than an equivalent solar cell power system. The area and cost differential are probably insufficient to bias power system selection in the direction of SNAP 10A. However, there are other operational advantages to a reactor power system. These advantages include: (a) no requirement for sun orientation; (b) no need for long-life bearings and attitude control systems; (c) insensitivity to the radiation environment of near earth space; and (d) no limitation by the cycle life of secondary batteries.

The exact degree to which these considerations can dominate the selection of a power system depends on the detailed objectives, limitations, and allowable design tradeoffs in the intended mission. Because of the temperature dependence of the area and size of the power conversion, the thermoelectric power system performance improves dramatically with temperature. For example, if the SNAP 10A unit is operated at the reactor outlet conditions of SNAP 8, 1 300 °F (704 °C), it can produce 1 500 W at essentially the same radiator area, 62 ft² (5.8 m²), and weight, 1 000 pounds (455 kg). At these conditions the performance has improved to that shown in Table 3 for the advanced reactor thermoelectric unit. This performance is at a level sufficient to incur no performance penalty over solar cells while gaining the other operational advantages of the reactor system.

The reactor power system performance must offer sufficient advantage to overcome the cost and difficulty associated with the radiation environment imposed by the reactor system. The use of an advanced design employing an extendable structure for more reactor-payload separation and a reduction in the effective reactor source size can reduce the imposed radiation

environment to less than 10^{11} nvt/year and 10^6 r/year. At this level, there is no significant payload hardening problem as long as there is not a unique sensor interference problem. Direct extension of the SNAP 10A concept to higher temperature and more advantageous geometry can produce a reactor thermoelectric space power system that offers a significant cost, area and reliability improvement with no significant radiation complications and incurs no weight penalty over solar cells at power levels above 1 kW(e). The advantages other than weight are probably more significant in the over-all system design and will lead to reactor power system acceptance in the subkilowatt power range.

The availability of the improved thermoelectric system capability is determined by the reactor and conversion materials technology necessary to allow reliable and long-lived system operation. SNAP hydride reactors have already been demonstrated at temperatures up to 1 300 °F (704 °C). The SNAP 10A modules are currently being extended into the 1 300 °F (704 °C) operating capability range. SiGe alloy thermoelectric materials have been tested extensively at temperatures up to about 1 800 °F (982 °C). The technology necessary to provide a long-lived and reliable reactor thermoelectric space power system that is competitive with solar cells at less than 1 kW(e) is well advanced. The same technology will provide 10 to 20 kilowatts of power at about 3 lb for more ambitious space objectives.

CONCLUSION

Reactor direct conversion units are an attractive source of power for locations of extreme remoteness and for applications requiring high reliability. SNAP 10A is the first reactor direct conversion unit and it

has been specifically developed for the remoteness and reliability requirements of space. As such, the design, development and testing experience on SNAP 10A will form the basis for future higher power and high performance systems employing direct and dynamic power conversion.

As the utilization of space increases and as man's exploration extends beyond our own planet to the outer regions of our solar system, reactor power systems will assume a role of increasing importance. Experience on earth has clearly shown that technological advancement always requires more power. This same experience will be even more valid in the hostile environment of space. Thus, the availability of large amounts of reliable and long-lived power will control our space aspirations. Future communications satellites broadcasting several channels of television directly to the individual home from a synchronous orbit will require power levels up to about 100 kW(e) with three to five years lifetime. A large twenty to forty man orbital space station will provide a base for space research and for earth oriented services like communications, navigational aids, meteorological observations, etc. The power demand of such a station can readily exceed 50 kW(e). A probable future objective will be the establishment of a semi-permanent base on the moon. Studies of the requirements and problems of such a base are already under way and revealing power needs of 50 to 1 000 kW(e). Beyond the moon, the exploration of Mars will probably be accomplished before the end of this century. The power system will have to use a reactor source, and lifetime and reliability will be extremely demanding requirements. In conclusion, the technology of the "atomic age" will play a major role in the future accomplishments of the "space age".

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/218 Etats-Unis d'Amérique

Réacteurs à conversion directe

par H. M. Dieckamp et al.

Le programme SNAP (Sources d'électricité nucléaires auxiliaires) de la Commission de l'énergie atomique des Etats-Unis a pour but de réaliser, en utilisant des sources de chaleur nucléaire, des générateurs d'électricité compacts, de grande puissance, de longue vie utile, pour les utilisations spatiales. Le programme porte sur des réacteurs à conversion d'énergie directe aussi bien que dynamique pour des puissances électriques allant de moins d'un kilowatt au mégawatt. Les conditions spéciales des utilisations spatiales,

c'est-à-dire résistance au lancement, vide poussé, apesanteur, élimination de la chaleur par rayonnement, micrométéorites, poids minimal, fiabilité, longue durée de vie et sûreté, imposent au réacteur et à l'ensemble de conversion d'énergie des caractéristiques exceptionnelles pour ce qui est du choix des systèmes, de la conception, de la mise au point, de l'aptitude au vol, et de l'intégration aux utilisations prévues.

L'un des premiers objectifs importants du programme SNAP est d'étudier et de réaliser un système thermoélectrique de 500 W, le SNAP 10A. Celui-ci utilise un réacteur de 114 kg (250 lb) avec un cœur homogène en ^{235}U très enrichi et de l'hydrure de zirconium comme modérateur ($\text{H/U} = 50$) et un mince réflecteur annulaire de 5,1 cm (2 in) en béryllium

dont on peut faire varier la géométrie pour contrôler le réacteur. Après son démarrage sur orbite, le réacteur se contrôle pratiquement lui-même durant toute sa vie grâce à son coefficient de température négatif de réactivité. La puissance du réacteur, de 35 kW (th) à une température de sortie de 540 °C (1 000 °F), est couplée au convertisseur thermoélectrique par une boucle de transfert de chaleur à NaK-78. La puissance de pompage (6,5 W) est fournie par une pompe électromagnétique à courant continu alimentée par thermocouples. Le convertisseur thermoélectrique se compose de 1 440 couples en alliage Si-Ge dopé ($Z = 0,65 \times 10^{-3}/\text{deg C}$), reliés électriquement à un circuit série-parallèle de façon à fournir 500 W en courant continu à 28 V.

La soudure chaude des thermocouples est électriquement isolée, mais thermiquement liée au tuyau contenant le réfrigérant NaK-78 à une température moyenne de 510 °C (950 °F) environ. La soudure froide des thermocouples est formée par 1 440 plaquettes individuelles en aluminium qui servent de radiateur. L'élimination de la chaleur vers l'espace à partir de la surface intégrée de rayonnement de 5,8 m² (62,5 ft²) que constituent ces plaquettes maintient les soudures froides à une température moyenne de 325 °C (615 °F). L'ensemble du SNAP 10A pèse 450 kg (950 lb), dont 98 kg (215 lb) d'écran en LiH pour réduire la dose de rayonnement à l'interface avec la charge utile à moins de 10¹³ n/cm² et 10⁸ rads par an. Le système est de forme approximativement conique, de 1,5 m (5 ft) de diamètre et 3,65 m (12 ft) de haut, le réacteur étant au sommet et l'ensemble formé par le convertisseur thermoélectrique et le radiateur situé sur la surface externe du cône. Le programme en est aux étapes finales d'essais au sol et de préparation au vol.

Les premières études conceptuelles pour l'utilisation spatiale d'électricité d'origine nucléaire ont commencé en 1953. On a choisi en 1955 le concept de réacteur à hydruure SNAP en tenant compte de son poids minimal, de la possibilité d'atteindre les températures utiles, et de la technologie existante pour les réacteurs et les matériaux. Le programme a été mis en chantier au début de 1957 et la vérification du principe même du réacteur obtenue en octobre 1957 à l'aide d'un assemblage critique. La conception initiale du SNAP utilisait un cycle de Rankine à mercure pour la conversion d'énergie. L'un des objectifs permanents du programme SNAP est de mettre au point la technologie du réacteur et des machines tournantes de façon à pouvoir bénéficier des avantages que donnerait le cycle de Rankine à mercure. A ce jour, deux réacteurs prototypes ont fonctionné à 50 kW (th) et 650 °C (1 200 °F), ce qui correspond à un système Rankine à mercure de 5 kW(e), et un troisième réacteur fonctionne à 450 kW(th) et 705 °C (1 300 °F), ce qui correspond aux conditions d'un système de 35 kW(e).

A/218 США

Реакторные установки с непосредственным преобразованием энергии

Х. М. Дикамп *et al.*

Целью программы SNAP КАЭ США является разработка вспомогательных компактных источников энергии длительного действия с использованием ядерного реактора космического назначения. Программа включает разработку реакторных энергетических систем как с непосредственным, так и с динамическим преобразованием энергии в интервале от нескольких ватт до миллиона ватт. Использование таких установок в космическом пространстве имеет ряд специфических особенностей, например: перегрузки при запуске, высокий вакуум, невесомость, сброс тепла излучением, микрометеориты, минимальный вес, надежная работа, срок службы и безопасность. Реакторный источник тепла и выбранная система преобразования должны удовлетворять этим требованиям с точки зрения конструкции и пригодности для полета и совместимости с другими бортовыми устройствами.

Важной начальной задачей программы SNAP является разработка и испытание термоэлектрической системы SNAP-10A электрической мощностью 500 вт. Указанная система включает реактор весом 114 кг с гомогенной активной зоной, состоящей из полностью обогащенного U²³⁵ с замедлителем из гидрида циркония (отношение водорода к урану 4:50) и из тонкого (5,1 см) бериллиевого кольцевого отражателя. Регулирование реактора осуществляется путем изменения геометрии отражателя. После пуска реактора регулирование его на орбите осуществляется автоматически в течение всего периода работы благодаря наличию отрицательного температурного коэффициента реактивности. Тепловая мощность реактора 35 кВт передается в термоэлектрический преобразователь с помощью теплоносителя из сплава натрия и калия (NaK-78), циркулирующего в контуре. Температура теплоносителя на выходе из реактора 540°С. Мощность на прокачку (6,5 вт) обеспечивается электромагнитным насосом постоянного тока. Насос питается от термоэлектрической батареи, расположенной на его корпусе.

Термоэлектрический преобразователь состоит из 1440 пар термоэлементов, сделанных из сплава кремния и германия ($z = 0,65 \cdot 10^{-3}$). Термоэлементы соединяются в цепь последовательно и параллельно. С преобразователя снимается постоянный ток мощностью 500 вт, напряжением 28 в.

Горячие спаи термопар, работающие при средней температуре 510°С, электрически изолированы. К холодным спаям термоэлемента

прикреплены 1440 отдельных алюминиевых излучающих пластинок. Площадь поверхности излучающих пластин равна $5,8 \text{ м}^2$, а средняя температура сброса тепла 325°C . Полный вес системы SNAP-10A 430 кг, включая защитный экран весом 98 кг из гидрида лития (LiH). Экран предназначается для снижения дозы облучения полезного груза до 10^{13} нейтр/см² и 10^{18} рад/год. Экран имеет почти коническую форму диаметром 1,5 м и высотой 3,65 м. Реактор находится в верхней части конуса, а термоэлектрический преобразователь и излучатель расположены на внешней поверхности конуса. Вся описанная аппаратура в настоящее время находится в стадии заключительных наземных испытаний и подготовки к полету.

Первые исследования, связанные с возможным применением ядерной энергии в космосе, были начаты в 1953 году. Исходя из общего уровня знаний в области реактора и материалов, в 1955 году был выбран реактор с гидридным замедлителем благодаря его небольшому весу и способности обеспечить требуемые температурные параметры. Развитие работ по программе SNAP с начала 1957 года пошло более быстрыми темпами, и в октябре 1957 года была сооружена критическая сборка, подтвердившая правильность выбранной конструкции реактора. В первоначальном проекте системы SNAP для преобразования энергии использовался ртутный цикл Ренкина. Целью программы SNAP было усовершенствование как реактора, так и вращающихся узлов системы, которая позволила бы использовать все преимущества ртутного цикла Ренкина. В соответствии с программой создано два экспериментальных реактора тепловой мощностью 50 кВт и температурой на выходе 650°C , необходимой для ртутной системы с циклом Ренкина электрической мощностью 5 кВт. Третий реактор тепловой мощностью 450 кВт работает в настоящее время с температурой на выходе 705°C , необходимой для системы с циклом Ренкина электрической мощностью 35 кВт (эл.).

A/218 Estados Unidos de América

Unidades de reactores con conversión directa por H. M. Dieckamp et al.

El objetivo del SNAP (programa de sistemas para reactores nucleares de potencia auxiliares) de la Comisión de Energía Atómica de los Estados Unidos es hacer fuentes energéticas compactas, de potencia elevada y de gran duración, que puedan utilizarse en el espacio mediante el empleo de unidades térmicas nucleares. El programa abarca unidades impulsadas por reactores con conversión de energía, tanto directa como dinámica, en la zona de energía eléctrica desde el subkilovatio hasta el megavatio. Los objetivos específicos en el uso del espacio, es decir, violencia

del lanzamiento, vacío elevado, gravedad cero, disipación del calor de radiación, micrometeoritos, peso mínimo, confiabilidad, vida larga y seguridad imponen condiciones muy severas al diseño, desarrollo, capacidad de vuelo e integración de las demandas de la unidad térmica del reactor y del concepto de conversión de energía.

Uno de los principales objetivos iniciales del programa SNAP es el desarrollo y presentación del sistema termoeléctrico de 500 W, SNAP 10A. Este sistema emplea un reactor de 250 lb (114 kg) que tiene un núcleo homogéneo de uranio-235 totalmente enriquecido, moderador de hidruro de circonio ($H/U = 50$) y un anillo reflector de berilio de 2 pulgadas (5,1 cm) de espesor con posibilidad de variar la geometría del mismo para el control del reactor. Después de la puesta en órbita, el reactor es esencialmente autocontrolado durante su período por su coeficiente negativo de temperatura de reactividad. La potencia del reactor, de 35 kW(t) a una temperatura de salida de 1000°F (540°C), es acoplada al convertidor termoeléctrico mediante un intercambiador de calor de NaK-78. La potencia para bombeo (6,5 W) es suministrada por una bomba electromagnética de corriente continua accionada por un par termoeléctrico. El convertidor termoeléctrico consta de 1440 pares de aleación de Si-Ge con un aditivo ($Z = 0,65 \times 10^{-3} \text{ }^\circ \text{C}^{-1}$) que están conectados eléctricamente en un circuito serie-paralelo para suministrar 500 W a una tensión continua de 28 V.

Las soldaduras calientes de los pares termoeléctricos están aisladas eléctricamente, pero no térmicamente, de los tubos que contienen el refrigerante NaK-78 a una temperatura media de unos 950°F (510°C). La soldadura fría de los pares termoeléctricos está formada por 1440 laminillas disipadoras individuales de aluminio. La disipación de calor al espacio desde los 62,5 pies cuadrados ($5,8 \text{ м}^2$) de superficie disipadora total de estas laminillas mantiene a las soldaduras frías a una temperatura media de 615°F (325°C). El sistema SNAP 10A completo pesa 950 lb (430 kg) en donde están incluidas las 215 lb (98 kg) del blindaje sombreador de hidruro de litio para disminuir la dosis de radiación en la superficie de separación de la carga útil a menos de 10^{13} nvt y 10^8 rad por año. El sistema es prácticamente cónico, de 5 pies (1,5 m) de diámetro por 12 pies (3,65 m) de altura, con el reactor en el vértice y el disipador inherente al convertidor termoeléctrico situado en la superficie exterior del cono. El programa está en las etapas finales de presentación en tierra y habilitación antes del vuelo.

Los estudios iniciales de diseños básicos para energía nuclear espacial empezaron en 1953. La idea del SNAP de reactor de hidruro se eligió sobre la base de peso mínimo, capacidad para soportar temperatura y estado de los conocimientos sobre reactores

y materiales. El programa empezó su fase de desarrollo a principios de 1957 y en octubre de ese año se realizaron comprobaciones del concepto con un conjunto crítico. La idea inicial del sistema del SNAP utiliza un ciclo de Rankine de mercurio para conversión de energía. Un objetivo subsiguiente del programa SNAP es desarrollar la tecnología del reactor y del mecanismo rotatorio necesaria para mejorar el

rendimiento de sistemas con ciclo de Rankine de mercurio. Hasta la fecha, y dentro del programa, han funcionado dos reactores experimentales a 50 kW(t) y 1 200 °F (650 °C), requisitos necesarios para un sistema de 5 kW eléctricos con ciclo de Rankine de mercurio, y un tercer reactor está funcionando a 450 kW(t) y 1 300 °F (705 °C), requerimientos necesarios para un sistema de 35 kW(e).

Термоэлектрические генераторы с изотопным источником тепла

А. Н. Воронин, И. Г. Гвердцители, Р. З. Гринберг,
Ю. Д. Губанов, В. А. Жарков, В. Ф. Жуков, В. К. Ковырзин,
В. М. Кодюков, Н. П. Коротков, Р. Я. Кучеров, С. П. Лалыкин,
А. И. Рагозинский, Г. М. Фрадкин, Б. А. Шиндеров, С. Я. Эрман*

За последние годы большое внимание уделяется созданию маломощных автономных источников электрической энергии на основе радиоактивных изотопов. Такие источники находят применение для питания приборов и аппаратуры, работающих в труднодоступных и необслуживаемых условиях, поскольку они способны работать без подзарядки в течение длительного времени.

В настоящем докладе приводятся описания двух термоэлектрических генераторов с изотопными источниками тепла, разработанных в Советском Союзе. В качестве источника тепла в первой установке применялся альфа-активный полоний-210, во второй — бета-активный цезий-144.

ИЗОТОПНЫЙ ИСТОЧНИК ТОКА НА ПОЛОНИИ-210

За последние несколько лет в литературе появились описания многочисленных конструкций электрогенераторов мощностью 1—100 *вт*, основанных на использовании радиоактивных изотопов. В качестве термоэлектрического сплава обычно используются селениды или теллуриды свинца, обладающие наибольшим среди известных материалов значением добротности. Однако добротность не является единственным показателем, характеризующим пригодность термоэлектрического материала. Переход к высокотемпературным сплавам, хотя и меньшей добротности, позволяет, сохранив к. п. д. за счет увеличения разности температур горячего и холодного концов термоэлементов, повысить температуру излучателя и тем самым улучшить весовые характеристики прибора.

Было изготовлено несколько термогенераторов с начальной электрической мощностью до

10 *вт* с однотипным термоэлектрическим преобразователем, отличавшихся корпусом-излучателем и способом прижатия термобатарей к горячей поверхности. На изготовленных образцах с помощью электрического имитатора изотопного источника тепла были определены ресурс установки, электрические параметры и распределение температур по узлам установки.

ВЫБОР ОСНОВНЫХ ПАРАМЕТРОВ УСТАНОВКИ

Предварительное рассмотрение различных вариантов конструкции установки показало, что наиболее простой в изготовлении при достаточности малых потерях тепла является конструкция, в которой плоская ампула зажимается между горячими сторонами двух термобатарей, холодные концы которых упираются в корпус-излучатель.

По технологическим соображениям ампула была изготовлена в форме прямоугольного параллелепипеда размером $60 \times 60 \times 13$ *мм*. Технология изготовления и условия эксплуатации установки накладывают ряд ограничений на возможные значения ее параметров. В частности, для обеспечения прочности ампулы в условиях высокого давления (до 200 *атм*), создаваемого гелием, образующимся при радиоактивном распаде, температура ее поверхности должна быть не выше 850°C . Температура корпуса-излучателя ограничивается термостойкостью резины, используемой для вакуумного уплотнения установки, и не должна превышать 250°C .

Длина полупроводниковой части термоэлементов l была выбрана равной 3 *см* из тех соображений, что при меньшей их длине генерируемая электрическая мощность снижается из-за возрастания доли электросопротивления коммутации в общем сопротивлении термобатарей и доли сопротивления электроизоляционных пластин в тепловом сопротивлении термостолбиков. С другой стороны, увеличение длины l

* Физико-технический институт, Институт радиационной техники Государственного комитета по использованию атомной энергии СССР.

выше 3 см увеличивает вес установки при незначительном улучшении ее электрических характеристик. Применявшийся в установке кремний-германиевый сплав имел в интервале температур 300—800° С, среднюю добротность $\bar{Z} = 4 \cdot 10^{-4}$ 1/град и коэффициент теплопроводности $\bar{\kappa} = 1,5 \cdot 10^{-2}$ кал/см·сек·град.

Проведенные расчеты позволили выбрать основные параметры установки, а также оценить ее температурные характеристики и к. п. д. Полученные результаты приведены в табл. 1.

Таблица 1

Тепловое сопротивление изоляции, град·сек/кал.	12
Тепловой поток через изоляцию, вт.	49
Начальная тепловая мощность ампулы, вт.	320
Поверхность излучателя, см ²	900
Число термоэлементов (из расчета напряжения на внешней нагрузке 1,8 в)	32
Сечение термостолбика, см ²	0,8
Температура горячего спая, °С	760—775
Температура холодного спая, °С	300—330
К. п. д. термогенератора, %	3,5—3,9
Полный к. п. д. установки, %	3—3,3

Батарея термоэлементов

Кремний-германиевый сплав был выбран в качестве термоэлектрического материала преобразователя в силу того, что он обладает следующими положительными свойствами: а) высокой рабочей температурой (свыше 1000° С); б) низкой упругостью паров при $T = 1000^\circ\text{C}$; в) хорошими прочностными свойствами; г) устойчивостью термоэлектрических свойств к радиоактивному излучению; д) малым удельным весом. Каждая батарея термогенератора состоит из 16 последовательно соединенных термоэлементов (8 — термоэлементов р-типа и 8 — n-типа), укрепленных винтами между двумя металлическими плитами. Плита горячей стороны выполнена из углеродистой стали, крепящие винты из молибдена. Плита холодной стороны термобатареи и крепящие винты выполнены из меди. Термоэлементы, укрепленные винтами между стальной и медной плитами, соединяются между собой путем контактной сварки молибденовых выводов термоэлементов через никелевую фольгу толщиной 0,02 мм.

Обе батареи установки соединяются последовательно, на установке № 5 такое соединение осуществлено медным контактом в керамической изоляции, на установках № 6 и 7, в качестве соединительного проводника использован корпус установки.

КОРПУС-ИЗЛУЧАТЕЛЬ УСТАНОВКИ

Корпус-излучатель установки № 5 выполнен из дюралюминия в виде цилиндра с днищем, снабженным фланцем для вакуумноплотного соединения с медной крышкой корпуса. В мед-

ную крышку корпуса запаяны два металлических электрода с керамической изоляцией. Профиль медной крышки-фланца подобран таким образом, что за счет деформации крышки возможно перемещение ее донной части по отношению к фланцу на 2—3 мм. Герметичность соединения крышки и цилиндра обеспечивается уплотнительным кольцом из термостойкой резины.

Корпуса установок № 6 и 7 выполнены целиком из дюралюминия, что увеличило жесткость корпуса, позволило усилить прижим термобатарей к ампуле изотопного источника тепла и

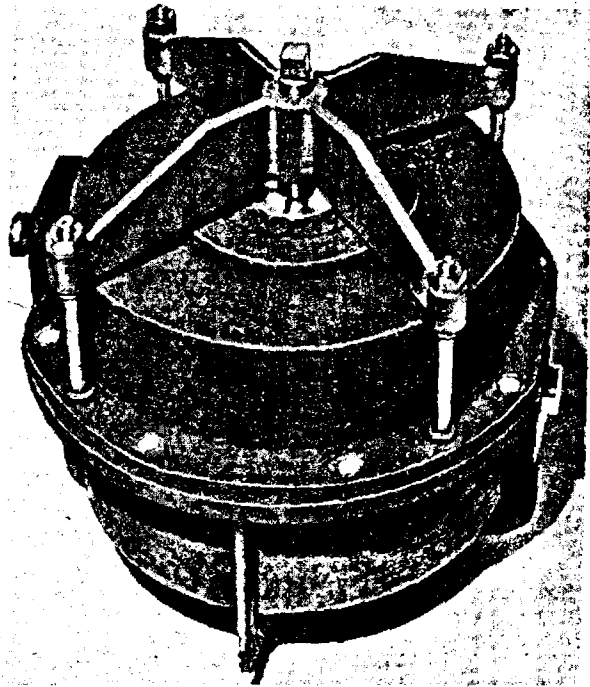


Рис. 1. Общий вид генератора на полонии-210

снизило вес установки. Прижим термобатарей к ампуле изотопного источника тепла на установке № 6 обеспечивался тарельчатыми стальными пружинами, надеваемыми на болты, стягивающие обе половинки корпуса. Для создания хорошего теплового контакта между элементами установки № 7 обе половины корпуса сжимаются струбциной, закрепляемой на фланцах. Нижняя часть корпуса имеет ребра жесткости. Верхняя часть корпуса изготовлена таким образом, что допускается прогиб дна по отношению к фланцу цилиндра на 2 мм. Корпуса установок снабжены отверстием для заполнения внутреннего объема теплоизоляционной засыпкой марки «Перлит» и для удаления воздуха из объема установки. Для повышения коэффициента черноты корпус установки покрыт тонким слоем термостойкой краски с коэффициентом черноты $\epsilon = 0,85$. Общий вид установки № 7 показан на рис. 1.

Ресурсные испытания генератора с электрическим имитатором

Электрический имитатор изотопного источника тепла представляет собой графитовый блок размером $60 \times 60 \times 13$ мм с молибденовой спиралью. Мощность нагревателя определялась путем подключения в цепь нагревателя ваттметра переменного тока. Испытания показали

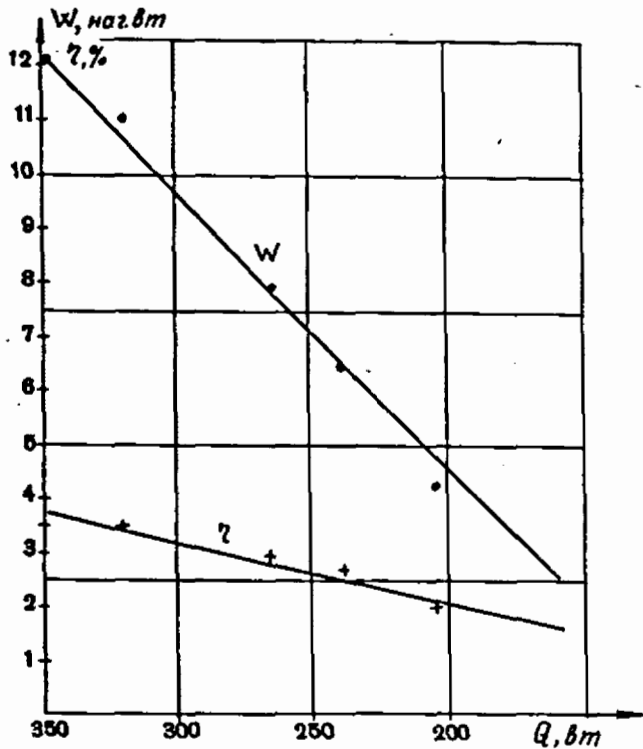


Рис. 2. Электрическая мощность и к. п. д. установки в различных тепловых режимах

стабильность свойств этих установок в рабочем режиме в течение 1000 ч. Результаты испытаний установок № 5, 6 и 7 представлены в табл. 2. На термогенераторе № 6 с имитатором изотопного источника тепла определялись также к. п. д. и электрическая мощность при работе в различных тепловых режимах. Результаты испытаний представлены на рис. 2.

ИЗОТОПНЫЙ ИСТОЧНИК ТЕПЛА

Изотопный источник тепла представлял собой прямоугольный параллелепипед из нержавеющей стали с пятью камерами для размещения ампул с полонием-210. Из прочностных соображений никелевая ампула с полонием-210 (1000—2000 кюри) последовательно помещалась в два цилиндра из нержавеющей стали. Цилиндры снабжены пробками на резьбе. В процессе сборки пробки цилиндров заваривались. Общий вид изотопного источника тепла

и его деталей показан на рис. 3. Тепловая мощность источника определялась калориметрически.

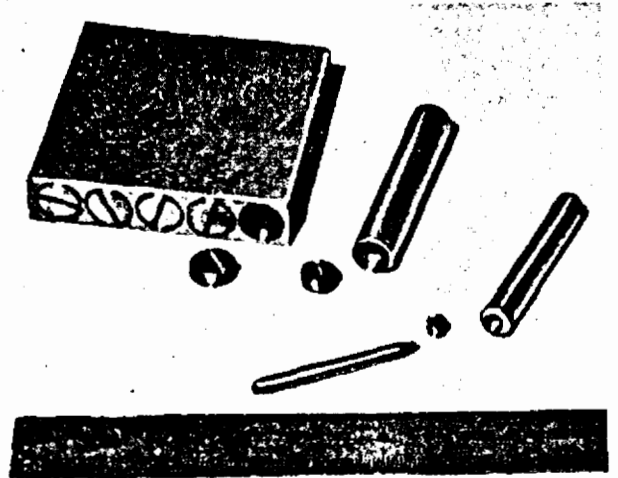


Рис. 3. Ампула изотопного источника тепла и ее детали

ИСПЫТАНИЯ ТЕРМОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ГЕНЕРАТОРА С ИЗОТОПНЫМ ИСТОЧНИКОМ ТЕПЛА

На испытания был поставлен генератор № 7. Сборка термогенератора с изотопным источником тепла на полонии-210 с начальной тепловой мощностью 244 Вт продолжалась в течение

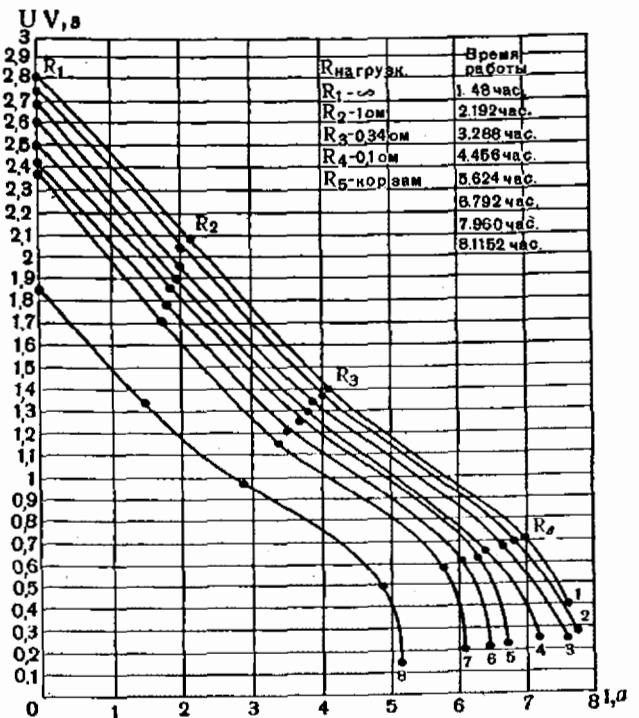


Рис. 4. Вольт-амперные характеристики

Таблица 2

№ п/п	Параметры	Номер Установки		
		5	6	7
1	Размеры, мм:			
	высота	128	126	210
	диаметр	195	196	190
2	Вес (без ампулы изотопного источника тепла), кг	3,1	2,7	2,8
3	Тепловая мощность имитатора Q , Вт:			
	эквивалент тепловой мощности изотопного источника на ^{210}Po активностью 10 000 кюри	320	320	320
	эквивалент тепловой мощности изотопного источника к концу третьего месяца службы	205	205	205
4	Электрическая мощность установки, Вт:			
	при $Q = 320$ Вт	10,15	10,9	9,65
	при $Q = 205$ Вт	4,35	4,67	4,15
5	К. п. д. при $Q = 320$ Вт, %:			
	термоэлектрический коэффициент теплового использования общий	3,75 85	4 85	3,56 85
6	К. п. д. при $Q = 205$ Вт, %:			
	термоэлектрический коэффициент теплового использования общий	3,18 2,5 85	3,41 2,7 85	3,02 2,38 85
7	Э. д. с. при $Q = 320$ Вт, в	2,14	2,29	2,02
8	Э. д. с. при $Q = 205$ Вт, в	3,9	3,6	3,8
9	Максимальная температура горячей плиты блока термоэлементов при $Q = 320$ Вт, °С	2,42	2,24	2,36
10	Максимальная температура излучателя при $Q = 320$ Вт, °С	861	840	817
11	Максимальная температура горячей плиты блока термоэлементов при $Q = 205$ Вт, °С	241	250	240
12	Максимальная температура излучателя при $Q = 205$ Вт, °С	670	650	633
		190	196	195

Таблица 3

№ п/п	Параметры	Время работы, ч			
		48	1000	1400	2000
1	Тепловая мощность изотопного источника тепла, Вт	244	200	185	163
2	Э. д. с., в	2,85	2,3	2,09	1,88
3	Напряжение на нагрузке 0,34 Ом, в	1,4	1,14	1,04	0,92
4	Выходная электрическая мощность, Вт	5,8	3,79	3,24	2,52
5	К. п. д. установки, %	2,36	1,91	1,75	1,55
6	Температура горячих плит термобатарей при работе на нагрузку 0,34 Ом, °С	759	633	600	545
		746	542	503	440
7	Температура корпуса-излучателя, °С	230	202	192	163
		216	190	178	157
8	Активность изотопного источника по полонию-210, кюри	7700	6300	5320	5140

50 мин. после чего установка была подключена к измерительным приборам. Согласно программе стендовых испытаний генератора № 7 непрерывно контролировались следующие параметры: напряжение, создаваемое термогенератором на нагрузке 0,34 Ом; температура горячих сторон термобатарей (2 точки); температура корпуса-излучателя (2 точки); гамма-фон на расстоянии 0,3 м от источника. Результаты испытаний приведены в табл. 3.

Кроме того, эпизодически (через 5—7 суток) снимались вольт-амперные характеристики термогенератора, приведенные на рис. 4.

ИСТОЧНИК ЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ЭНЕРГИИ НА ОСНОВЕ ЦЕРИЯ-144

Современный уровень организации жизни человечества немыслим без надежно и бесперебойно работающей метеорологической службы, станции которой располагаются как в обитаемых, так и в отдаленных, труднодоступных районах, где отсутствуют постоянные источники электрической энергии. Существующие источники питания обладают рядом недостатков, которые затрудняют их эксплуатацию и не обеспечивают надежной и бесперебойной работы.

Изотопные источники электрической энергии, в которых используется термоэлектрический принцип преобразования тепловой энергии в электрическую, обладают высокой надежностью и позволяют получать достаточно высокие электрические параметры.

Рассматриваемый генератор является прототипом источника электрической энергии для автоматических радиометеорологических станций. Изготовленный экспериментальный образец с тепловым блоком на цери-144 позволил определить технические возможности генераторов, работающих на бета-радиоактивных изотопах с коротким периодом полураспада в регулируемом (выходная мощность постоянна) и нерегулируемом (выходная мощность падает) периоде.

Характеристика генератора

Изотопный термоэлектродгенератор на цери-144 имел активность изотопного блока на начало нерегулируемого периода, равную 17 500 *кюри*. Общий вид генератора представлен на рис. 5.

Электрическая выходная мощность в регулируемый период 5,0—5,6 *вт*, напряжение

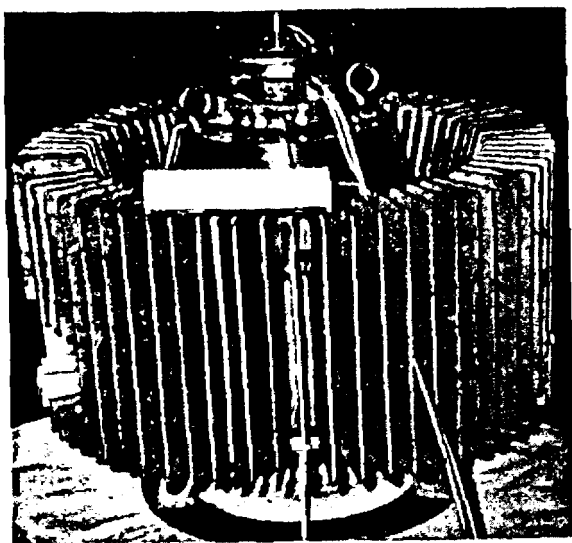


Рис. 5. Общий вид генератора на цери-144

3,5 *в*, к. п. д. всей установки 3,5—4%. В качестве преобразователя тепловой энергии в электрическую используется батарея термоэлементов на основе твердых растворов висмута; $\text{Bi}_2\text{Te}_3 + \text{Bi}_2\text{Se}_3$ (отрицательная ветвь) и $\text{Bi}_2\text{Te}_3 + \text{Sb}_2\text{Te}_3$ (положительная). Заданный уровень мощности обеспечивается специальным автоматическим устройством. Потребителем энергии служит аккумуляторная батарея емкостью 12 *а/ч*, которая питает радиометеорологическую станцию, работающую в импульсном режиме при напряжении 26 *в* и токе 6 *а*.

Радиационная защита выполнена в виде двух контейнеров — рабочего и транспортного. Защита рабочего контейнера рассчитана из условий обеспечения мощности дозы не более 1,0 *р/ч* на расстоянии 1 м от поверхности генератора. При размещении рабочего контейнера в транспортном мощность дозы снижается до уровня, не превышающего 10 *мр/ч* на расстоянии 1 м от поверхности последнего. Рабочий контейнер имеет съемное оребрение, транспортный — постоянное оребрение. Генератор может работать как в рабочем, так и в транспортном исполнении. В качестве защитных материалов применен вольфрам и свинец. Общий вес генератора в рабочем исполнении 400 *кг*, вес транспортного контейнера 1200—1400 *кг*.

Выбор основных параметров и конструкция генератора

Необходимая электрическая мощность генератора вычисляется из условий равенства суточного количества потребляемой и вырабатываемой электрической энергии. Активность изотопного блока определяется значением необходимой тепловой мощности и величиной энерговыделения на 1 распад с учетом поглощения гамма-излучения в препарате, ампуле и тепловом блоке.

При разработке конструкции особое внимание было обращено на обеспечение необходимой радиационной защиты, минимального температурного перепада от холодного спая термобатареи до окружающего воздуха, снижение веса и габаритов всего устройства в целом. Было рассмотрено несколько вариантов конструкций изделия при различных соотношениях толщины вольфрамового теплового блока и свинцовой радиационной защиты. Конструктивные варианты отличались способами замены термобатарей; способом теплового регулирования (излучение, тепловой шунт, теплопроводность изоляции); компоновкой и материалом радиационной защиты (сферическая и цилиндрическая геометрия); в качестве защитных материалов рассматривались свинец, вольфрам, обедненный уран.

Конструктивно генератор выполнен из следующих узлов: а) теплового и изотопного блока; б) термобатарей; в) теплового регулятора; г) устройства для обеспечения перегрузки термобатарей; д) корпуса; е) биологической защиты.

Тепловой блок предназначен для размещения в нем изотопного блока и представляет собой вольфрамовый цилиндр диаметром 100 *мм* с толщиной боковой стенки 20 *мм* и днища 40 *мм*. Цилиндр закрыт полусферической крышкой, которая крепится к цилиндру накладным кольцом. Изотопный блок представляет собой двойную ампулу, выполненную из нержавеющей стали Х18Н9Т, в виде двух коаксиальных цилиндров, внутри которых помещается стакан,

заполненный расплавом молибдата церия. Каждый цилиндр закрывается крышкой, заваривается аргоно-дуговой сваркой и проверяется

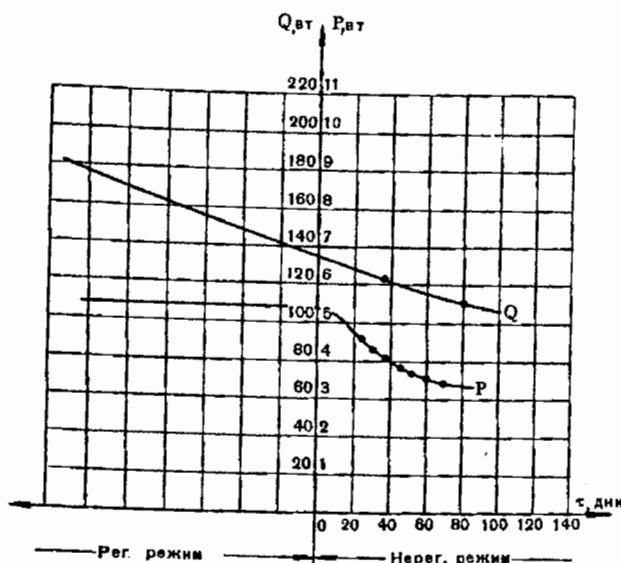


Рис. 6. Тепловая (Q) и выходная электрическая (P) мощности в зависимости от времени эксплуатации генератора

на герметичность. Тепловой блок установлен на термобатарее, составленной из 97 пар термоэлементов. Термобатарея крепится в специаль-

ческий корпус с приварными патрубками для размещения пенала с термобатареей. Сверху корпус закрыт крышкой со свинцовым наполнителем. Генератор имеет биологическую защиту, выполненную в виде рабочего и транспортного контейнеров. Система теплоотвода от контейнера к окружающему воздуху выполнена в виде развитой оребренной поверхности из алюминиевого сплава. Поверхность оребрения состоит из 64 прямоугольных ребер и крепится на рабочем контейнере при помощи стяжных болтов; оребрение позволяет обеспечить требуемый температурный перепад от окружающего воздуха к основанию термобатарей. В разъемных элементах конструкции осуществлена высокая степень обработки сопрягаемых поверхностей и обеспечено достаточное удельное давление в месте контакта.

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЙ РАСЧЕТ УСТАНОВКИ

Поле температур в цилиндрическом тепловом блоке определялось из решения дифференциального уравнения теплопроводности. Определялось также распределение тепловых потоков по отдельным элементам конструкции генератора. Это распределение зависит от режима работы термобатарей, вследствие чего были рассмотрены: режим холостого хода, номинальный режим, режим короткого замыкания.

Результаты теплового расчета установки сведены в табл. 4

Таблица 4

Режим	Температурный перепад на термобатарее	Тепловой поток через термобатарею, $вт$	Тепловой поток через остальные элементы конструкции, $вт$	Тепловой к. п. д.
Холостой ход	225	112,5	22,5	83,4
Номинальный	190	119	16	88
Короткое замыкание	170	121	14	89,6

Примечание: Температура холодных спаев принята равной $0^{\circ}C$, температура окружающей среды $+20^{\circ}C$. Электрическая мощность термобатарей при этом равна $5,2 вт$.

ном пенале и опирается на основание в виде цилиндрической медной пробки. С целью поддержания номинального температурного режима работы термобатарей в конструкции генератора предусмотрены органы теплового регулирования, состоящие из специальных экранов и привода регулятора с редуктором. Постоянство теплового потока через термобатарею (при понижении мощности изотопного блока) обеспечивается уменьшением излучающей поверхности теплового блока путем изменения положения экрана. График изменения тепловой мощности со временем представлен на рис. 6. Привод механизма теплового регулятора пружинный, с электрическим приводом. Тепловой блок, термобатарея и устройства для обеспечения перегрузки термобатарей заключены в цилиндри-

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ТЕПЛОТЫДЕЛЕНИЯ

Теплоотделение в блоке из церия-144 определяется бета-частицами церия-144 + пражеоидом-144 и гамма-излучением, поглощаемым в изотопном и тепловом блоках.

Пространственное распределение удельного теплоотделения за счет бета-излучения можно считать равномерным по объему ампулы. Утечкой тепла с тормозным излучением можно пренебречь, так как энергия тормозного излучения составляет $1-2\%$ от полной энергии, причем значительная ее часть поглощается в изотопном и тепловом блоках. Пространственное распределение удельного теплоотделения за счет гамма-излучения (это особенно важно для изотопов типа цезия-137) определяется соотношениями вида:

для гамма-излучения, поглощенного в веществе ампулы,

$$Q_{\gamma}(\bar{r}) = \frac{3,7 \cdot 10^{10}}{4\pi} K q \sum_E E n(E) \mu_a(E) \times \\ \times \int_V \frac{e^{-\mu(E)|\bar{r}-\bar{r}'|}}{(\bar{r}-\bar{r}')^2} V_a [\mu(E)|\bar{r}-\bar{r}'|] d\bar{r}'.$$

Здесь $Q(\bar{r})$ — тепловыделение в единице объема около точки с координатой \bar{r} , *вт/см³*; $K = 1,6 \cdot 10^{-13}$ *вт·сек/Мэв*; q — удельная активность препарата, *кюри/см³*; $n(E)$ — число гамма-квантов на 1 распад; V — объем активной части ампулы; E — энергия гамма-излучения; $\mu(E)$ и $\mu_a(E)$ — коэффициент ослабления гамма-излучения и коэффициент электронного преобразования в материале радиоактивного вещества соответственно; $V_a [\mu(E)|\bar{r}-\bar{r}'|]$ — фактор накопления поглощенной энергии для гамма-излучения в веществе препарата.

Аналогичные соотношения имеют место для гамма-излучения, поглощенного в стенках ампулы $Q_{\gamma}(\bar{r})$ и в тепловом блоке $Q_{\gamma}(\bar{r})$.

Полное тепловыделение определяется интегрированием выражений для $Q_{\gamma}(\bar{r})$, $Q_{\gamma}(\bar{r})$ и $Q_{\gamma}(\bar{r})$ по объему препарата, ампулы и теплового блока соответственно. Для номинального режима (конец регулируемого периода) полное тепловыделение составило 13,5 *вт* (17 500 *кюри*).

Тепловая мощность изотопного блока была измерена на специально изготовленном калориметре, давшем хорошее совпадение с расчетными данными.

Необходимая толщина гетерогенной защиты определялась из соотношения вида

$$\frac{[P]}{K} = q \sum K_{\gamma_i} L_i B_i, \quad (1)$$

где $[P]$ — значение предельно допустимой мощности дозы; K — принятый в расчете коэффициент запаса; q — удельная активность препарата; K_{γ_i} — парциальная гамма-постоянная; L_i — функция излучения цилиндрического источника за защитой, учитывающая геометрический фактор, самопоглощение в источнике и ослабление в защите без учета рассеянного излучения (расчет функции излучения выполнен на электронной вычислительной машине); B_i — дозовый фактор накопления, учитывающий многократное рассеяние гамма-излучения в веществе радиоактивного препарата и защиты.

Для дозового фактора накопления в гетерогенной среде использовалось выражение

$$B_i = \sum_{n=1}^N B_n \left(\sum_{h=1}^n \mu_{ih} d_h \right) - \sum_{n=2}^N B_n \left(\sum_{h=1}^{n-1} \mu_{ih} d_h \right), \quad (2)$$

где N — число слоев в гетерогенной защите; μ_{ih} — коэффициент ослабления в K -слое; d_h — толщина слоя K .

Выражения вида (1) и (2) использовались также для определения мощности дозы на поверхности защиты. Следует заметить, что определенные этим методом толщины защиты согласуются с толщинами, полученными расчетом по методу Монте-Карло. Расчетные величины для двух вариантов защиты приведены в табл. 5.

Таблица 5

Направление	Вариант	Вид контейнера	
		Рабочий	Транспортный
Осевое	1	Pb — 12 см	Pb — 9,8 см
	2	W — 1 см + Pb — 10,1 см	Pb — 9,9 см
Радиальное	1	Pb — 11,8 см	Pb — 9,8 см
	2	W — 2 см + Pb — 8,2 см	Pb — 9,9 см

Примечание: Общая активность источника по Ce^{144} равна 30 000 *кюри*; мощность дозы на расстоянии 1 м от рабочего контейнера 1 *р/ч*, от транспортного 10 *мр/ч*.

Расчет радиационной защиты

При расчете защиты использован многогрупповой метод, где вначале определялись парциальные гамма-постоянные, соответствующие гамма-линиям препарата $Ce^{144} + Pr^{144}$. Возникающее тормозное излучение учитывалось путем замены непрерывного спектра дискретным, для каждой линии которого определялась соответствующая гамма-постоянная. Полученная совокупность парциальных гамма-постоянных обрабатывалась по методу конкурирующих линий, что позволило существенно сократить процесс расчета.

Термобатарея и преобразователь напряжения

В качестве термоэлектрического преобразователя использовалась батарея из 97 термоэлементов сечением 5×5 *мм* и высотой 20 *мм*. В качестве материала термоэлементов использованы твердые растворы на основе тройных сплавов $Sb_2Te_3 + Bi_2Te_3$ и $Bi_2Te_3 + Bi_2Se_3$. Коммутация осуществлена припоем, позволяющим работать в температурном интервале до 300° C. Для предохранения термоэлементов от окисления при высоких температурах горячие спаи покрыты тонким слоем специальной эмали.

Тепловые потери через изоляцию термобатарей и конструкционные элементы учитывались при расчете общих тепловых утечек генератора. Испытания генератора, проведенные с электри-

контролировалась приборами, установленными на выходе и позволяющими определять основные параметры — напряжение, э. д. с., ток. Работа всей системы контролировалась автома-

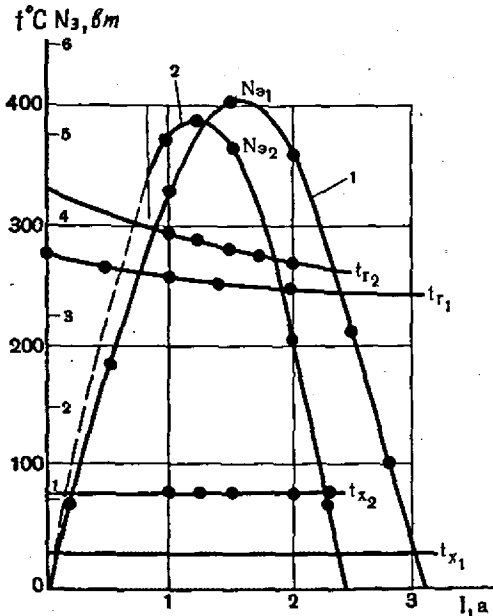


Рис. 7. Нагрузочная характеристика генератора в регулируемом режиме: 1 — температура окружающего воздуха +10° С; 2 — температура окружающего воздуха +60° С

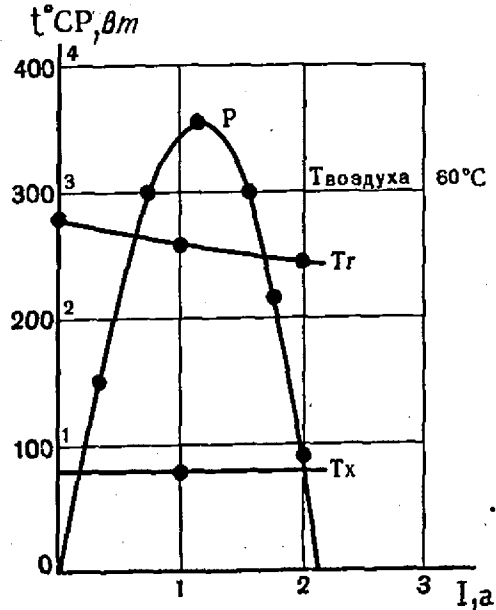


Рис. 8. Нагрузочная характеристика генератора в нерегулируемом режиме

ческим имитатором теплового блока и в условиях эксплуатации, показали хорошее согласие расчетных и экспериментальных данных. На рис. 7 приведены нагрузочные характеристики генератора в регулируемом периоде, а на рис. 8 — в нерегулируемом периоде после 50 дней работы в этом режиме.

Для получения постоянного напряжения 26 в в данной установке использован преобразователь на транзисторах. Накопление электрической энергии осуществляется при помощи серебряно-цинковых аккумуляторов. Работа преобразователя напряжения на аккумуляторную батарею определяется режимом работы станции. К. п. д. преобразователя оказался равным 75%; к. п. д. аккумуляторов — 75 ÷ 80%. Более высокий общий к. п. д. преобразования — 98% — получен при использовании схемы переключения аккумуляторов с параллельного соединения на последовательное.

ЭКСПЛУАТАЦИЯ ГЕНЕРАТОРА

Генератор с блоком аккумуляторов и преобразователем напряжения использован в качестве источника питания автоматической радиометеостанции, расположенной в средней полосе Советского Союза. Для снижения мощности дозы вокруг генератора последний несколько заглублен в землю. Работа генератора

тической записью выходных параметров системы преобразования напряжения и аккумуляторных батарей. Станция включалась на рабочий режим через каждые два часа. Выходная

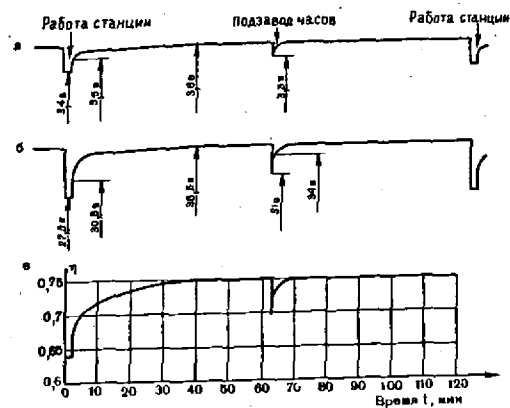


Рис. 9. Характер изменения входного напряжения преобразователя (а), выходного напряжения на батарее (б) и к. п. д. преобразователя (в) за один цикл работы станции

мощность в конце регулируемого периода составила 5,4 вт при напряжении 3,6 в. На рис. 9 приведен характер изменения (за цикл работы станции) входного напряжения преобразова-

теля (рис. 9, а), выходного напряжения на батарее (рис. 9, б) и к. п. д. преобразователя (рис. 9, в).

При двухчасовой цикличности в нерегулируемом периоде станция проработала в течение двух месяцев, затем была переведена на трехчасовой режим. В процессе опытной эксплуатации постоянно велось наблюдение за климатическими условиями, с которыми связывался режим теплового сброса. В настоящее время установка продолжает находиться в эксплуатации и при падении мощности будет переведена на более длительный перерыв между сеансами.

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Barnat *et al.* *Nucleonics*, 17, No. 5, 166 (1959).
2. D. Q. Harvey and J. G. Horse. *Nucleonics*, 19, No. 4, 62 (1961).

3. D. G. Harvey and R. T. Carpenter. *IAS Paper*, No. 61, 18 (1962).
4. А. Ф. Хоффе. Полупроводниковые термоэлементы. М., Изд-во АН СССР, 1956.
5. Б. С. Дженелов и Л. К. Пекер. Схемы распада радиоактивных ядер. М., Изд-во АН СССР, 1958.
6. Г. М. Фрадкин и Е. Е. Кулиш. Источники α -, β -, γ - и нейтронных излучений. М., Госатомиздат, 1961.
7. J. S. Geiger *et al.* *Nucl. Phys.*, 28, 387—406 (1961).
8. К. К. Аглинцев, В. М. Кодюков, А. Ф. Лызов, Ю. В. Сивинцев. Прикладная дозиметрия. М., Госатомиздат, 1962.
9. С. С. Кутателадзе. Основы теории теплообмена. М., Машгиз, 1962.
10. А. И. Бурштейн. Физические основы расчета полупроводниковых термоэлектрических устройств. М., Физматгиз, 1962.
11. В. Ю. Рогинский. Электропитание радиоустройств. М., Связьиздат, 1963.
12. W. Collin *et al.* *Phys. Lett.*, 5, 329 (1963).
13. И. Г. Гусев, Е. Е. Ковалев и др. Защита от излучения протяженных источников. М., Госатомиздат, 1961.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—ANHOTACIJA—RESUMEN

A/318 URSS

Radioisotope-fuelled thermoelectric generators

By A. N. Voronin *et al.*

The paper opens with descriptions of the design of a thermoelectric generator operating under vacuum, and of its radioisotopic heat source. The question of protection (shielding) against radiation is also discussed.

This is followed by an account of the methods used for testing the device and of the test bench.

Test bench results (voltage-current characteristics, temperature distribution, activity, etc.) are presented in tables and diagrams.

A/318 URSS

Généatrices thermoélectriques à source de chaleur isotopique

par A. N. Voronin *et al.*

Le mémoire décrit la conception d'une génératrice thermoélectrique fonctionnant sous vide et de sa

source de chaleur constituée par des radioéléments. Les problèmes de la protection contre les rayonnements (bouclier) sont aussi discutés.

On expose ensuite les méthodes employées pour l'essai de l'installation et on décrit le banc d'essais.

Les résultats des essais (caractéristiques courant-tension, distribution des températures, activité, etc.) sont présentés sous forme de tableaux et de graphiques.

A/318 URSS

Generadores termoeléctricos con fuente de calor radioisotópica

por A. N. Voronin *et al.*

En la memoria se describe el diseño de un generador termoeléctrico que opera en vacío, y la fuente de calor radioisotópica. También se consideran los problemas del blindaje contra la radiación.

Se expone la técnica utilizada para las pruebas de la instalación y se describe el circuito de ensayo.

Se dan los resultados de las pruebas (características voltaje-corriente, distribución de temperaturas, actividad, etc.) en forma de tablas y gráficos.

Direct conversion of heat to electricity

Chairman: I. G. Gverdtiteli (USSR)

Paper P/45 (presented by P. Ricateau)

DISCUSSION

S. A. STEPANOV (USSR): What is the duration of a test on the 10 MW MHD generator of Electricité de France which you refer to in the first part of your paper?

P. RICATEAU (France): At present, the test usually lasts half an hour. It could definitely go on longer, since it is estimated that the converter nozzle could stand a total of 10-20 hours of operation. It is preferred, however, to conduct a series of short tests, modifying operational conditions from one test to another.

S. A. STEPANOV (USSR): In addition to potassium, what other ionizing seeding agents were used in this generator?

P. RICATEAU (France): Use has been made only of potassium, in the form of potash dissolved in methyl alcohol.

Paper P/132 (presented by P. Dunn)

DISCUSSION

I. P. STAKHANOV (USSR): What is the power density per square centimetre on the cathode surface under various conditions?

P. D. DUNN (United Kingdom): In the case of the UC-ZrC emitters, and at a temperature of 2 000 °C, for example, the power density is about 12 W/cm².

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (USSR): Why were the tests on your experimental units so short?

P. D. DUNN (United Kingdom): The experiments were carried out in one channel of a large research reactor and the emitter temperature was varied by adjusting the reactor power. This required exclusive use of the reactor and hence the test time available was necessarily short. As mentioned in the paper, a rig design has now been completed in which provision is made for automatic control of variation in position in the reactor core, to enable the temperature of the emitter to be kept constant during variation of the reactor power. Rigs of the latter type can be operated for long periods.

V. I. SUBBOTIN (USSR): Was the temperature of the cathode measured during the experiment?

P. D. DUNN (United Kingdom): The temperature at the centre of the emitter was measured in all cases by means of a W-WRe thermocouple (BeO-insulated and Ta-sheathed). The thermocouple was not extended to the hottest portion and temperatures were measured up to 2 000 °C. A correction for longitudinal and radial variations was applied, to enable the emitter surface temperature to be measured. These corrections were based on the results of separate experiments in the laboratory, in which we used a thermocouple and an optical pyrometer in conjunction with eddy-current heating.

R. W. PIDD (United States of America): My questions relate to the effect of fission product retention on the thermionic fuel. In your paper, you mention that two fuel materials are preferred: (a) hot pressed and sintered UC-ZrC and (b) tungsten-UO₂ cermet. Is it your plan to encourage the release of fission products from these fuels to ensure dimensional stability of the fuel? Or do you intend to retain fission products, possibly allowing for some expansion of the fuel after high burn-up? Do you regard fuel element swelling as a serious problem when a cladding is provided for either the carbide or the tungsten fuel?

P. D. DUNN (United Kingdom): In our first experiments we used unclad sintered UC-ZrC, considering it likely that at the high operating temperatures (2 300 °C centre temperature) there would be complete fission gas release. However, post-irradiation examination showed that there was considerable gas retention, which we believe would seriously limit the life of the device, owing to the reduction in mechanical strength of the material at high temperatures and the consequent swelling and distortion. It is for this reason that we have turned to the use of refractory emitters, either as a cladding or in cermet form. In this way the operating temperature is reduced by 300 °C or so, and hence the material strength is improved. Moreover, in the case of cladding, it is possible to arrange voidage within the can to allow for distortion. Our experience with stainless steel cermets at 650 °C has shown that, by arranging for a good distribution of the ceramic component and incorporating some porosity, 12% burn-up is possible. We see no reason why the same technique should not be applied to uranium dioxide in tungsten at higher temperatures.

Paper P/218 (presented by H. M. Dieckamp)

DISCUSSION

V. A. KUZNETSOV (USSR): In the SNAP 10A system, samarium is used as a burn-out absorber to compensate for change in reactivity due to redistribution of hydrogen. What is the amount of excess reactivity thus compensated?

H. M. DIECKAMP (United States of America): Samarium is used in SNAP 10A as a burnable poison. Since I am uncertain of the exact reactivity effect, I would prefer not to speculate.

V. A. KUZNETSOV (USSR): Is the SNAP 10A system fully self-regulating on the basis of temperature effect, or does the regulation system make use of sensitive thermocouple elements of the conventional type and ionization chambers with outputs to corresponding electronic circuits?

H. M. DIECKAMP (United States of America): SNAP 10A is controlled on the basis of outlet temperature after start-up during the first 3 days in orbit. At the end of this control period all control functions are terminated and power stability depends only on inherent temperature coefficients of reactivity.

Y. D. GUBANOV (USSR): What are the main reasons for not using tellurides in the converter for the SNAP 10A system and what are the prospects for the future use of tellurides in such devices?

H. M. DIECKAMP (United States of America): Silicon-germanium alloy was chosen for the SNAP 10A power conversion because of its superior mechanical and metallurgical characteristics. In general, it is our conclusion that these considerations, and also the higher temperature capability of Si-Ge, are more important than the higher figures of merit (Z) for the tellurides.

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (USSR): Does the SNAP 10A installation in the reactor-converter complex operate with nuclear heating?

H. M. DIECKAMP (United States of America): The entire flight system has operated on electrical heat. Reactors have been operated separately. The combined system will operate on nuclear heat later this year.

G. BEN DAVID (Israel): Does the speaker foresee any terrestrial uses for devices of the SNAP type?

H. M. DIECKAMP (United States of America): I can visualize many terrestrial applications for the devices, especially in extremely remote areas (e.g. in the Arctic) where, although not yielding what is normally considered economic nuclear power, they would be useful in coping with problems arising in such remote places.

G. BEN DAVID (Israel): What solutions are being proposed for dealing with the health hazard from the residual activities of these unshielded systems in outer space?

H. M. DIECKAMP (United States of America): This problem has been considered extensively throughout the development programme and I can state that safety considerations have been paramount in selecting the various design features that went into the system. Among other things, we have carried out hypervelocity impact studies and experiments on re-entry heating. None of the analysis of this work indicates that there will be any problem connected with contamination of space or with the use of these devices. It should be borne in mind that, by shutting down the reactor while it is still in space, a considerable amount of time can be gained for the decay of fission products in orbit. For example, in the case of the SNAP 10A, after one year of operation and 100 years' existence in orbit the total fission product activity would have decayed to approximately 1 curie or less.

J. LABEYRIE (France): What power levels do you expect to achieve in future by using direct conversion reactors of the type which you describe?

H. M. DIECKAMP (United States of America): As indicated in the paper, the technology already exists for creating systems of 10-20 kW(e) and 3 W/lb.

Paper P/873 (presented by N. N. Ponomarev-Stepnoy)

DISCUSSION

H. M. DIECKAMP (United States of America): What are the dimensions and weight of "Romashka"?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (USSR): Since "Romashka" comprises a reactor, a converter, a control system, ancillary technological facilities and rooms for testing units, it is difficult to state the weight of the installations. The diameter of the reactor is about 0.5 m.

H. M. DIECKAMP (United States of America): Could you comment on your experience with nuclear operations in this system?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (USSR): Test operations with "Romashka" have been going on for about 500 hours. Since 14 August 1964, it has been producing power along with nuclear heat. The power level is about 500 W. The measured power characteristics are in satisfactory agreement with the design parameters.

R. W. PIDD (United States of America): You mention that "Romashka" can utilize either thermoelectric or thermionic conversion. Have you tested any thermionic converters in conjunction with the latter type of heat source?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (USSR): In this installation we have used only thermoelectric conversion.

H. PEARLMAN (United States of America): Why was UC_2 chosen as the fuel instead of UC?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (USSR): The choice of UC_2 as the core material of the fuel elements was based on the fact that the structural material for the reactor core is graphite.

H. PEARLMAN (United States of America): Are the UC_2 fuel pieces affected by thermal cycling up to $1900^\circ C$, the indicated maximum temperature?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (USSR): The maximum temperature of the core of the "Romashka" reactor in the nuclear tests was $1800^\circ C$. However, the UC_2 samples were tested at even higher temperature, including some under non-steady conditions.

H. PEARLMAN (United States of America): Can you comment further on the manner in which sublimation, interface diffusion and radiation damage have influenced the selection of reactor and converter materials?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (USSR): In the design of "Romashka", detailed studies were made on questions of volatility, contact interactions and radiation damage of reactor and converter materials. It was on the basis of these investigations that we made a selection of materials performing satisfactorily under irradiation and high-temperature conditions.

R. W. PIDD (United States of America): I would like to comment on what I consider to be the most important problem in thermionic reactors, namely the question whether or not fuel elements can be operated at $1800^\circ C$. There are a number of factors which limit fuel operation at high temperatures, e.g., the great increase in fission-product pressure, the decrease in material strength and the resulting prevalence of destructive forces, and so on.

In the United States considerable effort has been expended on seeking solutions to the problem of fuel element swelling caused by the generation of gaseous fission products within the fuel. High-temperature fuel operation has two adverse effects on the fuel. First, the fission-product gas pressure is enhanced, increasing the force which causes swelling; second, materials strength is reduced at high temperature, lowering the ability to contain fission-product pressure.

In the production of very porous UC-ZrC fuels we find cold-pressing to be substantially superior to

hot-pressing in the fabrication and control of very fine interconnected pores within the fuels. Fabrication using the method of isostatic pressing provides a high degree of uniformity in fuel properties.

Vapour-deposited tungsten has been extensively studied as a cladding material and found to be suitable from the standpoint of fabrication and chemical and physical properties. Even though it is strong compared with other cladding materials at $1800^\circ C$, its tensile strength is still sufficiently low (approximately 2000 psi) for fission-product venting apparently to be required for the clad fuel elements.

Compatibility between fuel materials and clads has been extensively studied. As a general rule only tungsten is compatible with uranium dioxide at $1800-2000^\circ C$. The other metals selected for study, Ta, Nb, Mo, have compatibility limits below $1800^\circ C$ relative to uranium dioxide. For the carbide fuel, only tungsten is compatible with UC-ZrC at $1800^\circ C$. The compatibility limits of the other metals, i.e., Ta, Nb, Mo, relative to the carbide are below $1400^\circ C$.

The reasons quoted for the incompatibility of Ta, Nb and Mo with high-temperature fuels vary according to the fuel and clad specimen and in many cases examinations are conducted for 1000 hour test periods to determine the mode of interaction. At $1800^\circ C$, the mode of interaction between a uranium dioxide fuel and its clad is a substantial grain-boundary penetration in the case of Ta, Nb and Mo. Grain-boundary penetration can, in turn, result in a concentration of fuel on the emitter surface sufficient to have limited effects on the work function and thermionic performance. More important, the presence of fuel in the grain boundaries of the clad can weaken the clad structure and lead to enhanced radiation damage effects.

At $1800^\circ C$, contact of UC-ZrC with Ta, Nb and Mo results in the formation of a liquid phase (uranium) for stoichiometric compounds. In the case of carbon-rich carbides, such as UC_2 , or UC-ZrC containing excess carbon, operation at $1800^\circ C$ causes excess carbide-layer formation. The deleterious reactions observed at $1800^\circ C$ persist at $1600^\circ C$.

Pure tungsten is compatible in all respects, as noted, with both uranium dioxide and stoichiometric UC-ZrC. On the other hand, the alloys of tungsten, such as W-Mo, W-Nb, and W-Ta, exhibit the compatibility rules characteristic of the additives relative to the carbides, and hence are unsuitable as clads at $1800^\circ C$.

Compte rendu de la séance 4.1

Conversion directe de la chaleur en électricité

Président: I. G. Gverdtsiteli (URSS)

Mémoire P/45 (présenté par P. Ricateau)

DISCUSSION

S. A. STEPANOV (URSS): Quelle est la durée d'une expérience avec le générateur MHD de 10 MW de l'Electricité de France mentionné dans la première partie de votre mémoire?

P. RICATEAU (France): Pour le moment, l'expérience dure généralement une demi-heure. Elle pourrait certainement se prolonger plus longtemps, car on estime que la tuyère du convertisseur pourrait supporter un fonctionnement total de 10 à 20 h. On préfère cependant faire une série d'expériences courtes, en modifiant les conditions expérimentales d'un essai à l'autre.

S. A. STEPANOV (URSS): En plus du potassium, quels autres agents d'ensemencement ionisant avez-vous utilisés dans ce générateur?

P. RICATEAU (France): Seul le potassium a été utilisé, sous forme de potasse dissoute dans de l'alcool méthylique.

Mémoire P/132 (présenté par P. Dunn)

DISCUSSION

I. P. STAKHANOV (URSS): Quelle est la densité de puissance par centimètre carré sur la cathode dans différentes conditions?

P. D. DUNN (Royaume-Uni): Dans le cas des émetteurs UC-ZrC, et à une température de 2 000 °C, par exemple, la densité de puissance est d'environ 12 W/cm².

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): Pourquoi les essais sur vos unités expérimentales ont-ils été si courts?

P. D. DUNN (Royaume-Uni): Les expériences ont été faites dans un canal d'un grand réacteur de recherche et la température de l'émetteur était modifiée en ajustant la puissance du réacteur. Cela exigeait une utilisation exclusive du réacteur, et le temps disponible pour les essais était donc nécessairement court. Comme l'indique le mémoire, nous avons maintenant achevé les plans d'un dispositif qui permettra de commander automatiquement la variation de position dans le cœur du réacteur, ce qui permettra de maintenir constante la température de l'émetteur pendant les

variations de puissance du réacteur. Des dispositifs de ce type peuvent fonctionner pendant de longues périodes.

V. I. SUBBOTIN (URSS): La température de la cathode était-elle mesurée pendant l'expérience?

P. D. DUNN (Royaume-Uni): La température au centre de l'émetteur était mesurée dans tous les cas à l'aide d'un thermocouple W+WRe (isolé au BeO et gainé de Ta). Le thermocouple n'allait pas jusqu'à la partie la plus chaude, et les températures étaient mesurées jusqu'à 2 000 °C. On a fait une correction pour les variations longitudinales et radiales, pour permettre la mesure de la température de surface de l'émetteur. Ces corrections étaient basées sur les résultats de mesures séparées au laboratoire, dans lesquelles nous utilisons un thermocouple et un pyromètre optique en liaison avec un chauffage par induction.

R. W. PIDD (Etats-Unis d'Amérique): Ma question est liée à l'effet de rétention des produits de fission sur le combustible thermo-ionique. Dans votre mémoire, vous indiquez que deux matériaux combustibles sont préférés: a) UC-ZrC comprimé à chaud et fritté, et b) un cermet tungstène-UO₂. Avez-vous l'intention d'encourager le dégagement des produits de fission de ces combustibles pour assurer la stabilité dimensionnelle du combustible? Ou bien avez-vous l'intention de retenir les produits de fission, en prévoyant peut-être une certaine dilatation du combustible après combustion élevée? Pensez-vous que le gonflement de l'élément de combustible pose un problème sérieux quand il y a une gaine pour le combustible à carbure ou tungstène?

P. D. DUNN (Royaume-Uni): Dans nos premières expériences, nous avons utilisé UC-ZrC fritté non gainé en pensant qu'il était probable qu'aux températures élevées de fonctionnement (température au centre de 2 300 °C) il y aurait dégagement complet des gaz de fission. Cependant, les examens après irradiation ont montré qu'il y avait une rétention considérable des gaz, ce qui, à notre avis, devrait limiter sérieusement la durée de vie du dispositif, en raison de la diminution de la résistance mécanique du matériau à haute température, et du gonflement et de la distorsion qui doivent en résulter. C'est pour cette raison que nous avons employé des émetteurs réfractaires, soit sous forme de gaine soit sous forme de cermet. De cette façon, la température de fonc-

tionnement est réduite d'environ 300 °C et la résistance du matériau est améliorée. De plus, dans le cas du gainage, il est possible d'avoir un volume vide dans la gaine pour permettre les déformations. Notre expérience avec les cermetts d'acier inoxydable à 650 °C a montré qu'avec une bonne distribution du composant céramique et en conservant une certaine porosité, un taux de combustion de 12% est possible. Il n'y a pas de raison que la même technique ne s'applique pas à UO₂ dans du tungstène à plus haute température.

Mémoire P/218 (présenté par H. M. Dieckamp)

DISCUSSION

V. A. KUZNETSOV (URSS): Dans le système SNAP 10A, le samarium est utilisé comme absorbeur consommable pour compenser les variations de réactivité dues à la redistribution de l'hydrogène et éviter la caléfaction. Quelle est la quantité de réactivité en excès ainsi compensée?

H. M. DIECKAMP (Etats-Unis d'Amérique): Le samarium est utilisé dans le SNAP 10A comme poison consommable. Comme je ne suis pas certain de l'effet exact de réactivité, je préfère ne pas indiquer de chiffre.

V. A. KUZNETSOV (URSS): Le système SNAP 10A est-il entièrement auto-régulateur en fonction de l'effet de température, ou bien le système de régulation utilise-t-il des thermocouples sensibles de type classique et des chambres d'ionisation branchées sur des circuits électroniques correspondants?

H. M. DIECKAMP (Etats-Unis d'Amérique): Le SNAP 10A est contrôlé par la température de sortie après le démarrage pendant les trois premiers jours sur orbite. A la fin de cette période de contrôle, toutes les fonctions de contrôle prennent fin, et la stabilité de puissance ne dépend que des coefficients inhérents de température de réactivité.

Y. D. GUBANOV (URSS): Quelles sont les raisons principales pour lesquelles vous n'utilisez pas de tellures dans le convertisseur pour le système SNAP 10A, et quelles sont les probabilités d'utiliser à l'avenir des tellures dans de tels dispositifs?

H. M. DIECKAMP (Etats-Unis d'Amérique): On a choisi un alliage silicium-germanium pour la conversion d'énergie du SNAP 10A en raison des caractéristiques mécaniques et métallurgiques supérieures de cet alliage. En général, nous sommes d'avis que ces considérations, et aussi la capacité du Si-Ge de travailler à plus haute température, sont plus importantes que les avantages résultant des valeurs des caractéristiques (Z), plus élevées pour les tellures.

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): L'installation SNAP 10A dans le complexe réacteur-convertisseur fonctionne-t-elle avec un chauffage nucléaire?

H. M. DIECKAMP (Etats-Unis d'Amérique): L'ensemble du système de vol a fonctionné avec chauffage électrique. Les réacteurs ont fonctionné séparément. Le système combiné fonctionnera avec chauffage nucléaire à la fin de la présente année.

G. BEN DAVID (Israël): L'orateur prévoit-il des applications terrestres pour des dispositifs du type SNAP?

H. M. DIECKAMP (Etats-Unis d'Amérique): Je peux envisager de nombreuses applications terrestres pour ces dispositifs, en particulier dans les régions très isolées (par exemple l'Arctique) où, bien que ne fournissant pas ce que l'on considère habituellement comme de l'énergie nucléaire économique, ils seraient utiles pour faire face aux problèmes qui se posent dans de telles régions isolées.

G. BEN DAVID (Israël): Quelles sont les solutions proposées pour faire face aux risques radiologiques dus aux activités résiduelles dans l'espace de ces systèmes non protégés?

H. M. DIECKAMP (Etats-Unis d'Amérique): Ce problème a fait l'objet d'études importantes au cours de toute l'exécution du programme de développement et je peux déclarer que les considérations de sécurité ont joué un rôle capital dans le choix des divers concepts adoptés pour le système. Nous avons fait notamment des études sur les impacts à de très grandes vitesses et fait des expériences sur l'échauffement à la rentrée. L'analyse de ce travail n'a mis en évidence aucun problème lié à la contamination de l'espace ou à l'utilisation de ces dispositifs. Il faut se rappeler qu'en arrêtant le réacteur quand il est encore dans l'espace on peut gagner un temps considérable en orbite pour la décroissance des produits de fission. Par exemple, dans le cas du SNAP 10A, après un an de fonctionnement et 100 années d'existence sur orbite, l'activité totale des produits de fission aurait décré jusqu'à une valeur d'environ 1 Ci ou, peut-être, moins.

J. LABEYRIE (France): Quels niveaux de puissance pensez-vous atteindre à l'avenir avec des réacteurs à conversion directe du type que vous avez décrit?

H. M. DIECKAMP (Etats-Unis d'Amérique): Comme l'indique le mémoire, nous disposons déjà de la technologie nécessaire pour créer des systèmes de 10 à 20 kW(e), et de 3 W/lb.

Mémoire P/873

(présenté par N. N. Ponomarev-Stepnoy)

DISCUSSION

H. M. DIECKAMP (Etats-Unis d'Amérique): Quelles sont les dimensions et quel est le poids de « Romashka »?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): Comme Romashka comprend un réacteur, un convertisseur, un système de commande, des installations technologiques

auxiliaires et des espaces pour des unités d'essai, il est difficile de donner le poids des installations. Le diamètre du réacteur est d'environ 0,5 m.

H. M. DIECKAMP (Etats-Unis d'Amérique): Pourriez-vous faire quelques commentaires sur l'expérience que vous avez acquise avec le fonctionnement nucléaire de ce système?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): Les essais avec Romashka ont duré environ 500 h. Depuis le 14 août 1964, ce système a produit de l'énergie en même temps que de la chaleur nucléaire. Le niveau de puissance est voisin de 500 W. Les caractéristiques de puissance mesurées sont en bon accord avec les valeurs nominales.

R. W. PIDD (Etats-Unis d'Amérique): Vous mentionnez que Romashka peut utiliser une conversion thermoélectrique ou une conversion thermo-ionique. Avez-vous essayé des convertisseurs thermo-ioniques avec ce dernier type de source de chaleur?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): Dans cette installation nous n'avons utilisé que la conversion thermoélectrique.

H. PEARLMAN (Etats-Unis d'Amérique): Pourquoi avez-vous choisi UC_2 comme combustible au lieu de UC?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): Le choix de UC_2 comme matériau central des éléments de combustible est dû au fait que le matériau de structure pour le cœur du réacteur est le graphite.

H. PEARLMAN (Etats-Unis d'Amérique): Les pièces de combustible en UC_2 sont-elles affectées par le cyclage thermique jusqu'à 1 900 °C, température maximale indiquée?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): La température maximale du cœur du réacteur Romashka pendant les essais nucléaires a été de 1 800 °C. Cependant les échantillons de UC_2 ont été essayés à plus haute température, y compris certains essais en conditions dynamiques.

H. PEARLMAN (Etats-Unis d'Amérique): Pouvez-vous faire quelques commentaires complémentaires sur la façon dont la sublimation, la diffusion à l'interface et l'action des rayonnements ont influencé le choix des matériaux pour le réacteur et le convertisseur?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): Dans l'étude de Romashka on a étudié avec soin les questions de volatilité, d'interactions aux contacts et d'action des radiations sur les matériaux du réacteur et du convertisseur. C'est sur la base de ces études que nous avons choisi les matériaux qui se comportent de façon satisfaisante sous irradiation et à haute température.

R. W. PIDD (Etats-Unis d'Amérique): Je voudrais faire quelques observations sur le problème que je

considère comme le plus important pour les réacteurs thermo-ioniques, c'est-à-dire la question de savoir si les éléments de combustible peuvent ou non fonctionner à 1 800 °C. Il y a un certain nombre de facteurs qui limitent l'utilisation du combustible à haute température, par exemple la forte augmentation de pression des produits de fission, la diminution de résistance des matériaux et l'importance correspondante des forces de destruction, etc.

Aux Etats-Unis des efforts considérables ont été faits pour trouver des solutions au problème du gonflement des éléments de combustible provoqué par la production de produits de fission gazeux à l'intérieur du combustible. Le fonctionnement du combustible à haute température a deux effets néfastes sur le combustible. D'abord, la pression des produits de fission gazeux est augmentée, ce qui accroît les forces qui provoquent le gonflement; ensuite, la résistance des matériaux décroît à haute température, ce qui diminue la capacité de résistance à la pression des produits de fission.

Pour produire des combustibles UC-ZrC très poreux, nous avons trouvé que la compression à froid était nettement supérieure à la compression à chaud pour la fabrication et le contrôle de pores très fins interconnectés dans les combustibles. La fabrication par des méthodes de compression isostatique assure une uniformité élevée des propriétés du combustible.

On a consacré de nombreuses études au tungstène déposé en phase vapeur comme matériau de gainage, et on a trouvé qu'il constituait un matériau acceptable au point de vue fabrication et propriétés chimiques et physiques. Bien qu'il soit résistant par rapport à d'autres matériaux de gainage à 1 800 °C, sa résistance à la traction est suffisamment faible (environ 2 000 psi) pour qu'il soit apparemment nécessaire de permettre l'évacuation des produits de fission vers l'extérieur des éléments de combustible gainés.

La compatibilité entre les matériaux combustibles et les gaines a fait l'objet de nombreuses études. En règle générale, seul le tungstène est compatible avec le dioxyde d'uranium à 1 800-2 000 °C. Les autres matériaux choisis pour l'étude — Ta, Nb, Mo — ont des limites de compatibilité inférieures à 1 800 °C avec le dioxyde d'uranium. Pour le combustible carbure, seul le tungstène est compatible avec UC-ZrC à 1 800 °C. Les limites de compatibilité des autres métaux, par exemple Ta, Nb, Mo, par rapport au carbure sont inférieures à 1 400 °C.

Les raisons citées pour l'incompatibilité de Ta, Nb, et Mo avec les combustibles à haute température varient selon les échantillons de combustible et de gaine, et dans de nombreux cas les examens sont poursuivis pendant des périodes d'essai de 1 000 h pour déterminer le mode d'interaction. A 1 800 °C, le mode d'interaction entre un combustible de dioxyde

d'uranium et sa gaine est une pénétration substantielle aux joints de grains dans le cas de Ta, Nb et Mo. La pénétration aux joints de grains peut, à son tour, conduire à une concentration de combustible à la surface émettrice suffisante pour avoir des effets limités sur le travail d'extraction et les caractéristiques thermo-ioniques. De plus, la présence de combustible aux joints de grains de la gaine peut affaiblir la structure de la gaine et provoquer une augmentation des dégâts par irradiation.

A 1 800 °C, le contact de UC-ZrC avec Ta, Nb et Mo conduit à la formation d'une phase liquide (uranium) pour les composés stoechiométriques.

Dans le cas des carbures riches en carbone, tels que UC₂ ou UC-ZrC contenant un excès de carbone, le fonctionnement à 1 800 °C provoque la formation d'une couche de carbure en excès. Les réactions nuisibles observées à 1 800 °C persistent à 1 600 °C.

Le tungstène pur est compatible à tous égards, comme nous l'avons noté, avec le dioxyde d'uranium et avec UC-ZrC stoechiométrique. D'autre part, les alliages de tungstène, tels que Tu-Mo, Tu-Nb, et Tu-Ta, présentent les règles de compatibilité caractéristiques des agents d'addition par rapport aux carbures et sont donc inutilisables comme matériaux de gainage à 1 800 °C.

Протокол заседания 4.1

Прямое преобразование тепловой энергии в электрическую

Председатель: И. Г. Гвердцители (СССР)

Доклад P/45 (представил П. Рикато)

ДИСКУССИЯ

С. А. СТЕПАНОВ (СССР): Какова продолжительность испытания МГД-генератора мощностью 10 Мет фирмы «Электрисите де Франс», о котором Вы упоминаете в первой части Вашего доклада?

П. РИКАТО (Франция): В настоящее время продолжительность испытания, как правило, составляет полчаса. Нет сомнения, что продолжительность испытания можно увеличить, поскольку произведенная оценка показывает, что рабочий ресурс сопла преобразователя составляет всего от 10 до 20 ч. Однако предпочитают проводить серию кратковременных испытаний, изменяя рабочие условия от испытания к испытанию.

С. А. СТЕПАНОВ (СССР): Помимо калия какие еще ионизирующие добавки использовались в этом генераторе?

П. РИКАТО (Франция): Использовался только калий в виде раствора поташа в метиловом спирте.

Доклад P/132 (представил П. Д. Данн)

ДИСКУССИЯ

И. П. СТАХАНОВ (СССР): Какова мощность на 1 см² поверхности катода в Вашей установке при различных условиях?

П. Д. ДАНН (Соединенное Королевство): В случае эмиттеров из UC — ZrC при температуре 2000° C удельная мощность составляет около 12 вт/см².

И. Н. ПОНОМАРЕВ-СТЕПНОЙ (СССР): Почему испытания Ваших экспериментальных установок были такими кратковременными?

П. Д. ДАНН (Соединенное Королевство): Эти эксперименты проводились в одном канале крупного исследовательского реактора, и температура эмиттера изменялась путем изменения мощности реактора. Это обусловило использование реактора только для этого эксперимента, и поэтому понятно, что отведенное для эксперимента время было коротким. Как отмечалось в докладе, к настоящему времени завершено проектирование установки, в которой предусмотрено автоматическое управление изменением положения в активной зоне реактора для того, чтобы дать возможность поддерживать температуру эмиттера постоянной при изменении мощности реактора. Установки последнего типа можно испытывать в течение длительного времени.

В. И. СУББОТИН (СССР): Измерялась ли во время эксперимента температура катода?

П. Д. ДАНН (Соединенное Королевство): Во всех случаях производилось измерение температуры в центре эмиттера посредством W/WRe термопары (с изолятором из окиси бериллия и в оболочке из тантала). Термопара не вводилась в наиболее горячую часть, температуры измерялись до 2000° C. Для того чтобы можно было измерять температуру поверхности

эмиттера, вносились поправки на продольные и радиальные колебания. Эти поправки были основаны на результатах отдельных экспериментов в лаборатории, в которых мы использовали термометр и оптический пирометр вместе с нагревом током Фуко.

Р. У. ПИДД (США): Мой вопрос относится к эффекту удержания продуктов деления в катоде. В докладе Вы отмечаете, что предпочтительными являются два типа топлива: UC — ZrC, полученный горячим прессованием и последующим спеканием, и металлокерамическое соединение вольфрама с двуокисью урана. Намерены Вы удалять продукты деления из топлива для предотвращения его набухания или удерживать эти продукты, допуская некоторое увеличение объема топлива в результате глубокого выгорания? Считаете ли Вы набухание тепловыделяющего элемента серьезной проблемой для карбидного или вольфрамового топлива, заключенного в оболочку?

П. Д. ДАНН (Соединенное Королевство): В наших первых экспериментах мы использовали спеченный UC — ZrC без оболочки, полагая при этом, что при высоких рабочих температурах (2300°С в центре топлива) будет происходить полное освобождение от газообразных продуктов деления. Однако исследование после облучения показало, что значительное количество газов удерживается топливом. Это, по нашему мнению, будет серьезно ограничивать срок службы устройства вследствие уменьшения механической прочности материала при высоких температурах, а также последующего набухания и искривления элементов. По этой причине мы перешли к использованию жаропрочных эмиттеров либо в виде оболочки, либо в виде металлокерамического соединения. Таким образом, рабочая температура снижается примерно на 300°С, и, следовательно, прочность материала повышается. Помимо того, в случае использования оболочки можно предусмотреть внутри нее пустые полости для компенсации искривлений. Полученный нами опыт с металлокерамическими соединениями из нержавеющей стали при температуре 650°С показал, что путем хорошего распределения керамической компоненты и введения некоторой пористости можно достигнуть выгорания 12%. Мы не видим никаких оснований для того, почему не следует применить тот же самый метод к металлокерамике W — UO₂ при более высоких температурах.

Доклад P/218 (представил Х. М. Дикамп)

ДИСКУССИЯ

В. А. КУЗНЕЦОВ (СССР): В системе SNAP10A самарий используется в качестве выгорающего поглотителя для компенсации изменений реактивности, вызванных перераспреде-

лением водорода. Какая избыточная реактивность таким образом компенсируется?

Х. М. ДИКАМП (США): Самарий используется в SNAP10A в качестве выгорающего поглотителя. Поскольку я не помню точно эффект реактивности, то я не хотел бы делать предположения.

В. А. КУЗНЕЦОВ (СССР): Является система SNAP10A полностью саморегулируемой на основе температурного эффекта или в системе регулирования используются чувствительные термометрические элементы обычного типа и позиционные камеры с соответствующими электронными схемами?

Х. М. ДИКАМП (США): Установка SNAP10A после запуска и в течение первых трех дней пребывания на орбите регулируется на основе выходной температуры. После этого периода все функции регулирования прекращаются, и стабильность мощности зависит только от присущего системе температурного коэффициента реактивности.

Ю. Д. ГУБАНОВ (СССР): Каковы основные причины отказа от применения теллуридов в качестве материала преобразователя установки SNAP10A и каковы перспективы применения теллуридов в дальнейшем на подобных установках?

Х. М. ДИКАМП (США): В качестве материала для преобразователя SNAP10A был выбран кремний-германиевый сплав вследствие его более высоких механических и металлургических характеристик. В общем мы пришли к выводу, что эти соображения, а также более высокая температурная стойкость кремний-германиевого сплава имеют более важное значение, чем более высокая добротность (Z) у теллуридов.

Н. Н. ПОНОМАРЕВ-СТЕПНОЙ (СССР): Работает ли установка SNAP10A в комплексе реактор и преобразователь с ядерным нагревом?

Х. М. ДИКАМП (США): Полная летная система работала с электрическим нагревом. Реакторы работали отдельно. Объединенная система будет работать с ядерным нагревом в конце этого года.

Г. БЕН ДАВИД (Израиль): Не можете ли Вы сказать о каких-либо применениях установок типа SNAP на земле?

Х. М. ДИКАМП (США): Я могу предвидеть много наземных применений для этих установок, особенно в отдаленных районах (например в Арктике), где они, хотя и не будут давать экономически выгодную электроэнергию, тем не менее принесут пользу при решении проблем, возникающих в таких отдаленных пунктах.

Г. БЕН ДАВИД (Израиль): Какие предлагаются меры безопасности, обусловленные остаточной активностью этих не снабженных защитой систем в космосе?

Х. М. ДИКАМП (США): Эта проблема широко обсуждалась на всем протяжении осуществления программы разработок, и я могу сказать, что вопросы безопасности были преобладающими при выборе различных проектных характеристик системы. Помимо того, мы провели исследования ударных нагрузок при сверхвысоких скоростях и эксперименты по нагреву при входе в атмосферу. Результаты этой работы не указывают на возникновение какой-либо проблемы, связанной с загрязнением космоса при использовании этих устройств. Следует иметь в виду, что в результате останки реактора, пока он еще находится на орбите, можно выиграть значительное время для спада активности продуктов деления. Например, в случае установки SNAP10A после одного года работы и 100 лет нахождения на орбите общая активность продуктов деления спадет примерно до 1 кюри или меньше.

Ж. ЛАБЕЙРИ (Франция): Каких уровней мощности Вы рассчитываете достигнуть в дальнейшем в результате использования реакторов с прямым преобразованием энергии описанного вами типа?

Х. М. ДИКАМП (США): Как указывалось в докладе, уже имеется технология, позволяющая создать системы электрической мощностью 10—20 кВт и удельной мощностью 3 вт/фунт (1 фунт = 454 г).

Доклад Р/873 (представил Н. Н. Пономарев-Степной)

ДИСКУССИЯ

Х. М. ДИКАМП (США): Каковы размеры и вес «Ромашки»?

Н. Н. ПОНОМАРЕВ-СТЕПНОЙ (СССР): Поскольку «Ромашка» включает в себя реактор, преобразователь, систему управления, вспомогательное технологическое оборудование и помещения для испытательных установок, то поэтому трудно назвать вес всех этих устройств. Реактор имеет диаметр около 0,5 м.

Х. М. ДИКАМП (США): Не можете ли Вы рассказать о Вашем опыте эксплуатации этой системы с реактором?

Н. Н. ПОНОМАРЕВ-СТЕПНОЙ (СССР): «Ромашка» проработала около 500 ч. Начиная с 14 августа 1964 г. она работает на мощности 500 вт. Измеренные энергетические характеристики находятся в удовлетворительном согласии с расчетными.

Р. У. ПИДД (США): Вы упомянули, что «Ромашка» может использовать либо термоэлектрический, либо термоэмиссионный способы преобразования. Проводили ли Вы испытания каких-либо термоэмиссионных преобразователей совместно с последним типом источника тепла?

Н. Н. ПОНОМАРЕВ-СТЕПНОЙ (СССР): В этой установке мы использовали только термоэлектрическое преобразование.

Х. ПИРЛМЕН (США): Почему был выбран UC_2 в качестве топлива, а не UC ?

Н. Н. ПОНОМАРЕВ-СТЕПНОЙ (СССР): Выбор UC_2 в качестве материала для сердечников тепловыделяющих элементов был основан на том, что в качестве конструкционного материала для активной зоны был выбран графит.

Х. ПИРЛМЕН (США): Влияет ли на тепловыделяющие диски циклическое изменение температуры до $1900^\circ C$, указанной в докладе?

Н. Н. ПОНОМАРЕВ-СТЕПНОЙ (СССР): Максимальная температура активной зоны реактора «Ромашка» при ядерных испытаниях была $1800^\circ C$. Однако образцы UC_2 испытывались даже при более высокой температуре, включая некоторые испытания при нестационарном состоянии.

Х. ПИРЛМЕН (США): Не можете ли Вы еще рассказать, каким образом летучесть, диффузия на поверхности раздела и радиационные повреждения влияли на выбор материалов для реактора и преобразователя?

Н. Н. ПОНОМАРЕВ-СТЕПНОЙ (СССР): При проектировании «Ромашки» подробно изучались вопросы летучести, контактных взаимодействий и радиационных повреждений материалов реактора и преобразователя. На основе этих исследований мы выбирали материалы, которые хорошо ведут себя под облучением в условиях высокой температуры.

Р. У. ПИДД (США): Я хотел бы высказаться по вопросу, который я считаю наиболее важным для термоядерных реакторов, а именно о том, могут ли тепловыделяющие элементы работать при температуре $1800^\circ C$. Имеется ряд факторов, ограничивающих работу топлива при высоких температурах, например: высокое давление продуктов деления, уменьшение прочности материала и вытекающее отсюда преобладающие разрушающих сил и т. д.

В Соединенных Штатах были предприняты значительные усилия на поиски решений проблемы распухания тепловыделяющего элемента, вызванного образованием газообразных продуктов деления внутри топлива. Работа топлива при высокой температуре имеет два неблагоприятных последствия для топлива. Во-первых, повышается давление газообразных продуктов деления, что приводит к росту сил, вызывающих распухание; во-вторых, прочность материалов при высокой температуре уменьшается, снижая способность противостоять давлению продуктов деления.

По нашему мнению, при производстве очень пористого топлива из $UC - ZrC$ холодное прессование дает значительно лучшие результаты по сравнению с горячим прессованием при образовании очень тонких и соединенных между со-

бой пор внутри топлива. Использование в производстве метода изостатического прессования обеспечивает очень большую однородность свойств топлива.

Исследовалась возможность использования в качестве материала оболочек слоя вольфрама, осажденного из паровой фазы. Этот способ оказался пригодным как с точки зрения изготовления, так и химических и физических свойств оболочки. Хотя эта оболочка имеет преимущества по сравнению с другими материалами, при температуре 1800°C ее прочность на разрыв все еще довольно низка (примерно 140 кг/см^2) для того, чтобы обеспечить удержание продуктов деления, необходимое для тепловыделяющих элементов, снабженных оболочкой.

Широко исследовалась проблема совместимости топливных материалов и оболочек. Как правило, только вольфрам совместим с UO_2 при температуре $1800\text{--}2000^{\circ}\text{C}$. Другие материалы, выбранные для изучения, — тантал, ниобий, молибден — совместимы с UO_2 при температуре ниже 1800°C . Для карбидного топлива только вольфрам совместим с $\text{UC} - \text{ZrC}$ при температуре 1800°C . Пределы совместимости для других материалов — тантал, ниобий и молибден — по отношению к карбиду лежат ниже 1400°C .

Причины несовместимости тантала, ниобия и молибдена с высокотемпературными топливами зависят от образца топлива и оболочки. Во мно-

гих случаях для определения типа взаимодействия исследования проводятся в течение 1000 ч . При температуре 1800°C взаимодействие между топливом из UO_2 и оболочкой из тантала, ниобия и молибдена в основном представляет собой проникновение по границам зерен. Проникновение по границам зерен может, в свою очередь, привести к концентрации топлива на поверхности эмиттера и повлиять на работу выхода и термоэмиссионные характеристики. Присутствие топлива на границах зерен оболочки может ослабить структуру оболочки и привести к усилению радиационных повреждений.

При температуре 1800°C в результате контакта $\text{UC} - \text{ZrC}$ с танталом, ниобием и молибденом образуется жидкая фаза (урана) для стехиометрических соединений. В случае богатых углеродом карбидов, например UC_2 , или $\text{UC} - \text{ZrC}$, содержащих избыток углерода, экзоплутация при температуре 1800°C приводит к образованию слоя избыточного углерода. Разрушительные реакции, наблюдавшиеся при температуре 1800°C , протекают и при 1600°C .

Как уже отмечалось, чистый вольфрам совместим с UO_2 и стехиометрическим $\text{UC} - \text{ZrC}$. С другой стороны, сплавы вольфрама, например $\text{W} - \text{Mo}$, $\text{W} - \text{Nb}$ и $\text{W} - \text{Ta}$, имеют совместимость, характерную для добавок по отношению к карбидам, и, следовательно, непригодны для использования в качестве оболочек при температуре 1800°C .

Acta de la Sesión 4.1

Conversión directa del calor en electricidad

Presidente: I. G. Gverdtsiteli (URSS)

Documento P/45 (presentado por P. Ricateau)

DISCUSIÓN

S. A. STEPANOV (URSS): ¿Cuánto dura la prueba del generador de 10 MW MHD de Electricité de France a que se ha referido en la primera parte de su memoria?

P. RICATEAU (Francia): Hasta el momento presente, las operaciones se realizan durante media hora. Pero no existe dificultad para que se mantengan durante más tiempo, ya que la tobera del convertidor puede soportar de 10 a 20 horas de funcionamiento. Sin embargo, se ha preferido realizar una serie de experiencias cortas modificando en cada una las condiciones de trabajo.

S. A. STEPANOV (URSS): Además de potasio, ¿qué otro agente ionizante se utiliza en este generador?

P. RICATEAU (Francia): Solamente se utiliza potasio en la forma de potasa disuelta en alcohol metílico.

Documento P/132 (presentado por P. Dunn)

DISCUSIÓN

I. P. STAKHANOV (URSS): ¿Cuál es la densidad de potencia por centímetro cuadrado de superficie de cátodo en diferentes condiciones experimentales?

P. D. DUNN (Reino Unido): Con los emisores de UC-ZrC a 2000°C se consigue una densidad de potencia de 12 W/cm^2 .

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): ¿Cuál fue la razón de realizar pruebas tan cortas en las unidades experimentales?

P. D. DUNN (Reino Unido): Las experiencias se han realizado en un canal de un reactor de investigación

de grandes dimensiones y la temperatura del emisor se varió modificando la potencia del reactor. Para ello se necesita una utilización exclusiva del mismo y por consiguiente la duración de la experiencia debe ser pequeña. Como se ha dicho en la memoria, se acaba de terminar el diseño de un circuito en el que se puede efectuar un control automático de su posición en el núcleo del reactor con objeto de mantener constante la temperatura del emisor independientemente de la potencia del reactor. Con circuitos de ese tipo se pueden realizar experiencias durante períodos mayores.

V. I. SUBBOTIN (URSS): ¿Se ha medido la temperatura del cátodo durante la experiencia?

P. D. DUNN (Reino Unido): Se ha medido la temperatura en el centro del emisor con termopares W + WRe (aislados con BeO y revestidos de Ta). El termopar no se ha llevado hasta el punto más caliente y se alcanzaron temperaturas de 2000 °C. Se aplicó una corrección por variaciones longitudinales y radiales para conocer la temperatura de la superficie emisora. Estas correcciones se han realizado utilizando los resultados de experiencias de laboratorio en donde se han empleado termopares y pirómetros ópticos calentando mediante corriente de Foucauld.

R. W. PIDD (Estados Unidos de América): Quisiera hacer una pregunta relacionada con la retención de los productos de fisión en el combustible termoiónico. En su memoria ha mencionado que se han elegido dos tipos de materiales combustibles: a) UC-ZrC sometido a presión y sinterizado en caliente, b) cermet de tungsteno y UO₂. ¿Proyectan favorecer la liberación de productos de fisión para asegurar la estabilidad dimensional del combustible?, o, por el contrario, ¿prefieren retener los productos de fisión permitiendo un ligero aumento de volumen del combustible cuando alcance un grado de quemado elevado? ¿Constituye un problema el aumento de volumen del elemento combustible cuando se recubre de tungsteno o carbono?

P. D. DUNN (Reino Unido): En nuestro primer experimento se utilizó UC-ZrC, sinterizado sin recubrir, considerando probable que a la temperatura de funcionamiento (2300 °C de temperatura central) hubiera una liberación completa de los gases de fisión. Sin embargo, el examen efectuado después de la irradiación demostró que existía una gran retención de gases, lo que representaba una seria limitación a la vida del dispositivo, debido a la reducción de la fortaleza mecánica del material a temperaturas elevadas y al consiguiente aumento de volumen y distorsión. Por este motivo se han utilizado emisores refractarios en forma de cermet o con revestimiento. De esta forma se reduce unos 300 °C la temperatura de operación y se aumenta la resistencia del material. Si se ha recubierto el combustible se puede introducir las

holguras suficientes para permitir la distorsión. Nuestra experiencia con cermet de acero inoxidable a 650 °C ha demostrado que se puede alcanzar un quemado del 12% disponiendo convenientemente el componente cerámico e introduciendo porosidad. No hay razón para suponer que esta misma técnica no se pueda aplicar al UO₂ en tungsteno a temperatura elevada.

Documento P/218 (presentado por H. M. Dieckamp)

DISCUSIÓN

V. A. KUZNETSOV (URSS): El samario se ha utilizado en el sistema SNAP 10A como absorbente para compensar las variaciones de reactividad debidas a la redistribución del hidrógeno. ¿Cuál es la reactividad que compensa?

H. M. DIECKAMP (Estados Unidos de América): El samario se utiliza como un veneno que se destruye. Como no puedo dar una respuesta exacta prefiero no especular.

V. A. KUZNETSOV (URSS): ¿Se puede autorregular el sistema SNAP 10A utilizando el efecto de temperatura o se utilizan elementos termopares convencionales y cámaras de ionización con los correspondientes canales de medida en el sistema de regulación?

H. M. DIECKAMP (Estados Unidos de América): El SNAP 10A se controla durante los tres primeros días después de situarlo en órbita utilizando la temperatura de salida. Después de este período no se realiza ningún control especial y la estabilidad de la potencia depende solamente del coeficiente de reactividad debida a la temperatura.

Y. D. GUBANOV (URSS): ¿Por qué razón no se han utilizado telúridos en el convertidor del sistema SNAP 10A y qué perspectivas existen para un posible uso de los telúridos en tales dispositivos?

H. M. DIECKAMP (Estados Unidos de América): Se ha utilizado una aleación de silicio-germanio para la conversión de potencia en el SNAP 10A por sus magníficas características mecánicas y metalúrgicas. Hemos llegado a la conclusión de que estas consideraciones así como la capacidad del silicio-germanio para temperaturas más altas son más importantes que los elevados factores de conversión (Z) para los telúridos.

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): ¿La instalación del SNAP 10A en el complejo reactor-convertidor opera con calentamiento nuclear?

H. M. DIECKAMP (Estados Unidos de América): Todo el sistema de vuelo está calentado eléctricamente. Los reactores funcionan aparte. Todo el sistema se operará por calentamiento nuclear a finales de este año.

G. BEN DAVID (Israel): ¿Prevé Vd. alguna aplicación terrestre de dispositivos del tipo del SNAP?

H. M. DIECKAMP (Estados Unidos de América): Se pueden encontrar múltiples aplicaciones especialmente en zonas lejanas (zonas árticas) donde el factor económico pierde su importancia en comparación con los problemas que surgen en sitios tan lejanos.

G. BEN DAVID (Israel): ¿Cómo se piensa resolver el problema de la eliminación radiactiva del espacio ultraterrestre con estos sistemas sin blindaje?

H. M. DIECKAMP (Estados Unidos de América): Este problema se ha estudiado en el programa de desarrollo y puedo asegurar que los factores de seguridad han tenido primordial importancia al decidir diversos aspectos del sistema. Entre otros se han realizado estudios de impactos a gran velocidad y calentamiento al regresar. Ninguno de estos análisis indica que pueda haber ningún problema de contaminación del espacio por estos instrumentos. Nótese que el parar el reactor cuando aún se encuentra en el espacio se permite que se desintegren los productos de fisión mientras que se encuentra en órbita. Por ejemplo, el SNAP 10A después de un año de operación y 100 años de estar en órbita tendrá una cantidad de productos de fisión que representa una actividad de 1 curio.

J. LABEYRIE (Francia): ¿Qué niveles de operación esperan conseguir utilizando reactores de conversión directa como el que se ha descrito?

H. M. DIECKAMP (Estados Unidos de América): Como se ha indicado en la memoria, se pretende realizar sistemas de 10 a 20 kW(e) y 3 W/lb.

Documento P/873

(presentado por N. N. Ponomarev-Stepnoy)

DISCUSIÓN

H. M. DIECKAMP (Estados Unidos de América): ¿Cuáles son las dimensiones y el peso del « Romashka »?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): Es difícil conocer el peso exacto de las instalaciones ya que el « Romashka » está constituido por un reactor, un convertidor, un sistema de control, dispositivos tecnológicos auxiliares y espacio para unidades de prueba. El diámetro del reactor es de unos 0,5 m.

H. M. DIECKAMP (Estados Unidos de América): ¿Puede hacer algún comentario sobre la experiencia adquirida en las operaciones nucleares de este sistema?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): Las operaciones de prueba con el « Romashka » han durado 500 horas. Desde el 14 de agosto de 1964 se está produciendo energía con calor nuclear. El nivel de

potencia es de 500 W. Las características de potencia medidas están de acuerdo con los parámetros de diseño.

R. W. PIDD (Estados Unidos de América): Ha mencionado que el « Romashka » puede utilizar energía termoeléctrica o termoiónica. ¿Han ensayado algún convertidor termoiónico con el último tipo de fuente de calor?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): En esta instalación hemos utilizado únicamente conversión termoeléctrica.

H. PEARLMAN (Estados Unidos de América): ¿Por qué se ha utilizado como combustible UC_2 en lugar de UC?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): Se ha utilizado UC_2 como material combustible del núcleo porque el reactor es de grafito.

H. PEARLMAN (Estados Unidos de América): ¿Se afectan los elementos combustibles por el ciclo térmico a 1 900 °C, temperatura máxima indicada?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): La temperatura máxima del reactor « Romashka » en las pruebas nucleares es de 1 800 °C. Sin embargo se han probado muestras de UC_2 a temperaturas mucho más altas, incluyendo algunas en condiciones no estacionarias.

H. PEARLMAN (Estados Unidos de América): ¿Puede dar alguna indicación más sobre cómo ha influido la sublimación, la difusión interfase y la alteración por radiación en la selección de los materiales del reactor y convertidor?

N. N. PONOMAREV-STEPNOY (URSS): En el diseño del « Romashka » se han realizado estudios detallados sobre volatilidad, interacciones de contacto, alteraciones por radiación de los materiales del reactor y convertidor. De acuerdo con los resultados obtenidos se hizo una selección de los materiales que se comportan satisfactoriamente bajo irradiación y a temperatura elevada.

R. W. PIDD (Estados Unidos de América): Quisiera puntualizar el problema más importante en los reactores termoiónicos, a saber: si los elementos combustibles pueden o no alcanzar temperaturas de 1 800 °C. Existen una serie de factores que limitan la operación del combustible a tales temperaturas, por ejemplo, el aumento de presión de los productos de fisión, la disminución de resistencia mecánica del material y el predominio consiguiente de fuerzas destructivas, entre otros.

En los Estados Unidos se ha realizado un esfuerzo considerable para resolver el problema del aumento de volumen del elemento combustible debido a la generación de productos de fisión en el sistema. La temperatura elevada tiene como consecuencia dos efectos perjudiciales: en primer lugar, aumenta la presión de los gases de fisión dando origen a una hinchazón;

segundo, empeoran las propiedades mecánicas de los materiales a elevada temperatura, decreciendo la capacidad de retener los productos de fisión.

En la producción de combustibles de UC-ZrC muy porosos se encontró que el prensado en frío era mejor que el prensado en caliente para su fabricación y para el control de poros muy finos interconectados. Los métodos de fabricación utilizando prensado isostático proporcionan un alto grado de uniformidad en las propiedades del combustible.

Se ha estudiado como material de revestimiento el tungsteno depositado por evaporación, obteniéndose resultados satisfactorios desde el punto de vista de fabricación y por sus propiedades físicas y químicas. Esto es debido a que, a pesar de ser más fuerte que los otros materiales de revestimiento a 1 800 °C, su límite elástico es suficientemente bajo (unas 2 000 psi) para que puedan salir los productos de fisión como se requiere en los revestimientos de elementos combustibles.

Se ha estudiado la compatibilidad entre materiales combustibles y de revestimiento. Por regla general, solamente el tungsteno es compatible con el UO_2 a temperaturas comprendidas entre 1 800 y 2 000 °C. Los otros metales seleccionados (Ta, Nb, Mo) tienen límites de compatibilidad con el UO_2 inferiores a 1 800 °C. De los combustibles en forma de carburo, solamente el UC-ZrC es compatible a 1 800 °C. El límite de compatibilidad de los otros metales (Ta, Nb, Mo) es inferior a 1 800 °C.

Las razones indicadas para la incompatibilidad del Ta, Nb y Mo con combustibles a temperatura elevada varían según el tipo de combustible y revestimiento y en muchos casos se han realizado pruebas durante 1 000 horas para determinar la forma de interacción. A 1 800 °C, y en el caso del Ta, Nb y Mo, la forma de interacción del combustible UO_2 y su revestimiento es esencialmente una penetración en la interfase. Este tipo de penetración puede conducir a su vez a una concentración de combustible en la superficie del emisor suficiente para afectar la función de trabajo y el rendimiento termoiónico. Y, lo que es más importante, la presencia del combustible en el revestimiento puede debilitar la estructura de éste y aumentar los efectos de alteración por radiación.

A 1 800 °C el contacto de UC-ZrC con Ta, Nb y Mo da lugar a la formación de una fase líquida (uranio) para compuestos estequiométricos. En el caso de carburos ricos en carbono, como el UC_2 o UC-ZrC conteniendo exceso de carbono, la operación a 1 800 °C produce la formación de capas de carburo. Las reacciones observadas a 1 800 °C persisten a 1 600 °C.

El tungsteno puro es compatible desde todos los puntos de vista con el UO_2 y el UC-ZrC estequiométrico. Por otra parte, las aleaciones de tungsteno como W-Mo, W-Nb y W-Ta, presentan las características de compatibilidad de los aditivos con respecto a los carburos y, por lo tanto, no pueden ser utilizados como revestimiento a 1 800 °C.

Session F

APPLICATIONS OF ISOTOPES AND RADIATION SOURCES IN THE PHYSICAL SCIENCES

LIST OF PAPERS

	<i>Page</i>
P/196 Advances in radioisotope production and utilization in science and industry	P. C. Acbersold 201
P/298 Применение изотопов и источников излучения в исследованиях в области физических и химических наук	И. Л. Грузин 215
<i>Use of isotopes and radiation sources in physical and chemical research</i>	<i>P. L. Gruzin</i>
P/875 The role of radioisotope techniques in hydrology	B. R. Payne <i>et al.</i> 226

Advances in radioisotope production and utilization in science and industry*

By P. C. Aebersold **

Only three decades after the discovery that radioactivity could be artificially induced, man-made radioisotopes have been established as powerful and versatile tools for an almost countless number of uses in nearly all fields of research and application. Man-made radioactivity is truly one of those discoveries of major benefit to mankind.

Advances in the discovery and production of specific radionuclides have been phenomenal. Although around 130 radioactive species have received significant usage and are routinely produced, the potential number of useful radioisotopes is much greater. Means of production cover a variety of accelerators with great flexibility in type and energy of particles and radiation generated, encompassing the use of photons, neutrons, protons, deuterons, tritons, helium-3 and alpha particles and heavier nuclei. However, the bulk production of radioactivity is now by means of nuclear reactors. Through neutron bombardment in high flux, high power reactors, production of most useful isotopes can be expanded to meet any conceivable need, up to hundreds of megacuries of certain isotopes such as cobalt-60. Also, vast quantities of fission products are unavoidably obtained as by-products of power and/or plutonium production. Individual radioisotopes from this source are being separated and purified in megacurie quantities. Costs of production have been greatly reduced and could become even lower with larger demand. These megacurie quantities of both neutron induced and fission product isotopes are being used in the development of heat source and radiation processing applications.

Advances in radiation detectors, associated electronics technology and the automatic recording and analysis of data also have been astonishing. Use of crystal scintillation counters has become routine and efficient crystals are available over 20 cm in diameter. Plastic detectors are also available in wide variety of shapes and the sizes can be of meter proportions. Liquid scintillation counting has become extensively

employed for efficient internal particle counting of a broad variety of sample forms. Use of liquid, plastic and crystal detectors, with associated circuitry involving multi-channel, multi-parameter pulse height analysis, coincidence and/or anti-coincidence techniques, has been extended to extremely low level counting of samples, even to the size of human beings. Recently, a variety of semiconductor detectors have been developed that provide increased energy resolution for counting of alpha particles, conversion electrons and low energy X-rays and gamma-rays. Semiconductor detectors incorporating heavier elements are under development to permit efficient, high resolution counting of higher energy gamma rays. Increasing attention is being given to automatic recording and to computer analysis and reduction of data from isotope and activation analysis procedures.

Parallel improvements and expansion in utilization of radioisotopes have taken place rapidly in all fields of application. In the basic physical sciences, the major applications are for analytical techniques, determination of molecular structure, measurement of reaction kinetics and determination of physical properties and behavior of matter. In the applied sciences, new uses are being developed in engineering and in such fields as oceanography, meteorology, hydrology, other geosciences and space technology.

In many instances, discoveries are being made through the use of radioisotopes which are so important and striking that we tend to lose sight of the fact that they would not have been demonstrable but for the availability of an abundant and varied supply of radioisotopes. The overthrow of the parity principle in weak interactions [1], the evolution of a generally accepted theory of Fermi interactions involving beta decay, muon decay, and muon capture [2, 3], and the historic discovery of the Mössbauer effect [4] are all magnificent examples of what has been made possible by radioisotopes.

This paper will examine some of the major advances made in the above areas in the United States during the six years which have passed since the second United Nations Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy.

* With International Status Supplement.

** U.S. Atomic Energy Commission, Washington, D.C.

LARGE-SCALE PRODUCTION OF ISOTOPES

One phase that has surpassed all others in the United States in rapidity of growth since the last Geneva Conference is the development of processes for and the actual production of extremely large quantities of individual, purified fission products and neutron products. The incentive for this effort has come largely from the concurrent development of small electrical power supplies which utilize the heat of radioactive decay as their energy source. Another paper at this Conference [5] describes these power systems.

The fission product that has received the most attention for isotopic power use is strontium-90. In the period 1961-1964, almost five million curies of this isotope were recovered from waste streams and converted to the chemical form strontium titanate (SrTiO_3), a ceramic with good thermal and radiation stability, reasonably high strontium content, and relatively low dissolution rate in water [6]. This required the services of a large production site and two hot cell facilities.

Of the neutron products used for heat sources, plutonium-238 has been of greatest utility. It is produced in kilogram quantities by irradiation of neptunium-237, which in turn is produced by $^{238}\text{U}(n,2n)$ and $^{235}\text{U}(2n,\gamma)$ reactions in reactor fuels. Three production sites and a large radiochemical laboratory are involved in the process. To date, all nuclear power supplies used in earth satellites have employed plutonium-238 as their energy source.

In our program to develop radiation for the processing of food and chemicals [7], we expect caesium-137 to find expanded use as a gamma radiation source. In anticipation of these applications, a 215 000 curie source of caesium-137 was completed in January 1964 by Oak Ridge National Laboratory. The final source, doubly encapsulated in stainless steel, will be used in the radiation development program at Brookhaven National Laboratory [8]. Approximately one million curies of caesium-137 have been purified by a very simple process involving elution of a caesium fraction from an inorganic ion exchange medium and subsequent purification by the alum crystallization process [9].

New opportunities for the use of cobalt-60 will arise from a program now under way to manufacture this radioisotope in specific activities of 400-500 curies/gram or even greater. A capability for the manufacture of hundreds of megacuries per year of cobalt-60 exists in the United States, although total current utilization is only about three megacuries. Tritium and carbon-14 are also available in quantities challenging the imagination of those of us who were early workers in the field. Such large capacities for the

production of isotopes by neutron absorption arise from the increased availability of ideally suited reactor space resulting from curtailment of plutonium production in the United States.

Curium isotopes are receiving a great amount of attention at this time, for two reasons: they are part of the irradiation chains leading to the formation of the very heavy elements, and they appear useful as heat sources in various applications. Plans are being carried to completion to provide a facility for the processing of kilogram quantities of curium-244 into targets for further irradiation in neutron fluxes in excess of 10^{15} n/cm²s [10]. A special reactor is being built for the latter purpose, and it is scheduled for completion in 1965 [11]. The product of the high-flux irradiation will be gram quantities of californium-252, for study of this element itself as well as for further irradiation in cyclotrons and other machines. A campaign to provide an initial supply of curium-244 for investigational purposes was concluded this year, after 10 kilograms of plutonium-239 had been exposed to neutron radiation for several years, resulting in the formation of about four hundred grams of curium-244. This material has been purified and will permit the determination of the macroscopic physical and chemical properties of curium on a much more accurate basis than has been possible in the past.

The shorter-lived isotope curium-242 is also of interest, primarily as a heat source. To produce it, a supply of americium-241 is required. This isotope, in turn, is formed by the beta decay of plutonium-241. Kilogram quantities of americium-241 have been made available for research or isotope production purposes. Although the production of curium-242 by neutron irradiation of americium-241 is a straightforward procedure, the subsequent purification of the curium-242 and its fabrication into heat sources pose formidable problems. Most of the problems are the result of the intense heat and alpha radiation experienced as gram quantities of curium-242 are accumulated.

Requirements for fission product heat and radiation sources in the time period beyond 1968 may require a special plant (Hanford Isotopes Production Plant) for their manufacture. The projected capacity of such a plant and the estimated price of its products when operating at full capacity have been reported [12].

Although the magnitude of radioisotope production in the fission process or by neutron irradiation cannot be approached by machine irradiation, nonetheless, the production of radioisotopes by cyclotron bombardment has become increasingly important, particularly for neutron-deficient isotopes. By the end of 1963, the United States was using 50% of the operating time of a 2.18 meter cyclotron [13] (originally built for research purposes) for the production of radioisotopes.

Plans are being made for a more efficient and versatile accelerator for this purpose.

THERMAL APPLICATIONS OF ISOTOPES

One major thermal application of radioisotopes has been mentioned already—namely, the use of radioisotopes as heat sources in direct conversion electrical power supplies. More as a prediction of things to come than as a historical statement of accomplishments made, I would like to mention a few other thermal applications which appear promising and which are under study at this time in the United States. We have begun to examine the feasibility of employing radioisotopes as the source of energy in small rocket motors. Three concepts are under consideration: in the first, the heat evolved from the decay process is used to raise the temperature of a propellant gas in a direct convective heat transfer mode; in the second, the heat activates a catalyst which accelerates decomposition of hydrazine monopropellant; and in the third, radiation heating of the walls of the flow passages by means of a gamma-emitting isotope is used to raise the temperature of the propellant gas. Rocket motors of these types are characterized by their very high specific impulse but low thrust, and would, therefore, be useful in the upper stages of small, unmanned space vehicles destined for long trips to other planets or which are moving from a low altitude earth orbit to a high altitude orbit on a minimum energy trajectory.

Small radioisotope heat sources are being considered for use in highly instrumented satellites to keep the electronic components at an optimum, uniform operating temperature.

LARGE SOURCES FOR RADIATION PROCESSING

Another outlet for massive quantities of radioisotopes is expected to be found in the expanding radiation processing industry. It is now apparent that the research conducted during the past decade on the use of radiation for industrial processing is bearing fruit. This is evident with the appearance of several commercial radiation processes such as the production of ethyl bromide [14]; cross-linked polyethylene film, wire, tubing and related products [15]; medical supply sterilization [16]; and the production of semi-conductor components [17]. Even more encouraging, however, is the greater number of radiation processes approaching commercialization. Included are the production of wood-plastic materials [18], curing of coatings, improved semi-conductor devices [19], textiles, biodegradable detergents [20], polymerization of ethylene and copolymers, and food processing [21].

In some cases, radiation produced by machines such as electron linear accelerators, resonant transformers, cathode ray tubes, and other devices proves to be

superior from an economic viewpoint to the radiation from isotopes. Because of the early state of the radiation industry, it is not yet clear which source of energy will prove most acceptable for each application.

RADIATION TREATMENT OF FOODS

Treatment of selected foods with ionizing radiation for preservation or public health control measures is being seriously pursued in over 15 countries. National interests in this developing technology have grown rapidly in the past ten years. Research programs are, of course, concerned with items of promising economic value to each particular country. While radiation sterilization of food is important for special purposes involving long-term storage, the principal effort is on consumer products and is concentrated on the use of less than sterilization doses. Such effects include the inhibition of sprouting of potatoes and onions, the control of *Salmonella* in egg or animal feed products, the inhibition of ripening of certain fruits, the disinfection of grain and the extension of marketing or shelf life, through control of various spoilage microorganisms in food products such as meat, vegetables, fruits, fish and poultry [22-24].

Marine products are of particular international interest and research has been carried out with less than sterilizing doses of radiation on a wide variety of such products. The goal is to provide to the public a higher quality fresh fish or marine product, while also extending the marketing time. Lean fish, such as haddock and flounder, are typical subjects but interest also extends to clams, oysters, crab, shrimp and other marine products. Various approaches are used: (a) Treatment of fish at sea or at time of landing to maintain quality for distribution in the fresh state or prior to freezing; (b) Treatment to control such pathogens as the *Salmonella*, particularly in fish meal, or *C. botulinum*, type E, in smoked products; and (c) Treatment of frozen fish to maintain quality during thawing and subsequent distribution.

Radiation preservation of a variety of fruits has been investigated by a number of countries with increasing indications of several ultimately successful commercial processes. Strawberries have consistently shown promise. Although the marketing life of the berries is extended somewhat, the chief attainment is a marked decrease of loss of quality due to mold growth during distribution. Oranges, peaches, nectarines and sweet cherries show similar promise. Radiation treatment of fruits, such as papayas, mangoes and pineapples, are being investigated by countries with a semi-tropical climate. Not only are certain pests controlled through the interruption of their reproductive cycle, but plant pathogens can be destroyed. This would permit removal of quarantines and

increased flow of trade for such products. Furthermore, radiation alters the physiology of the fruits, resulting in a decrease in rate of ripening and an increase in marketing life.

Human consumption of potatoes treated with low doses for sprout inhibition was approved in Canada in 1960 and, according to reports, earlier by the USSR and Poland. In the United States, the use of certain types of radiation for disinfection of wheat and wheat products and the sterilization of canned bacon has been approved for commercial use. Other countries, such as France and the United Kingdom, are developing protocols for certain irradiated foods, which hopefully will lead to clearances for commercial use in the future. Food irradiation technology is rapidly reaching the point where limited commercialization will take place. No extensive breakthrough is expected, but a steady growth will take place in this new food preservation method.

TRACER METHODOLOGY AND APPLICATIONS

The use of radioactive tracers in almost every phase of science and industry has become so commonplace that one can no longer hope to be all-inclusive in describing advances in the subject. The use of tracers in such specific fields as agriculture, biology, medicine and hydrology are the subjects of other papers presented at this Conference. This paper, therefore, is limited to a few comments on new techniques which have rather general utility.

Tagging of a broad variety of materials, without regard to their chemical or physical form, may be accomplished by incorporating krypton-85 into the solid substance to be labeled [25, 26]. This is performed by bombardment of the material with ionized krypton gas or by diffusion of the gas into the material under high temperature and pressure. The krypton gas at present contains 5% krypton-85; as the technique finds new applications, demands for higher concentration of the radioisotope will be made so that increased sensitivity of measurement will result.

The versatility of the use of krypton-85 as a tracer lies in the fact that almost any material may be labeled with it or "kryptonated". Already some 80 different solids, including elements, alloys and inorganic and organic compounds have been impregnated with the radioactive gas. However, the degree to which absorption of the gas occurs is a function of the physical structure of the material. Pyrolytic graphite, for example, may be labeled with a specific activity up to one curie per gram, whereas the absorption of gas in a steel sample will occur only within a few microns of the surface and the bulk specific activity then corresponds to microcuries per gram or less.

A substantial list of established applications of this technique exists, including the measurement of ero-

sion of turbine blades, wear of bearings, and the kinetic properties of refractory metals at high temperatures [27]. If the krypton is incorporated into a reactive compound, then the extent of chemical reaction can be measured by determination of the amount of released radioactivity. This "radio-release" technique is similar to those reported previously for carbon-14 and hydrogen-3 compounds [28]. A method using krypton-85 is being developed for use in our space program as part of devices for measuring the oxygen content of the atmosphere of Mars, and for fluorine and hydrogen detectors for use in manned space vehicles and at launch sites.

At the last Geneva Conference, the first report was made of the total count method for determining the flow rate of fluids by use of radioactive tracers. Since that time, the method has found widespread use throughout the world and has become greatly diversified [29].

The advantages of using noble gas radioisotopes are demonstrated by another tracer technique reported recently [30]. Here the 5.27 day xenon-133 radioisotope was employed in the conventional dilution method to measure gas flow rates in an organic chemical plant. Other methods for determination of the flow rates had proved to be of no avail because of the corrosive nature of the gases and because they carried entrained particulate matter. The xenon tracer was chemically inert in this unusual environment, and no corrections for tracer deposition or fractionation were necessary. Flow rates ranging from 50 to 500 000 liters/minute were measured with a standard deviation of less than 1%. Counting of gas samples was performed in a large well-type plastic scintillator with excellent efficiency.

A hydrocarbon alkylation plant presented an unusually difficult problem in regard to measuring flow of sulfuric acid through various reactors and circulating loops [31]. By making rapid injections of radiogold into the system and then measuring tracer concentrations in acid samples or tracer flow through pipes, four quantities were easily measured: acid circulation rates, volume of acid in system, replacement rate of acid and entrainment of acid in the hydrocarbon stream.

These accomplishments are mentioned as being only representative of how well radioisotope technology can be adapted to engineering studies in industry.

In science, tracer methodology has reached the point of prosaic acceptance. A survey of the abstracts of national meetings of research societies shows a large number of papers presented annually, which make use of radioactive isotopes, the greatest concentration being in the fields of medicine, biology, biological chemistry and physical chemistry.

Recoil chemistry or "hot atom" chemistry occupies such a significant role in tracer methodology that an

entire symposium was devoted to the subject by the IAEA in 1960 [32], while a survey article which appeared in 1962 [33] on this subject states that six or seven hundred papers had been published in the field of recoil chemistry since its inception. The survey article itself cited 101 references in the literature, most of which appeared in 1959 and 1960.

When it is advantageous to incorporate a radioactive tracer into a functional group or groups of an organic compound, the use of tritium (hydrogen-3) has found widespread use [34, 35]. Many workers have employed the self-labeling method of Wilzbach [36], but more recently, a new technique has become available which has substantially broader applications [37-39]. Hydrogen-tritium exchange is effected by contacting the organic material to be labeled with a tritiated phosphoric acid-boron trifluoride complex. A general review of the method and some of its applications has appeared recently [40].

Again, there is space here to give only one example of the elegance of the tracer technique in basic chemistry. Collins and co-workers have been able to measure the secondary isotope effect in the reaction of acetophenone-beta- ^{14}C with 2,4-dinitrophenylhydrazine [41]. The ratio of specific rate constants of labeled and unlabeled species proved to be $1.0085 \pm .0004$. By using the same procedure with mixtures of deuterated acetophenone and acetophenone-beta- ^{14}C , acetophenone-alpha- ^{14}C , and other carbon-14 labeled ketones, the same group of investigators were able to measure with ^{14}C the isotope effect of deuterium substitution for hydrogen in the ketone structures in the reactions which form phenylhydrazones [42]. For the case previously cited, the net effect of deuterating the methyl group in acetophenone was to increase the rate constant by a ratio of 1.111. In other words, a radioactive tracer was employed to determine the effect of a stable isotope substitution.

We should not lose sight of the fact that the radioisotopes which are found in nature are often of value as tracers or as chronographs. The classical work of Libby and co-workers in employing carbon-14 measurements for dating of archeological samples was considered important enough to be honored with the Nobel Prize in 1960. Other naturally occurring isotopes, both stable and radioactive, are being utilized to ever greater extent as the measurement techniques for them become more sophisticated. A major international symposium was held on this subject in 1962 [43] and several articles or papers have discussed on the general applicability of isotopic measurements or analysis in cosmochemistry, meteoritics and geochemistry [44-46].

Notwithstanding the innumerable applications for radioactive tracers which have been developed already for the benefit of science and industry, much remains to be done. In cases where there may be concern over

the use of radioactive tracers, such as in large field experiments involving release to the biosphere or into consumer products, activation tracing will find expanded use. This involves the use of stable tracers followed by neutron activation analysis or charged particle activation analysis to measure the stable tracer concentrations. Although a beginning has been made in this technique [47], refinement of the analytical measurements remains the outstanding problem.

ISOTOPE MEASUREMENT AND CONTROL SYSTEMS

Past conferences have dwelt at length on the use of isotopes as sources of radiation in all manners of instruments such as thickness gauges, density gauges, composition gauges, liquid level indicators, etc. [48]. Devices of this nature are now routinely used by industry in many thousands of installations. In some cases, competing instruments have been eliminated. Still, we can be certain that utilization of isotopic measurement and control devices in industry is still in its infancy. As one of my colleagues has written, "There seems no limit to the ingenuity of instrument inventors in using the penetrating, scattering, or selective absorption of radiations to test materials rapidly and feed back control information required by today's automated systems" [49].

Extension of a radiation scattering principle into a new realm is demonstrated by a device for measuring the density of air as a function of altitude to heights greater than 40 000 meters. This system [50] employs beta-ray forward scattering for sensing the density of air between a krypton-85 source and an anthracene scintillation crystal joined to a multiplier phototube. Background radiation count rate from an identical detector is subtracted electronically from the primary signal. Sensitivity of both circuits is increased by discriminating against pulses outside an optimum region of the ^{85}Kr beta spectrum. A dc voltage directly proportional to net count rate is used to modulate a radio transmitter. This system has been incorporated into a balloon-borne package which also measures air temperature and pressure by other means. Sequential readings of density, temperature, and pressure are then transmitted to a ground receiving station. A recent calibration flight resulted in collection of useful data between 21 300 and 37 500 meters.

Oceanography is occupying an increasingly greater proportion of the attention of scientists in the United States today. Again, as expected, nuclear instruments are being developed for measurements in the remote frontier deep below the surface of the ocean. One of the more complex of these is termed Deep Water Isotopic Current Analyzer, or DWICA. It consists of a circular planar array of 16 scintillation detectors surrounding a centrally located source of radioactive solution (typically ^{131}I). Periodic injections of solution

are swept by the ambient ocean currents to one or more detectors. A computer system analyses time of arrival of activity at each detector, calculates velocity and direction of flow, and prints out the information in digital form [51]. DWICA is designed to operate at a maximum depth of 1800 meters.

The most exciting recent discovery that offers to expand this field immeasurably has been that of Dr. Rudolph L. Mössbauer. Although the Mössbauer effect is of outstanding importance in basic areas of physics, encompassing fundamentals of nuclear and molecular structure, it is also finding uses in a more applied sense. A review of applications of the Mössbauer effect alone would be extremely lengthy. I will hence limit my remarks to a few examples of applications which have appeared recently in the United States, observing once again that the discovery and experimental verification of the Mössbauer principle of recoilless emission and resonance absorption of gamma radiation and its extension to practical measurement systems would not be possible but for the ready availability of a wide variety of radioactive and stable isotopes which exhibit the Mössbauer effect.

The most publicized experiment of recent times occurred when Einstein's principle of equivalence was confirmed by Pound and Rebka [52]. They measured the difference in frequency of gamma quanta emitted at a height of about 20 meters above the surface of the earth and at the surface of the earth. The difference, as predicted by Einstein, should have been about one part in 10^{16} per meter of altitude, and this was detected quantitatively by measuring the frequency shift of the resonance absorption peak in ^{57}Fe . In other words, the difference in "weight" of gamma quanta at an altitude of 20 meters and on the ground was measured! As Goldansky said in a recent review article [53] on the Mössbauer effect, "By comparison with this splendid piece of research, even the most elegant experiments are bound to suffer..."

The greatest field of application so far has been the study of the physical and chemical environments of the target nuclei, whose energy levels are affected by the local magnetic fields, charge densities, and electric field gradients. In this sense, we speak of "Mössbauer spectroscopy". By far the favorite target has been ^{57}Fe , with applications ranging from ferrimagnets [54] to hemoglobin [55]. The next is ^{119}Sn , a favorite especially of the Russian workers.

The Mössbauer effect also provides a tool in the study of lattice dynamics and diffusion [56], since the intensity, line shape, and temperature shift are governed by the stiffness of the target environment. Applications in this area are expected to increase as difficulties in theory and technique are overcome.

Two groups have proposed the use of the Mössbauer effect to determine the small relative velocities at which one spacecraft will approach another in

a docking or rendezvous maneuver, or the closure rate at which a space vehicle approaches a celestial body such as the moon [57, 58]. Such velocities are expected to be of the order of millimeters per second in the final moments of approach (separation of a few meters). At such time, the use of radar is no longer possible, and yet accurate control of speed and alignment is essential to prevent damage from shock or from malfunction of the coupling mechanisms.

On the other hand, the use of a Mössbauer source and absorber is probably limited to ranges of 30 meters, but at this distance the relative velocity may be in excess of the capability of Mössbauer measurement. Therefore, another nuclear ranging system of a more conventional variety, which depends on the inverse square change in count rate with distance from a point gamma-ray source, has been proposed as the intermediate between the Mössbauer sensor and radar [58].

INSTRUMENTATION IMPROVEMENTS

A minor revolution has occurred in the field of radiation detection and analysis since the time of the last Geneva Conference because of at least two general scientific achievements: the development and commercial production of whole families of solid state electronic devices or components, and the design of very fast data acquisition equipment and computers.

Crystal scintillators have become more refined and have increased in size. Although thallium-activated sodium iodide remains the workhorse of the field, other inorganic materials such as cesium iodide and calcium iodide are receiving increased attention. A recent paper reported [59] that calcium iodide produces light outputs twice as great as those in NaI(Tl) when exposed to gamma radiation, and that pulse height resolutions of 5.2 and 9.9% (full width at half maximum) for ^{137}Cs and ^{57}Co gamma rays have been obtained with this material. However, problems of crystal fabrication remain to be resolved before a widely useful material will be available.

Plastic scintillators up to 40 cm in diameter are now sold in the United States. The University of Miami is employing scintillators of this size to measure trace concentrations of radioactive materials in sea water at depths up to 10 000 meters. In a system of two scintillators and corresponding electronic equipment, coincidence counting of cascaded gamma radiation from cobalt-60 enables one to detect this isotope at concentrations as low as 10^{-18} curie per liter in the presence of high background due to the naturally occurring potassium-40 [60]. Care must be taken, however, to operate at depths sufficient to reduce the cosmic ray background to negligible levels.

Liquid scintillators have advanced correspondingly, although they, like the plastic varieties, remain inferior

to the inorganic crystals in light production and pulse height resolution. However, they are superior for detecting very low concentrations of gamma emitters or for internal counting of low-energy beta emitters. Several applications for large liquid scintillators have appeared, including a system for detecting less than one microcurie quantities of ^{60}Co moving at a rapid rate past the detector [61], a detector for measuring tracer levels of radioactivity in chemical process streams [62], and an apparatus for measuring neutron-proton coincidences produced by antineutrino interactions with hydrogen or deuterium in the scintillator fluid [63].

The multiplier phototubes employed in conjunction with the various varieties of scintillators are being improved constantly to decrease transit time, increase electron multiplication, and increase electrical stability and life. A tube as large as 60 cm in diameter has been produced [64] which, to my knowledge, represents the extreme in size.

Other tubes are now available with multiplication factors up to 10^8 , permitting the detection of single photoelectrons. High-speed counting tubes have been reported recently to exhibit rise times of less than 0.5 nanosecond (approaching the minimum theoretical value of about 0.2 nanosecond), transit times of less than 4 nanoseconds, and dark currents of 10^{-9} ampere [65].

The most striking advance, however, has been in the improvement of semiconductor detectors for all types of electromagnetic or particulate radiation. It is now possible to say that semiconductor detectors have come of age, although much remains to be done in improving their stability at ambient temperatures and their efficiency for counting beta and gamma radiation. Silicon and germanium have been studied to the greatest extent. Silicon is superior to germanium in the sense that its noise level at room temperature is low enough to permit it to be used without cooling. Germanium normally requires cooling to liquid air temperatures to obtain the greatest sensitivity. At the same time, germanium is superior to silicon for detection and resolution of high energy gamma radiation because of its higher atomic number. Both materials can be drifted with lithium ions to increase their resistivity. Sensitive depths up to 1 cm have been achieved in silicon surface barrier detectors by this technique, leading to detectors capable of better pulse height resolution than scintillation detectors for gamma radiation of less than 2 MeV. Of course, the counting efficiency of these semiconductor detectors remains in the vicinity of 1%. We can expect that new semiconductor materials will be investigated within the next few years which will extend the range of gamma energy and increase detection efficiency. Cadmium telluride and gallium arsenide appear to be particularly attractive in this respect [66].

Perhaps equally exciting to the nuclear physicist and chemist has been the appearance of advanced electronic equipment to accompany the improved detectors. Transistorized pulse height analyzers of up to 400 channels are part of the equipment of most of the larger nuclear laboratories in the United States today, and for more complex systems in which coincidences, anticoincidence, or time-delay relationships are recorded, it is possible to obtain instrumentation with up to 20 000 channels of recorded information, each channel having storage of up to 10^5 counts. The subject of multi-parameter analysis of this type is receiving great attention, since the capacity to record data has now exceeded the capacity to analyze the significance of the data. At a conference held in 1962 in the United States, applications of multi-parameter analysis in nuclear physics were discussed, and evidence of the progress being made in this complex field was substantial [67].

To the person interested in radioisotopes technology, the techniques of greatest interest are those in which a mixture of gamma spectra from the simultaneous decay of several isotopes is resolved into the constituent spectra, permitting quantitative identification of the isotopic mixture, or resolution of the complex decay mode of a radioisotope. Such procedures are of utmost importance in neutron activation analysis, and a number of laboratories are vigorously attacking the problem [68]. The approach being employed is first to assemble a catalog of the spectra of all isotopes of interest in a standard detector geometry and to record the information on punched or magnetic tape by means of an analogue-to-digital converter. An unknown spectrum is then recorded and stored in similar fashion, and a high speed computer is then employed to make comparisons of peaks, sort out individual spectra, and finally calculate the relative amounts of identified isotopes present. The time required to perform the analysis is thus reduced by several orders of magnitude in comparison to hand computations.

Excellent summaries of this and other applications of multi-parameter and computer analysis to radioisotope work have been published by several of the prominent workers in the field [69-71]. In general, the combination of pulse height analyzers and computer memories, plus fast and graphic readout systems, facilitate the performance of ordinarily laborious tasks such as calculation of the pulse-height response of a scintillation crystal as a function of gamma-ray energy, computation of coincidence sum spectra for coincident or cascade gamma emission, resolution of superimposed photopeaks, and angular correlations of coincident events.

One particular area that has benefited greatly from such advances in automation and instrumentation has been nuclear activation analysis. In recent years, this

important technique has grown from an infrequently used laboratory procedure to a method renowned for its sensitivity and diversity of application [72, 73].

FUTURE OF RADIOISOTOPE APPLICATIONS

Notwithstanding all the advances made in the short period of six years, our optimism for the future is tempered with the sobering thought that much remains to be done before the potentials for the use of radioisotopes in science and industry are more fully realized. More detailed education of scientists and engineers, who are not nuclear specialists, is required to acquaint them with the unique characteristics and versatile capabilities of radioisotopes, as well as their already proven applications. Scientists and engineers so educated could employ radioisotope technology as a ready tool in the same manner as the more conventional techniques of chemistry, physics, and other basic disciplines.

Regulation of the use of radioisotopes by governmental agencies is till too restrictive in some instances. However, many gains have been made in extending the freedom of use of these materials while maintaining good safety practices. Industrial management has not yet fully recognized that the use of radioisotopes can provide substantial savings in time and money not possible by other means. This requires a continuing program of education at all levels.

Several predictions of technical advances to be realized have been made earlier. We can expect to see many megacurie quantities of specific radioisotopes in use for radiation processing, for small electric power generators and for space heat applications. We will see them become employed in more routine ways as well as in explorations from the bottom of the sea to outer space, at the extremes of our environment. It has been said before, and it may need to be repeated for many decades, that the applications of isotopes will be limited only by man's ingenuity.

REFERENCES

1. Wu, C. S., *et al.*, *Phys. Rev.*, **105**, 1413 (1957).
2. Wu, C. S., *Rev. Mod. Phys.*, **31**, 783 (1959).
3. Marshak, R., and Sudarshan, G., *Phys. Rev.*, **109**, 1860 (1958).
4. Mössbauer, R. L., *Z. Physik*, **151**, 125 (1959).
5. Morse, J. G., and Harvey, D. G., *Isotopic Power Sources Coupled with Thermoelectric Converters*, P/217, this volume.
6. Cochran, J. S., Bloom, J. L., and Schneider, A., in *Proceedings of IAEA Conference on Industrial Uses of Large Radiation Sources*, Vol. II, p. 157 (1963).
7. Machurek, J. E., and Stein, M. H., *ibid.*, Vol. I, 15.
8. Fowler, E. E., and Aebersold, P. C., *Proceedings of the 5th Conference on Radioisotopes*, Tokyo, 1-5 (1963).
9. *Isotopes and Radiation Technology*, Vol. 1, No. 1, p. 38 (1963).
10. Unger, W. E., Hannon, F. L., Culler, F. L., and Bottenfield, B. F., *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, **5**, No. 2, 296 (1962).
11. *Fundamental Nuclear Energy Research*, A Special Report of the USAEC, 129 (December 1962).
12. La Riviere, J. R., *et al.*, *The Hanford Isotopes Production Plant Engineering Study*, USAEC Report HW-77770, General Electric Co. (July 1963).
13. Pinajian, J. J., *Research Applications to Physical Science and Engineering, Proceedings of Oak Ridge Radioisotopes Conference*, p. 5, April 1963.
14. Harmer, D. E., Beale, J. S., Pumpelly, C. T., and Wilkinson, B. W., *The Dow Ethyl Bromide Process: An Industrial Application of Radiation Chemistry, Industrial Uses of Large Radiation Sources*, Vol. II, Conference Proceedings, Salzburg, 217, May 1963.
15. Ward, R. A., *Irradiated Polyethylene Comes of Age, Nucleonics*, **19**, No. 8, 54, August 1961.
16. Artandi, C., and Van Winkle, W., Jr., *Electron-Beam Sterilization of Surgical Sutures, Nucleonics*, **86** (March 1959).
17. *Radiation Processing of Chemicals, Chem. Engng. News*, **41**, 80 (22 April 1963).
18. Kent, J. A., Winston, A., and Boyle, W. R., *Preparation of Wood-Plastic Combinations Using Gamma Radiation*, Annual Report to the USAEC, ORO-612 (1963).
19. Klahr, C. N., and Cohen, M. S., *Fabrication of Semiconductor Devices by Neutron Transmutation Doping*, Annual Report to Division of Isotopes Development, USAEC, Contract AT(30-1)-3124 (December 1963) (in print).
20. *Atomic Energy Process to Solve Foaming Problem is Reported by Esso Research*, Press Release of the Esso Research and Engineering Company, 10 June, 1963.
21. *A Review of AEC and Army Food Irradiation Programs*, Hearings before the Joint Committee on Atomic Energy, U.S. Congress, 6-7 March, 1962.
22. *Preservation of Food by Low-Dose Ionizing Energy*, U.S. Army Research and Engineering Center, Natick, Mass. (January 1961).
23. *Food Preservation by Irradiation*, Bibliography, Office of Tech. Services, U.S. Dept. of Commerce, SB-403, 1962 and supplements.
24. *Proceedings of International Conference on Radiation Research*, U.S. Army Research and Engineering Center, Natick, Mass. (January 1963).
25. Chleck, D., Maehl, R., Cucchiara, O., and Carnevale, E., *Int. J. Appl. Radiation and Isotopes*, **14**, No. 11/12, 581 (1963).
26. Chleck, D., and Maehl, R., *ibid.*, 593.
27. Chleck, D., and Cucchiara, O., *ibid.*, 599.
28. *Isotopes and Radiation Technology*, **1**, No. 1, 53 (1963).
29. Hull, D. E., *Preprints of Division of Petroleum Chemistry*, American Chemical Society, Vol. 9, No. 2, p. A33, Philadelphia Meeting, 5-10 April 1964.
30. Benson, R. H., and Maute, R. L., *Proceedings of Oak Ridge Radioisotope Conference*, p. 76, April 1963.
31. Hull, D. E., Fries, B. A., and Gilmore, J. T., *Int. J. Appl. Radiation and Isotopes* (in press).
32. *Chemical Effects of Nuclear Transformations*, Proceedings of a Symposium, Prague, 24-27 October 1960, IAEA, Vienna (1961).

33. Harbottle, G., *Radioisotopes in the Physical Sciences and Industry, Conference Proceedings*, Copenhagen, 6-17 September 1960, IAEA, Vienna (1962).
34. *Tritium in the Physical and Biological Sciences*, Proceedings of a Symposium, Vienna, May 1961, IAEA, Vienna (1962).
35. Rothchild, S. (Ed.), *Advances in Tracer Methodology*, Plenum Press, New York (1963).
36. Wilzbach, K. E., *J. Amer. Chem. Soc.*, **79**, 1013 (1957).
37. Yavorsky, P. M., and Gorin, E., *Utilization of Radioactive Isotopes in Coal Process Research*, USAEC report NYO 9143, Consolidation Coal Co. (1961).
38. Yavorsky, P. M., and Gorin, E., *J. Amer. Chem. Soc.*, **84**, 1071 (1962).
39. Yavorsky, P. M., and Gorin, E., *Development of Tritium Labeling of Organic Materials*, USAEC report NYO 10178, Consolidation Coal Co. (1963).
40. *Tritium Labeling of Organic Materials in Isotopes and Radiation Technology*, Vol. 1, No. 3 (1964).
41. Raaen, V. F., Tsiomis, A. K., and Collins, C. J., *J. Amer. Chem. Soc.*, **82**, 5502 (1960).
42. Raaen, V. F., Dunham, T. K., Thompson, D. D., and Collins, C. J., *J. Amer. Chem. Soc.*, **85** 3497 (1963).
43. *Radioactive Dating*, Proceedings of a Symposium, Athens, 19-23 November 1962, IAEA, Vienna (1963).
44. Aebersold, P. C., *Powerful Nuclear Techniques for Universal Use, First National Conference on Nuclear Energy*, Pretoria, 8-11 April 1963.
45. Anders, E., *Rev. Mod. Phys.*, **34**, No. 2, 287 (1962).
46. Ehmman, W. D., *J. Chem. Educ.*, **38**, No. 2, 53 (1961).
47. *Use of a Stable Isotope as a Tracer in Isotopes and Radiation Technology*, Vol. 1, No. 3 (1964).
48. Aebersold, P. C., and Fowler, E. E., *Recent Developments in Industrial Applications of Isotopes: Gaging and Nondestructive Testing*, Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, P/1794, Vol. 19, p. 76, United Nations (1958).
49. Rupp, A. F., *Nucleonics*, **20**, No. 1, 47 (1962).
50. Bird, L. L., Papadopoulos, J., Rex, R. A., and Ziegler, C. A., *Radiological Methods for Geophysical Research*, USAEC report NYO 10220, Parametrics, Inc. (1963).
51. Johnston, W. H., *High Dilution On-Stream Isotopic Tracers*, USAEC report JLI-2748-0-7, W. H. Johnston Laboratories, Inc. (1963).
52. Pound, R. V., and Rebka, G. A., *Phys. Rev. Lett.*, **4**, 337 (1960).
53. Goldansky, V. I., *At. Energy Rev.*, **1**, No. 4, 3 (1963).
54. Wertheim, G. K., *J. Appl. Phys.*, **32**, 110S (1961).
55. Gonser, V., Grant, R. W., and Kregzde, J., *Science*, **143**, 680 (1964).
56. Boyle, A. J. F., and Hall, H. E., *Reports on Progress in Physics*, Vol. XXV (1962).
57. Zito, R., Jr., *Space/Aeronautics*, **40**, No. 12, 90 (1963).
58. Matthews, R. B., and Henderson, J. G., Proceedings of IEEE 1963 National Space Electronics Symposium, Miami Beach, 1-4 October 1963.
59. Hofstadter, R., O'Dell, E. W., and Schmidt, C. T., Ninth Scintillation and Semiconductor Counter Symposium, Washington, 26-28 February 1964. To be published in *Trans. IEEE*.
60. M. E. Shepherd, Franklin Systems, Inc., personal communication.
61. Jordan, E. D., *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, **6**, No. 2, 418 (1963).
62. Perry, J. K., *ibid.*, 421.
63. Jenkins, T. L., and Reines, F., Ninth Scintillation and Semiconductor Counter Symposium, Washington, 26-28 February 1964. To be published in *trans. IEEE*.
64. Schenkel, F. W., *IRE Trans. on Nucl. Sci.*, **NS-9**, No. 3, 83 (1962).
65. Sapp, W. W., Ninth Scintillation and Semiconductor Counter Symposium, Washington, 26-28 February 1964. To be published in *Trans. IEEE*.
66. Borkowski, C. J., *Isotopes Technology Development Program* (Abstract only) USAEC report TID-7681, p. 45 (December 1963).
67. Proceedings of Conference on the Utilization of Multiparameter Analyzers in Nuclear Physics, Grossinger, N. Y., 12-15 November, 1962. USAEC report NYO 10595.
68. Abstracts of Second National Meeting, Society for Applied Spectroscopy, San Diego, 14-18 October 1963.
69. Heath, R. L., Proceedings of Conference on the Utilization of Multiparameter Analysis in Nuclear Physics, Grossinger, N. Y., 12-15 November 1962, USAEC report NYO 10595, p. 120.
70. O'Kelley, G. D., Bromley, D. A., and Goodman, C. D., *ibid.*, p. 49.
71. *Applications of Computers to Nuclear and Radiochemistry*, Gatlinburg, October 1962. National Academy of Sciences, NAS-NS-3107.
72. *Modern Trends in Activation Analysis*, Proceedings of 1961 International Conference, College Station, Texas, 15-16 December 1961.
73. Guinn, V. P., *Advances in Neutron Activation Analysis*, P/197, this volume.

INTERNATIONAL STATUS SUPPLEMENT

A number of countries, after submitting unsolicited contributions for this Session, *Use of Tracers and of Large Radiation Sources in Industrial Processes*, were asked by the International Atomic Energy Agency for

their authorization to make the information contained in their papers available for review in this supplement. The following countries agreed to this proposal: Argentina, Byelorussian Soviet Socialist Republic,

Czechoslovakia, Finland, Hungary, Japan, Poland, Romania and the United Arab Republic.

It is the objective of this supplement to abstract from these contributions information on current radioisotope applications in these countries.

Argentina [1]: Tracers are used for locating gas pipe connectors, dye studies in textile processes, locating obstructions in oil and gas pipe systems, leak detection, flow measurements, and to study sand movements along coastal shores. Sealed sources are used in gamma radiography, oil well logging, thickness gauging, liquid level measurements, and soil density and moisture content determinations.

Byelorussian Soviet Socialist Republic [2]: Radioisotope units are used in a complex of instruments, equipment, and automatic control systems, applied to humidification, drying, cut-off lathes, thickness gauging, and the machine-building industry. Radiation processes are used in grafting of polymers on natural and synthetic fibers, radiative modification of wood, and in a polyglucon sterilization process. Tracer methods are also used in a wide variety of industrial processes.

Czechoslovakia [3]: Radioactive methods for determining important engineering data, especially in the metallurgical, machine-building, chemical, and petroleum industries, are discussed. Examples include the use of sulfur-35 and carbon-14 in slag studies and diffusion studies of these elements in steel and gray iron; electroplated cobalt-60 in gear wear and cobalt-60 tracing in pipeline transfer of a series of different petroleum products; sodium-24 in cement, amalgam, and glass studies; and krypton-85 in leakage testing of sealed transistors. Uses of tracers in deep borings in geological explorations are discussed.

Finland [4]: Tracer methods are now routinely used in Finland for determination of material flow, mixing properties, and the behavior of components of complex systems. Examples include distribution of sulfur in sulfite cooking; sodium retention in sulfite pulp washing; movement of beds of solids in a rotary kiln using cobalt-60 rays transversing the kiln; behavior of pulverized coal ash components in a cement rotary kiln using lanthanum-140 mixed into the pulverized coal stream; and measurements of the groundwater flow in the vicinity of a mining industry using bromine-82 in ammonium bromide as the tracer. In another application, the dynamic properties of flotation cells in amine concentration plant were studied. Test runs were made to clarify the over-all mixing properties in a system of large containers coupled in series. Reference is also made to the use of radioactive tracers in simulated tests of manufacturing operations of new industrial plants.

Hungary [5]: Nuclear equipment for industrial purposes includes widespread use of gamma-radiography: gamma gauges for level measurements and for determination of pulp densities, wall and foil thicknesses, and moisture content. Radioactive methods are being used for determining natural radioactivity of rocks; strata continuities in gas and petroleum layers; and boundaries of water- and petroleum-bearing layers. Tracers are used to determine wear of metallic parts, quality of fuel and lubricants, effectiveness of gas filters, and surface and subsurface movements of soil water. Radioactive sources in luminescent material are used for underground signaling and illumination in mines. Radiation sources are used for grafting, copolymerization, solid-phase polymerization, and halogenation of polymers.

Japan [6]: Japan is making large use of radioisotope tracers and radiation sources in industrial applications. Phosphorus-32 and gold-198 are used as tracers in the chemical industry to obtain residence times and flow patterns in the production of carbon black by the oil furnace method; carbon-14 is used to measure the rate of hydrolysis in the distillation process for producing urea; and lanthanum-140 in oxide form is used to determine velocity distribution in cement-calcining kilns. Tracers are also used in the metallurgical industry to check the erosion of fire bricks at the shaft of a blast furnace; for estimating the amount of residual molten pig iron; for determination of the motion of molten pig iron in the crucible of a blast furnace; for study of the homogeneity of pig iron in mixers; and for examination of the mass transfer in basic open hearth metal baths prior to and during tapping.

Large radiation sources are used in industrial processes in Japan for production of polyethylene by gamma irradiation; styrene-grafted cellulose fiber by electron beam irradiation; polyoxymethylene by electron beam irradiation polymerization of trioxane; polyethylene foam; shrinkable polyethylene film; and expandable resin of unusual heat resistance and mechanical strength by radiation polymerization of acrylic monomers.

Poland [7, 8]: The use of radioisotope tracers for material flow investigations of basic chemical operations has become a specialty in Poland. Using sodium-24, charge velocities are measured in rotary kilns for the production of superthomasine, sponge iron, sulfuric acid from gypsum, and for oxidation of chromates, barytes processing, and sodium carbonate calcination. Sodium-24 is also used to determine retention time of salt brine in carbonation columns, and to measure the actual volume of a glass melting furnace. Other material flow uses include zinc-65 for studying decomposition kinetics in pyro enrichment of zinc ores; caesium-137 for determining steam cir-

culation in boilers; and radioactive germanium-hydrocarbon compounds for tracing in the petroleum industry. Tracers are also used for investigating lead corrosion in sulfuric acid solutions, paint film compactness, resistance of rubber lining to acids, mixing of molybdenum oxide with small amounts of nickel oxalate, wear kinetics of blast furnace brick, cutting tools, engine parts, and rubber tires. Radioisotope sources are being used to determine static electricity behavior during dust removal from industrial gases.

Radioisotope investigation on behavior of trace impurities has been applied in Poland to many chemical processes. Radioactive tracers copper-64, iron-59, cadmium-115, zinc-69m, arsenic-76, and tellurium-204 have been used for investigating the separation of high-boiling-point impurities (copper and iron) and low boiling point impurities (cadmium) in zinc. Investigations are also being carried out on the behavior of the bulk element in normal industrial rectification columns of the New Hersey type. The separation of zinc from cadmium, as well as the behavior of arsenic and thallium during the industrial rectification of cadmium, is also being studied using radioisotope methods.

A new method has been developed for disclosing dislocation spots on silicon monocrystal surfaces, by short time diffusion of radiotracer silver-110m followed by autoradiographing. Additionally, a new technology of germanium recovery from zinc electrolytes has been developed by use of radioisotope germanium-71. The process of iodating rock salt intended for human consumption has been studied using iodine-131. Platinum, eroded from catalyst grids used for the ammonia oxidation process in nitric acid production, has been located with iridium-192. Considerable amounts of platinum have been thus recovered.

Romania [9]: Developments in the chemical and petroleum industries are discussed here, especially the use of radioisotopes as tracers and as radiation sources in industrial processes. Specific cases in the chemical industry are (a) gamma sources used as oxidation initiators in production of fatty acids, and (b) tagged atoms for determining optimum operating variables in the following: control of superphosphate manufacture, determination and prevention of loss of mercury in electrolytic production of soda, study of physicochemical processes in carbide manufacture, study of process flow in production of steam with a lead-copper battery, studying the technology of production of glutamic acid from casein, and the synthesis of codeine. Specific cases in the petroleum industry are the use of radioisotope tracers for examining such problems as: control of multiple selective hydraulic fissures, observation of the process of forcing water into a drill-hole layer using radioactive or stable isotopes and spectral analysis, determination of engineer-

ing status of gas wells, and observation of a stratum after injection of materials used to prevent sand slides. Continuous development and future extension of automatic control equipment using radioisotope sources and of gamma radiography are discussed.

United Arab Republic [10]: Industrial uses of radioisotopes were initiated in the early 1960s with radiography and other applications in the metallurgical, chemical, ceramic, glass, and petroleum industries. Selected examples are caesium-137 for locating pipes or voids in steel ingots, and for determining the presence of cavities (pipes, gas, bubbles, porosity) inside refractory blocks; sulfur-35 for determining variation of sulfur content in the Siemens Martin furnace, and hence desulfurization times; cobalt-60 for measuring erosion of glass furnace walls, and for introducing secondary reference points at different depths in oil wells; and chromium-51, iodine-131 for determining permeability of layers by the use of labelled ion exchange resins.

Conclusion

It is clear from the applications reported in this Supplement that the trends in radioisotope and radiation source use are progressing in a parallel fashion throughout the world. The rate of progress in further extending the use of isotopes and radiation to worldwide science, engineering and industry can be accelerated through continued communication and exchange of ideas and technology.

REFERENCES

1. Castagnet, A. C., and Gomez, H., *Use of Tracers and Radiation Sources in Industrial Processes*.
2. Zhikharev, E. A., *Use of Radioactive Isotopes in Industry of the BSSR*.
3. Mandl, M., Dedek, D., Kohl, F., and Frinta, Z., *Radioactive Tracers Used to Solve Technological Problems in Czechoslovakia*.
4. Rotkirch, E., Kommonen, F., and Castren, J., *Tracer Methods Adopted by Research and Industry in Finland*.
5. *Industrial Use of Radioactive Isotopes in Hungary* compiled by the National Atomic Energy Commission Institute of Isotopes, Budapest.
6. *Japanese Contribution to Survey Paper*, in two parts.
7. Akerman, K., *The Use of Radioisotopes for Investigation of Basic Chemical Operations*.
8. Akerman, K., *Radioisotope Investigation on Behavior of Trace Impurities in Various Chemical Processes*.
9. *Radioisotopes Utilization in the Chemical and Oil Industries in Rumania*.
10. Etman, M., and Varga, K., *The Uses of Radioisotopes in the Industry of the United Arab Republic*.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/196 Etats-Unis d'Amérique

Progrès dans la production des radioisotopes et leur utilisation scientifique et industrielle
par P. C. Aebersold

Trente ans seulement après la découverte de la radioactivité artificielle, les radioisotopes fabriqués sont devenus de précieux instruments aux possibilités pratiquement illimitées dans presque tous les domaines de la recherche et de l'application pratique. La radioactivité artificielle est véritablement parmi les découvertes les plus utiles pour l'humanité.

On découvre et on prépare un nombre sans cesse croissant de radionucléides. Quelque 130 espèces radioactives sont largement utilisées et de production courante, mais il y a en puissance un nombre beaucoup plus grand de radioisotopes utiles. On les produit notamment avec toute une gamme d'accélérateurs assurant l'obtention de rayonnements et de particules de types et d'énergies très divers; il est ainsi possible d'utiliser des photons, des neutrons, des protons, des deutérons, des tritons, de l'hélium 3, des particules alpha et des noyaux lourds. Cependant, l'essentiel de la production de substances radioactives est maintenant le fait de réacteurs nucléaires. Par bombardement neutronique dans des réacteurs de grande puissance à flux intense, la production des radioisotopes les plus utiles peut être développée pour couvrir tous les besoins imaginables jusqu'à atteindre des centaines de mégacuries de certains radioisotopes comme le cobalt 60. D'autre part, la production d'énergie électrique et/ou de plutonium s'accompagne inévitablement de celle d'énormes quantités de produits de fission. Des mégacuries de divers radioisotopes ainsi obtenus sont séparés et purifiés. Les coûts de production ont été fortement abaissés et pourraient diminuer encore avec l'augmentation de la demande.

Des progrès étonnants ont également été réalisés en ce qui concerne les détecteurs de rayonnements, l'électronique nucléaire, l'enregistrement automatique et l'analyse des données. L'utilisation de scintillateurs solides est devenue courante; on dispose de cristaux de formes et de tailles diverses, atteignant jusqu'à 40 cm de diamètre. Les scintillateurs liquides sont largement utilisés pour un efficace comptage interne des particules d'échantillons très divers. L'emploi de détecteurs à cristal, à matière plastique ou à liquide, couplés à des analyseurs d'amplitude multicanaux, et de techniques par coïncidence ou anticoincidence permet le comptage d'échantillons de très faible activité, tels que le corps humain. Récemment, on a

mis au point des détecteurs transistorisés qui ont un pouvoir de résolution plus élevé pour le comptage des particules alpha, des électrons de conversion et des rayons X et gamma de faible énergie. Des détecteurs transistorisés à éléments plus lourds sont à l'étude; ils permettront d'obtenir un pouvoir de résolution élevé pour le comptage des rayons gamma de haute énergie.

L'utilisation des radioisotopes s'est améliorée et développée rapidement dans tous les domaines. Dans les sciences physiques, les radioisotopes trouvent leurs principales applications dans les méthodes d'analyse, la détermination des structures moléculaires, la mesure de la cinétique des réactions, la détermination des propriétés physiques et du comportement de la matière. En ce qui concerne les sciences appliquées, de nouvelles utilisations sont mises au point dans des domaines comme l'océanographie, la météorologie, l'hydrologie, la technique spatiale, etc. Le mémoire présente un tableau des possibilités et avantages croissants offerts par les radioisotopes à la science et à l'industrie dans le monde entier; il met en lumière les possibilités encore mal exploitées.

A/196 США

Достижения в области производства радиоактивных изотопов и их применение в науке и промышленности

Пол. С. Эберсолд

Всего лишь через три десятилетия после открытия наведенной радиоактивности искусственные изотопы стали надежным и эффективным средством исследования и нашли широкое применение в исследовательской работе и промышленности. Искусственная радиоактивность поистине является открытием, принесшим человечеству огромную пользу.

В обнаружении новых радиоактивных изотопов и производстве отдельных видов известных радиоактивных изотопов достигнуты необыкновенные успехи. Хотя широкое применение в настоящее время нашло около 130 видов радиоактивных изотопов, производство которых налажено промышленностью, потенциальное количество полезных изотопов намного превышает эту величину. Радиоактивные изотопы производятся на всевозможных ускорителях, генерирующих большое количество различных типов частиц разнообразных энергий и излуче-

ний, включая нейтроны, протоны, дейтроны, тритоны, He^3 , α -частицы и тяжелые ядра. Однако главным источником радиоактивности в настоящее время являются ядерные реакторы. Путем использования нейтронной бомбардировки в мощных реакторах с высокой плотностью потока производство наиболее важных изотопов может быть расширено до уровня, способного удовлетворить любые нужды, вплоть до нескольких сот мегакюри, как это, например, имеет место с Co^{60} . В то же время большие количества продуктов деления получают в виде побочных продуктов как в энергетических реакторах, так и при производстве плутония. Отдельные радионуклиды такого происхождения в настоящее время отделяют и очищают в количествах, соответствующих активности миллионы кюри. Стоимость производства намного снизилась, с увеличением спроса может быть достигнуто еще большее снижение.

Огромны достижения в области детекторов излучения и связанной с ней электроникой, в области автоматической записи и анализа полученных данных. Как правило, в настоящее время используются сцинтилляционные счетчики с твердыми кристаллическими фосфорами. Выпускаются фосфоры различной формы и размера (вплоть до 40 см в диаметре). Жидкостные сцинтилляционные счетчики широко используются для счета частиц всевозможных проб в геометрии 4 π . Применение жидких, пластических и кристаллических детекторов, а также многоканальных амплитудных анализаторов, схем совпадений и антисовпадений позволило осуществлять обсчет образцов крайне низкой активности, размер которых может достигать размеров человека. Недавно были разработаны различные полупроводниковые детекторы, позволяющие получить более высокое энергетическое разрешение при регистрации α -частиц, конверсионных электронов, а также рентгеновского и космического излучения малой энергии. Полупроводниковые детекторы, находящиеся в настоящее время в стадии разработки и имеющие в своем составе более тяжелые элементы, позволят с высокой эффективностью и высоким энергетическим разрешением осуществлять регистрацию γ -излучения высокой энергии.

Усовершенствование существующих способов применения радиоактивных изотопов и расширение их использования идут быстрыми темпами во всех областях науки и техники. В физических науках наибольшее применение радиоактивные изотопы находят в аналитических методах, для определения молекулярных структур, измерения кинетики реакций и определения физических свойств и поведения материи. В области прикладных наук радиоактивные изотопы находят новые применения в технике, а также в области океанографии, метеорологии, гидрологии, геологических наук и астрофизики. В будущем применение радиоак-

тивных изотопов, по-видимому, будет ограничиваться только изобретательностью людей.

В приложении к докладу по международному положению в области изотопов приведена информация о применении радиоактивных изотопов в различных странах.

A/196 Estados Unidos de América

Progresos en la producción y la utilización de radioisótopos con fines científicos e industriales

por P. C. Aebersold

Solamente tres decenios después de descubrirse que la radiactividad podía ser inducida artificialmente, los radioisótopos producidos por el hombre se han impuesto como instrumento eficaz y adaptable a una serie casi infinita de aplicaciones en prácticamente todos los campos de la investigación y de la técnica. La radiactividad artificial constituye verdaderamente uno de los descubrimientos que más beneficios reportan a la humanidad.

Los progresos en el descubrimiento y producción de radionúclidos son espectaculares. Aunque ya se producen corrientemente unas 130 especies radiactivas que han encontrado aplicación considerable, el número posible de radioisótopos útiles es mucho mayor. Los medios de producción comprenden una vasta gama de aceleradores de gran flexibilidad en cuanto al tipo y la energía de las partículas y en cuanto a la radiación generada, que incluyen la utilización de fotones, neutrones, protones, deuterones, tritones, helio-3, partículas alfa y núcleos pesados. Sin embargo, la gran mayoría de los isótopos radiactivos se produce actualmente en los reactores nucleares. Por bombardeo neutrónico en reactores de flujo y potencia elevados, pueden obtenerse los radioisótopos más útiles en cantidades suficientes para atender cualquier necesidad (hasta varios centenares de megacurios de algunos isótopos, tales como el cobalto-60). Además, la producción de energía nucleoelectrónica y de plutonio origina inevitablemente grandes cantidades de productos de fisión de los que se obtienen, por separación y purificación, distintos radioisótopos en cantidades del orden de los megacurios. Los costes de producción han disminuido considerablemente y podrían reducirse aún más si aumentase la demanda.

También son impresionantes los progresos realizados en materia de detectores de radiaciones y su tecnología electrónica, así como en el registro y análisis automático de datos. Se ha generalizado el empleo de contadores de centelleador sólido para los que se dispone de cristales de varias formas y en tamaños hasta de 16 pulgadas de diámetro. Los contadores de centelleador líquido se utilizan ampliamente para el recuento eficaz de partículas internas en muestras de muy diversas formas. El empleo de detectores

de líquido, plástico y de cristal, con todos sus circuitos de analizadores multicanales de amplitud de impulsos y dispositivos de coincidencia o anticoincidencia, o de ambas cosas, se ha extendido al recuento de actividades sumamente bajas en muestras hasta del tamaño del cuerpo humano. Recientemente se han ideado varios tipos de detectores semiconductores que poseen un mayor poder resolutivo en energía, para el recuento de partículas alfa, electrones de conversión y rayos X y gamma de baja energía. Se están preparando detectores semiconductores a base de elementos más pesados para el recuento eficaz y de gran poder resolutivo de rayos gamma de mayor energía.

En todos los campos de aplicación de los radioisótopos se registran, a ritmo acelerado, un progreso

y una expansión paralelos. En las ciencias físicas fundamentales se aplican principalmente con fines analíticos, determinación de la estructura molecular, mediciones de la cinética de las reacciones y determinación de las propiedades físicas de la materia. En las ciencias aplicadas, se están investigando nuevos usos en ingeniería y en campos como la oceanografía, meteorología, hidrología, otras ciencias geológicas y tecnología del espacio. En lo futuro, la aplicación de los isótopos radiactivos es probable que sólo tropiece con los límites impuestos por el ingenio humano.

La memoria contiene un anexo en el que se facilita información sobre las aplicaciones actuales de los radioisótopos en determinados países.

Применение изотопов и источников излучения в исследованиях в области физических и химических наук

П. А. Грузин

Достижения ядерной физики используются в различных областях науки и техники. Общим итогом работы ученых и инженеров в данном направлении можно считать создание новой отрасли науки — прикладной ядерной физики, основу которой составляют такие вопросы, как физика изотопов и ядерных излучений, применение изотопов и ядерных излучений в промышленности и научных исследованиях, использование реакторов и радиоизотопных источников излучения в исследованиях свойств веществ и влияния понижающих излучений на их поведение и технологические процессы. Применение изотопов и ядерных излучений в области физики, химии и технических наук позволило решить ряд научных и практических задач.

По проблеме использования ядерно-физических методов в литературе публикуется большое число научных работ. Большинство этих работ касается применения изотопов и источников ядерных излучений в области физики, химии и технических наук. В настоящем обзоре излагаются новые результаты некоторых исследований только по наиболее важным вопросам рассматриваемой проблемы. Наряду с данными, полученными в СССР, в доклад включены результаты отдельных исследований ученых других стран, представивших свои материалы*.

Достижения ядерной физики широко используются в научных исследованиях начиная с 1945—1950 гг. В последние годы ядерно-физические методы получили дальнейшее развитие как в СССР, так и в других странах. Так же как и прежде, большое число исследований проводится в области физики и химии.

ИССЛЕДОВАНИЯ В ОБЛАСТИ ФИЗИКИ

Важными задачами исследований в области физики являются такие вопросы, как изучение природы сил межатомного взаимодействия, дефектов кристаллической структуры, характера атомных перемещений, спектра колебаний ато-

мов в кристаллической решетке, картины микрораспределения элементов. С явлениями диффузии связаны плавление и затвердевание кристаллических тел, деформация и рекристаллизация металлов, прочность и разупрочнение сплавов при высоких температурах. Характером распределения примесей и структурных дефектов решетки определяются такие фундаментальные свойства металлов, как пластичность, твердость, прочность, коррозионная стойкость, а также многие теплофизические и магнитоэлектрические свойства металлов и ионных кристаллов. Применение изотопных и радиоизотопно-физических методов исследования позволило существенно продвинуться в понимании деталей ряда актуальных научных вопросов.

Диффузия в твердых телах и жидкостях

Первые определения параметров самодиффузии с применением естественнорадиоактивных изотопов были выполнены в 1920 г.¹ Искусственные радиоактивные изотопы впервые были применены для изучения самодиффузии в 1937 г.² Значительного развития достигли эти работы в последние годы.

Использование радиоактивных и стабильных изотопов в исследованиях по диффузии имеет принципиальное научное и практическое значение. Это позволяет существенно упростить эксперименты по диффузии, а также открывает новые возможности в изучении механизма поступательного перемещения атомов в твердом теле и жидкостях.

Разработан ряд оригинальных радиоизотопных методов изучения диффузии. Отличительной чертой методов является возможность определения констант диффузии и чисел переноса при низком уровне их диффузионной подвижности и низкой концентрации диффундирующего элемента, а также возможность разделять потоки граничной и объемной диффузии в поликристаллах. Методы имеют высокую чувствительность и точность. Константы диффузии определяются на основе данных радиометрического и масс-спектрометрического опре-

* При составлении доклада использованы материалы Австралии, Бельгии, ФНР, Канады, Японии.

деления концентрационных и кинетических кривых диффузии.

При изучении объемной диффузии в твердых телах надежные результаты дает метод интегральной радиоактивности остатка образца²⁻¹³. В отдельных случаях он позволяет обнаруживать граничную диффузию в поликристаллических телах. Коэффициент диффузии определяется по данным измерения интегральной радиоактивности остающейся части плоского образца при последовательном снятии с него слоев. Наиболее просто метод осуществляется, когда изотоп диффундирующего вещества имеет гамма-излучение либо мягкое бета-излучение ($E_\beta < 0,2 \text{ Мэв}$).

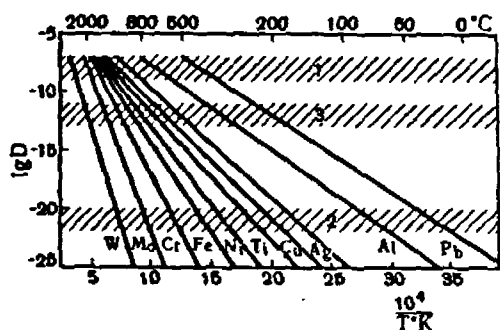


Рис. 1. Уровни диффузионной подвижности металлов. Области 1, 2 — уровни подвижности протекания процессов плавления и область 3 — уровень рекристаллизации твердых растворов и рекристаллизации металлов и твердых растворов

К другой группе относятся методы, основанные на определении изменения интегральной радиоактивности образца без его разрушения. Представляются перспективными два частных метода: метод отношения интегральных радиоактивностей и метод кинетической кривой интегральной радиоактивности¹⁴⁻¹⁶. Первый из этих методов основан на экспериментальном определении отношения интенсивностей мягкой и жесткой частей спектра излучения образца. Опыты ставятся так, чтобы при диффузии существенно убывала интенсивность только мягкой части спектра. Отношение интенсивностей служит мерой протекания диффузии. Простое осуществление метод находит тогда, когда изотоп имеет бета- и гамма-излучение. В данном методе исключается необходимость учитывать изменения размеров образца, испарение изотопа, изменения геометрических условий и другие факторы. Метод оказывается особенно полезным при снятии кинетической кривой отношения интегральных радиоактивностей.

Находит применение также метод, в котором выражение для кинетической кривой интегральной радиоактивности образца получено с учетом одновременного протекания объемной и

граничной диффузии в поликристаллическом теле^{17,18}.

Изучена в широкой области температур самодиффузия в металлах, в том числе в таких технически важных, как железо, никель, титан, цирконий, хром, молибден, вольфрам^{10,19-25}. Получены результаты, позволяющие установить некоторые закономерности, касающиеся уровня диффузионной подвижности различных металлов, граничной диффузии и диффузии металлоидов в сталях. Установлено, что уровень диффузионной подвижности металлов связан с их температурой плавления и структурным состоянием (рис. 1). В случае сталей диффузионные подвижности легирующих элементов

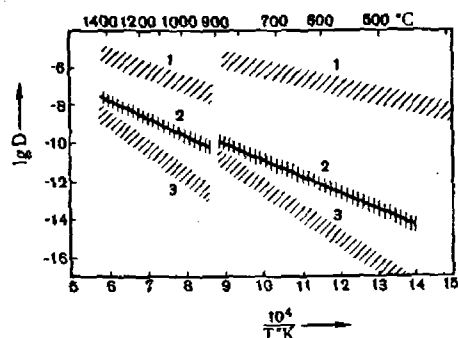


Рис. 2. Уровни диффузионной подвижности углерода (1,1), фосфора (2,2) и легирующих элементов (3,3) для стали

и некоторых металлоидов (фосфора, серы, углерода) резко отличаются по своему уровню. Фосфор, например, по уровню диффузионной подвижности занимает промежуточное положение между легирующими элементами и углеродом (рис. 2). На основе полученных результатов сделаны выводы, направленные на улучшение технологии выплавки и термообработки сплавов и полупроводниковых материалов²⁶⁻²⁹.

Таким образом, следует отметить, что в области физики благодаря использованию радиоизотопных методов получены принципиально важные научные данные по одному из коренных вопросов кинетической теории твердого тела и жидкостей.

Распределение элементов в сплавах

В исследованиях значительное место отводится изучению картины распределения элементов в микрообъемах сплавов. Такие данные позволяют уточнить режимы термической и механической обработки сталей и сплавов и получить металлы с определенными свойствами. Наряду с известными методами изучения структуры сплавов все более широкое применение находит метод контактной автордиографии,

основанный на использовании радиоактивных изотопов и нейтронного облучения.

Получены данные по влиянию аллотропии, рекристаллизации, деформации, легирования и других факторов на распределение элементов в сталях, сплавах и полупроводниковых материалах³⁰⁻³². Особое значение имеют результаты, касающиеся микрораспределения примесей и легирующих элементов в сплавах на основе циркония и титана³³. Показано, что жаропрочность и коррозионная стойкость циркониевых и титановых сплавов в определенной степени определяется наличием возникающих при $\beta \rightleftharpoons \alpha$ -превращении концентрационных неоднородностей в микрообъемах. Авторадиографические данные по ликвиции ряда элементов в сталях и сплавах позволяли внести изменения в технологию их обработки^{34,35}.

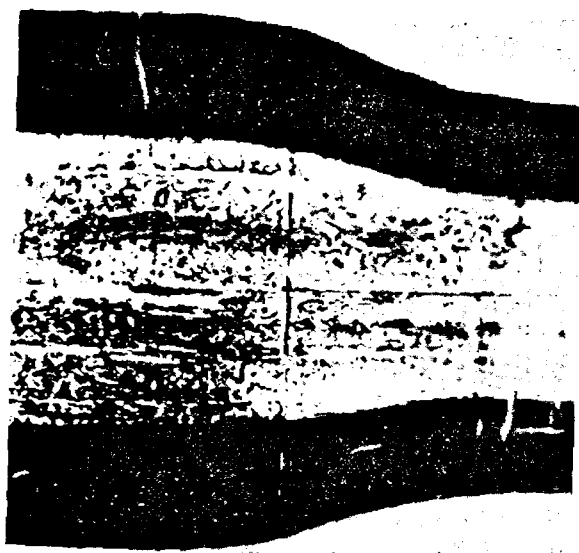


Рис. 3. Авторадиограмма продольного сечения очага деформации раската после тринадцатого пропуса

Метод контактной авторадиографии применяется в исследованиях процесса течения металла при горячей и холодной деформации^{36,37}. Полученные данные позволили установить влияние различных параметров процесса деформирования (усилия и скорость деформации, калибровка прокатных валков и др.) на глубину и характер очага деформации, а также на перераспределение примесей и легирующих элементов в деформируемом металле (рис. 3). Эти результаты необходимы для решения ряда задач, связанных с повышением прочностных характеристик изделий, получаемых методом деформирования, а также с разработкой новых технологических процессов, таких, например, как термомеханическая обработка, экструзия при сверхвысоких давлениях и др.

С применением метода авторадиографии проведены интересные исследования процесса очистки металлов зонной плавкой (рис. 4)^{38,39}.

Это позволяет уточнить технологию зонной плавки при низком содержании примесей.

Проведены эксперименты по усовершенствованию известных методов авторадиографии⁴⁰. Получены интересные результаты по распределению серы в чугунах. Установлено, что она концентрируется в графитовых хлопьях. Метод авторадиографии впервые применен в исследованиях макромозаики и плотности дислокаций. Установлено, что в монокристаллах Al—Cu имеется макромозаика дендритного типа (рис. 5), а в монокристаллах Al—Zn полосчатого типа.

Получены нейтронные авторадиограммы, характеризующие распределение малых добавок бора в циркониевых сплавах (рис. 6). Эти данные представляются интересными с точки зрения улучшения свойств сплавов.

Межатомное взаимодействие в металлах

Применение методов ядерной физики позволяет определять степень ионизации атомов в твердых телах (радиометрическое определение чисел переноса), парциальные магнитные моменты атомов в сплавах (методом дифракции нейтронов), распределение электронов вокруг ядра атомов и среднее квадратичное смещение атомов в кристаллической решетке (определение величины эффектов резонансного поглощения гамма-излучения мессбауэровских изотопов), термодинамические активности (радиометрическое определение упругости пара) и характеристики фононного спектра (методы дифракции нейтронов и определения спектров резонансного поглощения гамма-излучения). По всем этим вопросам получен фактический материал. В частности, определены парциальные магнитные моменты атомов компонентов ряда сплавов (железо — углерод, никель — хром и др.)⁴¹, получены данные для ряда сплавов по влиянию фазового состава и других факторов на спектр резонансного поглощения гамма-излучения изотопа олова-119.

Важные сведения о состоянии атомов в твердых растворах дают исследования переноса растворенных элементов под действием электрического тока. Применение метода радиоактивных индикаторов позволяет определять с высокой точностью незначительные изменения концентрации растворенных элементов, происходящие под действием электрического тока^{42,43}.

Ценные сведения о межатомном взаимодействии дает изучение сублимации металлов и сплавов. В этих экспериментах основным моментом является измерение при различных температурах упругости пара, находящегося в равновесии с твердой фазой. Для этой цели применяют радиоактивные изотопы и метод масс-спектрометрического анализа^{44,45}. Таким путем можно изучать сублимацию тугоплавких металлов. Масс-спектрометрический анализ дает

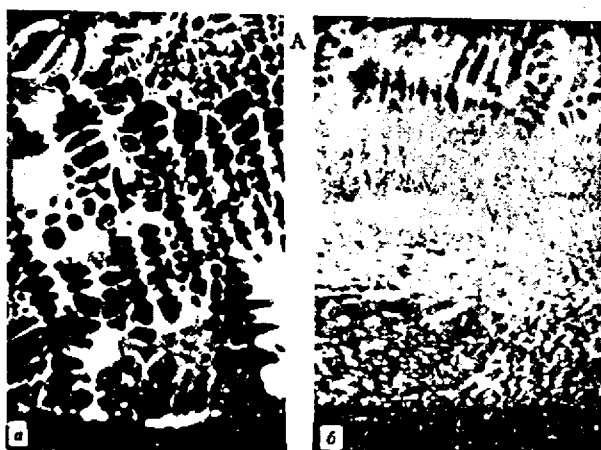


Рис. 4. Распределение примесей в слитках, полученных зонной плавкой; А — автордиограмма распределения самария в алюминии³⁹; а — загрязненная часть слитка; б — очищенная часть слитка; В — распределение C^{14} по длине слитка железа³⁸

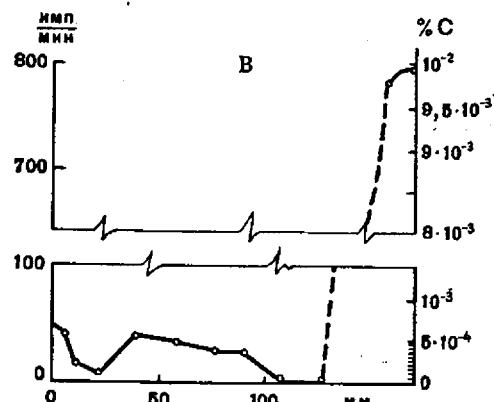


Рис. 5. Автордиограмма распределения Cu^{64} в сплавах Al—Cu⁴⁰



Рис. 6. Автордиограмма распределения добавок бора в цирконии. X 60 (увеличение 60, дан условный знак)

возможность исследовать структуру частиц газовой фазы. Результаты, полученные в последние годы, позволили выяснить вопросы, касающиеся термодинамики сплавов тугоплавких металлов, полупроводниковых соединений и других материалов.

В последние годы получили развитие работы по использованию мёссбауэровских радиоактивных изотопов для изучения свойств и поведения металлов в различных условиях. Используются как механические, так и электродинамические установки.

Эффект Мёссбауэра применяется как для изучения самих дефектов, так и их влияния на кристаллическую решетку. Исследовался ⁴⁶ эффект на ядрах олова-119, в матрицах ванадия,

золота, платины, таллия. На атомах растворителя в сплавах на основе олова обнаружена зависимость величины вероятности эффекта от концентрации примеси, что говорит об изменении силовых констант в твердых растворах ⁴⁷. Показана связь эффекта с температурой плавления и атомным объемом вещества.

Природа радиационных нарушений в твердых телах

В области радиационной физики проводились исследования в таких направлениях, как изучение действия ядерных излучений на свойства материалов, выяснение физической природы радиационных дефектов, изучение механизма

взаимодействия излучений с веществом, а также разработка методов радиационной обработки твердых тел излучениями различных видов и их применение в исследованиях, связанных с выяснением механизма действия различных факторов на свойства твердых тел (прочность, пластичность, электрические и магнитные свойства). Разработаны методы радиационной обработки металлов, основанные на использовании полоний-бериллиевых источников нейтронов и isotопных гамма-установок, а также методы внутреннего облучения металлов альфа-частицами и осколками деления ядер⁴⁸.

Получены данные по влиянию отдельных видов излучений на упругие и неупругие свойства, на механические свойства монокристаллов и поликристаллических образцов меди, цирко-

ИССЛЕДОВАНИЯ В ОБЛАСТИ ХИМИИ

Применение радиоактивных изотопов и ядерных излучений существенно расширяет границы практических возможностей химии. Исследование действия ядерных излучений на химические вещества и процессы составляет предмет новой области химической науки — радиационной химии. Установлена принципиальная возможность управления с помощью радиационного воздействия ходом химических превращений и получения новых материалов, что имеет практическое значение. Высокоэффективные радиационнохимические процессы могут быть осуществлены в промышленном масштабе при использовании мощных источников ионизирующих излучений.

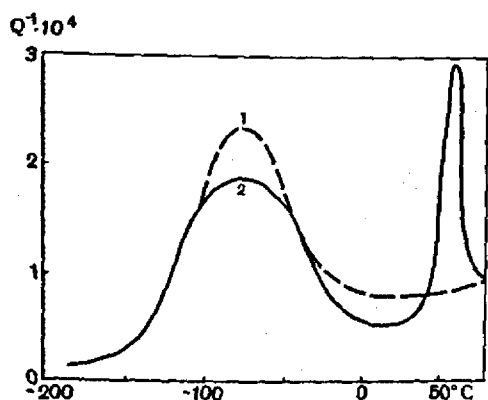


Рис. 7. Температурные зависимости Q^{-1} для циркония:

1 — до облучения; 2 — внутреннее облучение альфа-частицами на Po—Be-источнике

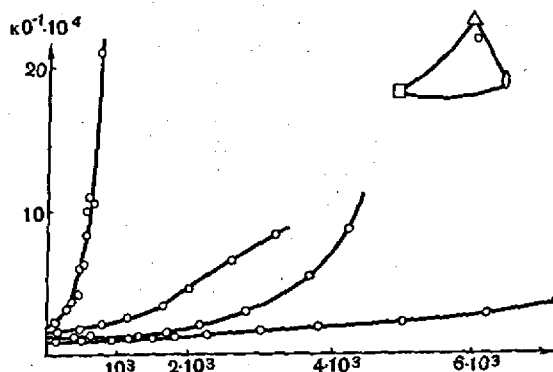


Рис. 8. Амплитудные зависимости Q^{-1} для монокристалла меди:

1 — отжиг 800°C; 2 — гамма-облучение (-10^5); 3 — отжиг 150°C; 4 — отжиг 200°C (треугольником показана ориентация образца)

ния, титана, хрома и молибдена. На цирконии показано влияние гамма-излучения и других видов излучения на пик внутреннего трения типа Бордони (рис. 7), а также влияние малых доз гамма-излучения на амплитудную зависимость внутреннего трения монокристаллов меди, поликристаллического молибдена и других металлов (рис. 8)⁴⁹. Установлено, что при облучении металлов малыми дозами гамма-излучений радиоактивного кобальта-60 (10^8 — 10^9 r) возникают парные дефекты Френкеля, которые при отжиге могут приводить к образованию петель дислокаций сравнительно большой плотности.

Проводятся работы по воздействию ядерных излучений на протекание физико-химических реакций в металлах и сплавах. Изучено, в частности, воздействие гамма- и электронного облучения на процесс старения сплава медь — бериллий. В ряде работ изучено взаимодействие радиационных дефектов с дислокациями на сталях, упроченных термомеханической обработкой.

Исследования в области радиационной химии*

Возможность использования мощных источников излучения стимулировала дальнейшее развитие исследований в радиационной химии. Большое число работ направлено на развитие теории радиационно-химических превращений.

Проведено большое количество исследований по изучению элементарных радиационных процессов в газах, жидкостях и твердых органических соединениях. Результаты этих работ позволили решить ряд теоретических вопросов радиационной химии, что способствовало расширению использования мощных радиационных установок, особенно в области химии полимеров.

* Соавторы этой части доклада: А. Д. Абкин, Х. С. Багдасарьян, Н. А. Бах, Н. Я. Бубен, В. В. Воеводский, В. И. Гольданский, П. И. Долин, В. Л. Карпов, Л. С. Полак, С. Я. Шпекецкий, В. Л. Тальрозе, Н. Н. Туницкий, Б. Л. Цетлин, Б. В. Эршлер.

Важные результаты получены по выяснению механизма радиационных процессов в водных растворах ^{66, 67, 68, 69, 70}. Так, например, восстановление некоторых комплексных соединений платины, палладия и родия в водных растворах при облучении приводит к образованию черни, отличающейся по каталитической активности от приготовленной обычными методами. Исследование радиолитического концентрированных растворов показало, что серная кислота разрушается в результате как прямого, так и косвенного действия излучения, тогда как хлорная только вследствие прямого действия. Механизм радиолитического включает промежуточное образование радикалов и возбужденных молекул.

Калориметрическим методом показано, что полимеризация акрилонитрила при -196°C протекает непосредственно в твердой фазе в момент облучения без энергии активации; высказано предположение, что эта полимеризация обусловлена короткоживущими активными центрами, гибнущими сразу после выключения пучка.

Начальная скорость полимеризации тетрафторэтилена (ТФЭ) в твердом состоянии вблизи точки плавления на порядок выше, чем в жидкости при той же температуре, причем эффективная энергия активации в кристалле равна $0,6-1,6$ ккал/моль, а в жидкости 6 ккал/моль⁵³. Методами ЭПР и термолюминесценции установлено, что при облучении твердого ТФЭ образуются парамагнитные и заряженные частицы. Гидравлической зависимости указывает на ионный механизм полимеризации ТФЭ в твердом состоянии⁵⁴.

Показано, что полимеризация ацетальдегида, пропиональдегида и триоксана под действием рентгеновского и гамма-излучения наиболее эффективно протекает в кристалле при температурах на $10-30^{\circ}\text{C}$ ниже точки плавления⁵⁵. Исследована полимеризация акрилонитрила, диметилбутадиена и циклогексадиена в канальных соединениях включения мочевины и тиомочевины и установлена стереорегулярность получаемых полимеров⁷².

Установлены значительные кинетические эффекты и увеличение молекулярного веса при полимеризации акрилонитрила при -78°C в присутствии Cu_2O , NiO и $\text{NiO}-\text{Li}$, а также MgO . Аналогичный эффект наблюдался в случае метилметакрилата в присутствии MgO . Полимер обладает стереорегулярностью. Увеличения скорости реакции не наблюдается для обоих мономеров в присутствии TiO_2 и Cr_2O_3 . В отсутствие добавок полимеризация этих систем протекает в тех же условиях по радикальному механизму.

Исследование полимеризации в массе при 0°C и $1-30$ рад/сек показало, что для фтор- и фторхлорзамещенных этилена G равно 10^3-10^6 , в то время как полимеризация перфторпропилена в жидком и твердом состояниях приводит к низкомолекулярным продуктам со степенью полимеризации не выше 20, причем

в момент фазового перехода скорость полимеризации не меняется. В условиях радиации при дозах 10^7-10^9 рад получены твердые полимеры из различных мономеров алилового ряда, не полимеризующихся, как известно, под действием обычных инициаторов. В отличие от обычных инициаторов при действии радиации на производные боразола образуются растворимые продукты со степенью полимеризации ~ 9 , содержащие в цепи боразольные циклы. Осуществлена также радиационная полимеризация окиси дифенилвинилфосфина в расплаве^{56, 73, 74}.

Для создания новых минерально-органических, в частности ионообменных, препаратов осуществлена газофазная полимеризация мономеров, дающих полимеры с ионообменными функциональными группами, на неорганических сорбентах. Полученные комбинированные ионообменники обладают рядом преимуществ⁵⁷. Этим же методом осуществлена полимеризация виниловых мономеров, олефинов и мономеров ацетиленового ряда на различных синтетических волокнах⁵⁸.

Показано, что привитой полимер образуется в ориентированном состоянии.

Комбинированную реакцию вулканизации можно осуществить совместным действием серы при нагревании и облучении, причем возникают два типа межмолекулярных связей: полисульфидные и углерод-углеродные, соотношения между которыми можно строго регулировать. При комбинированном процессе вулканизации снижается молекулярная деструкция по сравнению как с обычным процессом серной вулканизации, так и с чисто радиационной вулканизацией. Резины, содержащие два типа молекулярных сеток, отличаются повышенной стойкостью к старению, малыми гистерезисными потерями и повышенной износостойкостью^{75, 76}.

Получены новые данные о механизме сшивания полидиметилсилоксанов, и методом ЭПР определены радикалы, участвующие в этом процессе. Показано, что скорость рекомбинации аномально возрастает в точках фазового перехода. Исследована радиационная вулканизация различных типов каучуков в латексах, причем найдено, что процесс проходит с более высоким выходом, чем в каучуке в массе. При совместном введении в полимер термостабилизатора и антирада обнаружено явление синергетизма, то есть комбинированные добавки обладают более сильным действием, чем это следует из аддитивности.

Исследованы процессы радиационного сшивания в ряду смешанных полиэфиров себаценовой и терефталевой кислот с этиленгликолем при переменном составе звеньев. Установлено, что при низких и средних дозах крайний член ряда — полиэтилентерефталат деструктурирует, а при высоких — сшивается. По мере убывания в ряду сополимеров содержания звеньев терефталевой кислоты выход сшивания растет.

Радиационная хемсорбция изучалась на примере системы $H_2-Al_2O_3$. Показано, что в поле гамма-излучения происходит интенсивная диссоциативная адсорбция, причем число адсорбционных центров для атомов H на поверхности Al_2O_3 зависит от условий предварительной тренировки катализатора⁵⁸.

Радиолиз алканов, адсорбированных на различных окисных катализаторах, содержащих Al_2O_3 , протекает по ценному механизму при температурах реакции выше $150^\circ C$ ⁵⁴. Радиолиз циклогексана исследован на поверхности ряда сорбентов, являющихся как изоляторами, так и полупроводниками. При этом наблюдается антибатность электропроводности и скорости образования водорода. При совместном действии радиации доза $\sim 10^8$ рад и катализаторной происходит обращение ряда каталитической активности по сравнению с термokatалитическими процессами. На ряде катализаторов, близких по своим свойствам к изоляторам, методом ЭПР обнаружено⁵⁹ появление парамагнитных центров и адсорбированных радикалов C_6H_7 . Исследованы реакции радиолиза двуокиси углерода и радиационного синтеза аммиака, адсорбированных на различных окислах (Al_2O_3 , SiO_2 , ZnO , MgO , NiO и CuO), не являющихся катализаторами без облучения, но эффективно повышающих выход благодаря передаче энергии⁶⁰.

Рассмотрен один из возможных механизмов передачи энергии излучения от твердого тела к адсорбированному веществу, основанный на допущении статистического распределения энергии в локальных областях и концентрации ее в отдельных «горячих» точках поверхности⁶¹.

Применение радиоактивных изотопов в катализе и другие вопросы

Изучаются разнообразные физико-химические свойства радиоактивных твердых тел. Введение изотопа серы S^{35} в сульфат калия влияет на скорость изотопного обмена серы в системе $K_2SO_4-SO_3$ при высоких температурах⁶⁴. Величина адсорбции органических красителей на осадке сульфата бария, содержащего добавки Ra или S^{35} , отличается от адсорбции на нерадиоактивном препарате в связи с тем, что на поверхности образцов $BaSO_4$ возникают за счет эмиссии бета-частиц положительные заряды, а на осадке (Ba, Ra) SO_4 благодаря эмиссии альфа-частиц — отрицательные заряды. Обнаружено⁶⁵, что адсорбция паров органических веществ увеличивается на радиоактивном сорбенте ($BaSO_4$). Установлено, что изменяется растворимость химических соединений, содержащих радиоактивные изотопы (оксалат церия с добавкой Ce^{144} , оксид иттрия с добавкой Y^{90} или Y^{91} и др.)^{66, 67}.

Введение радиоактивных изотопов позволяет в ряде случаев повысить эффективность ката-

лизаторов. На сульфате магния, содержащем S^{35} , значительно возрастает скорость дегидратации циклогексанола⁶⁸, на трикальцийфосфатном катализаторе $Ca_3(PO_4)_2 \cdot H_2O$, с добавками Ca^{45} или P^{32} в несколько раз увеличивается скорость дегидратации изопропилового спирта (рис. 9)⁶⁹.

Электронномикроскопические исследования показали, что на поверхности радиоактивных образцов обнаруживаются многочисленные де-

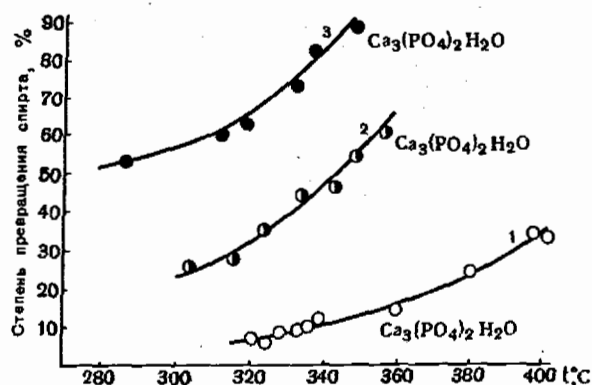


Рис. 9. Скорость дегидратации изопропилового спирта на трикальцийфосфатном катализаторе; образцы катализаторов:

1 — нерадиоактивный; 2 — 58,1 мкюри/г, Ca^{45} ; 3 — 52,2 мкюри/г, P^{32}

фекты и неровности⁷⁰. В процессе образования твердой фазы из жидкой или газообразной среды излучение радиоактивных изотопов приводит к возникновению большого числа новых центров кристаллизации. Однако связанное с указанными явлениями увеличение поверхности радиоактивных препаратов не объясняет всех особенностей их свойств. Важную роль играют непрерывно возникающие в объеме и на поверхности радиоактивных образцов электрические заряды.

В последнее время установлено влияние излучения радиоактивных изотопов на электрохимические свойства металлов⁷¹. Радиоактивные образцы железа и стали-2 обнаружили значительно более высокую скорость коррозии в воде и влажном воздухе по сравнению с нерадиоактивными образцами тех же металлов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Применение изотопов и ядерных излучений в физике и химии привело к решению ряда научных и практических задач, имеющих принципиальное значение. Выяснены многие вопросы, касающиеся теории строения вещества, механизма и кинетики физико-химических процессов, созданы новые технологические процессы, методы исследования, а также средства контроля и автоматического регулирования

параметров производственных процессов. Все это составляет один из важнейших результатов использования атомной энергии в мирных целях.

Возможности научно-технического прогресса на основе использования достижений прикладной ядерной физики далеко не исчерпаны. Дальнейшее развитие этой новой отрасли науки пойдет несомненно по пути расширения исследований в области физики и химии с применением ядерно-физических методов, а также постановки исследовательских работ по широкому кругу вопросов, в первую очередь по физике ядерных излучений. Нет никакого сомнения, что нас ожидает ряд важнейших научных открытий в данной области.

Результативность работы по данной проблеме, безусловно, будет определяться в определенной степени тем, насколько будут совершенными координация усилий и личный контакт ученых различных стран.

Автор выражает большую благодарность Викт. И. Слицину, Н. А. Бах, П. С. Савицкому, В. П. Силицину, Ю. Ф. Бабиковой, Ю. А. Поликарпову, А. А. Васильеву и другим советским ученым за предоставление материалов и помощь в подготовке доклада, а также официальным лицам и ученым ряда зарубежных стран, подготовившим и приславшим материалы для доклада.

ЛИТЕРАТУРА

- Groh and Nevesy. *J. Ann. Phys.*, 63 (1920); 65 (1921).
- А. М. Заглубский. *Известия АН СССР, Сер. Физ.*, 6 (1937).
- П. Л. Грузин. *Доклады АН СССР*, 86, № 2, 289 (1952).
- П. Л. Грузин и др. *Инженерно-физический журнал*, 1, 64 (1958).
- П. Л. Грузин, Ю. А. Поликарпов и М. А. Шумилов. *Заводская лаборатория*, 4 (1955).
- П. Л. Грузин. *Известия АН СССР, ОТН*, № 6 (1953).
- П. Л. Грузин, Ю. А. Поликарпов, Г. Б. Федоров. *Физика металлов и металлосведение*, 4, 94 (1957).
- П. Л. Грузин и др. *Проблемы металлосведения и физики металлов*, 327 (1958).
- П. Л. Грузин, Ю. А. Поликарпов. *Металлургия и металлосведение чистых металлов*, вып. 2, 259 (1960).
- П. Л. Грузин, Ю. Д. Жаров, Ю. А. Поликарпов. *ГОСНИТИ*, вып. 4, 23 (1962).
- П. Л. Грузин, В. В. Мураль. *Физика металлов и металлосведение*, 17, № 384 (1964); 16, № 4, 551 (1963).
- P. Lacombe, P. Guiraldencq, C. Leytonie. *Conference Radioisotopes, Copenhagen* (1960).
- Г. Б. Федоров, В. М. Раецкий, Е. А. Смирнов. *Металлургия и металлосведение чистых металлов*, 3, 203 (1961).
- П. Л. Грузин, Д. Ф. Литвин. *Доклады АН СССР*, 94, 1 (1954).
- В. Т. Борисов, В. М. Голиков, Г. В. Щербедийский. *Заводская лаборатория*, 9, 1070 (1959).
- В. Т. Борисов, В. М. Голиков, Г. В. Щербедийский. *Проблемы металлосведения и физики металлов*, 5, 381 (1958).
- С. Д. Гердрикен, И. Я. Дехтяр. *Диффузия в металлах и сплавах в твердой фазе*, 1960.
- В. Т. Борисов, В. М. Голиков. *Заводская лаборатория*, 2, 178 (1956).
- R. H. Betts, J. A. Davies. *Материалы конференции*, Канада.
- П. Л. Грузин, Г. Б. Федоров. *Металлургия и металлосведение чистых металлов*, 1, 219 (1959).
- Е. В. Борисов, П. Л. Грузин, Л. В. Павлинов, Г. Б. Федоров. *Там же*, стр. 213.
- П. Л. Грузин, С. В. Земский, А. Д. Тютиник. *Проблемы металлосведения и физики металлов*, 366 (1958).
- П. Л. Грузин, Г. Г. Рябова. *Металлургия и металлосведение чистых металлов*, 2, 134 (1960).
- Г. Б. Федоров, Ф. И. Жомов. *Там же*, 3, 43 (1961).
- М. А. Губарева, Л. М. Мороз. *Процессы диффузии, структура и свойства металлов*, 15 (1964).
- С. З. Бокштейн. *Там же*, стр. 5.
- П. Л. Грузин. *Металлосведение и термическая обработка металлов*, 10 (1960).
- П. Л. Грузин, В. В. Мураль. *Физика металлов и металлосведение*, 17, № 5, 792 (1964).
- Б. И. Болтакс. *Диффузия в полупроводниках* (1961).
- П. Л. Грузин, Ю. Ф. Бабилова, Г. Б. Федоров. *Применение радиоактивных изотопов и ядерных излучений в металлургии*, 3 (1960).
- З. А. Алирова, П. Л. Грузин, С. В. Земский. *Доклады АН Азербайджанской ССР*, 6, 467 (1959).
- Г. Г. Рябова, Ю. Ф. Бабилова, П. Л. Грузин. *Применение радиоактивных изотопов и ядерных излучений в промышленности*, 47 (1961).
- Г. Г. Рябова, П. Л. Грузин. *Металлургия и металлосведение чистых металлов*, 3, 26 (1961).
- П. Е. Болотов, *Физика металлов и металлосведение*, 11, 420, 427 (1961).
- С. З. Бокштейн, С. Т. Кишкин, Л. М. Мороз. *Исследование строения металлов методом радиоактивных изотопов* (1959).
- П. Л. Грузин. *Атомная энергия*, 11, 379 (1961).
- Н. А. Челышев. *Труды НТОЧМ*, 23 (1960).
- П. Л. Грузин и др. *Металлургия и металлосведение чистых металлов*, 2, 276 (1960).
- Материалы конференции. Япония.
- Материалы конференции. Польская Народная Республика.
- В. П. Гоманьков, Д. Ф. Литвин, А. А. Лошманов, Б. Г. Лященко. *Металлосведение и физика металлов*, 14, 26 (1962).
- Ю. Ф. Бабилова, П. Л. Грузин. *Металлургия и металлосведение чистых металлов*, 1, 200 (1959); 2, 128 (1960).
- Ю. Г. Миллер, К. П. Гуров. *Физика твердого тела*, 3, 2870 (1961).
- Е. З. Винтайкин, П. Л. Грузин, С. П. Федоров. *Труды Всесоюзной научно-технической конференции по применению радиоактивных и стабильных изотопов и излучений в народном хозяйстве и науке, металлургия и металлосведение*, 1958, стр. 339.
- Ан. Н. Несмеянов. *Там же*, стр. 331.
- В. А. Брюханов, Н. Н. Деягин, Ю. Каган. *Труды ИАЭ* (1963).
- Л. А. Алексеев, П. Л. Грузин. *Доклады АН СССР* (1964).
- П. Л. Грузин, А. Н. Семенихин. *Атомная энергия*, 15, № 2, 169 (1963).
- Ю. Д. Жаров, А. А. Васильев, П. Л. Грузин, Ю. А. Поликарпов. *Релаксационные явления в металлах и сплавах*, 221 (1963).

50. В. И. Спицын, А. А. Баландин, Л. И. Барсова, А. К. Пикаев. Доклады АН СССР, 144, № 344, 588 (1962).
51. Л. Т. Бугаенко, Хуан Гуань-линь, Н. А. Бах. Доклады АН СССР, 149, 1099 (1962).
52. М. А. Брук, А. Д. Абкин, П. М. Хомиковский. Доклады АН СССР, 149, 1322 (1963).
53. П. В. Зимаков, Е. Д. Волкова, А. В. Фокин, А. Д. Сорокин, В. М. Беликов. Сб. «Радиоактивные изотопы и ядерные излучения в народном хозяйстве СССР», 1, 219 (1961).
54. Б. С. Пшежецкий, В. А. Каргин, Н. А. Бах. Высокомолекулярные соединения, 3, 925 (1961); 4, 728 (1962).
55. В. В. Коршак, Н. И. Бекасова, Ю. Г. Чикишев, В. А. Замятина, Б. Л. Цетлин, С. Р. Рафиков. Высокомолекулярные соединения, 5, 1447 (1963).
56. Е. В. Егоров, П. Д. Новиков, Д. Р. Разгон, Б. Л. Цетлин. Доклады АН СССР, 146, 1360 (1962).
57. А. В. Власов, П. Я. Глазунов, Н. В. Михайлов, С. Р. Рафиков, Л. П. Токарева, Б. Л. Цетлин, М. В. Шаблыгин. Доклады АН СССР, 144, 382 (1962).
58. Ю. А. Колбановский, Ю. В. Пепеляев. Кинетика и катализ, 1 (1964).
59. Ю. А. Колбановский, Ю. В. Пепеляев, Л. С. Полак. Нефтехимия, 3, 124 (1963).
60. В. И. Владимирова, Г. М. Жаброва, Б. М. Каденаци, В. Б. Казанский, Г. Б. Парийский. Доклады АН СССР, 143, 101 (1963).
61. Радиолиз углеводородов (1962).
62. Р. Кекеельсберг. Материалы конференции. Белгия.
63. В. В. Воеводский. Кинетика и катализ, 2, 14 (1961).
64. Викт. И. Спицын, И. Е. Михайленко. Доклады АН СССР, 121, 319 (1958).
65. Л. Д. Белякова, В. В. Грозов, А. В. Киселев, Викт. И. Спицын. Радиохимия, 4, 410 (1962).
66. Викт. И. Спицын, Н. Г. Мощанская. Доклады АН СССР, 133, 859 (1960).
67. Викт. И. Спицын, И. Е. Зимаков. Доклады АН СССР, 138, 130 (1961).
68. А. А. Баландин, Викт. И. Спицын и др. Доклады АН СССР, 121, 495 (1958).
69. Викт. И. Спицын и др. Доклады АН СССР, 146, 1128 (1962).
70. Викт. И. Спицын и др. Доклады АН СССР, 139, 1163 (1961).
71. Викт. И. Спицын и др. Доклады АН СССР, 143, 1406 (1962).
72. О. Л. Главати, Л. С. Полак, В. В. Щекин. Нефтехимия, 3 (1963).
73. Е. В. Волкова, А. И. Скобина. Высокомолекулярные соединения (в печати).
74. С. А. Долматов, Л. С. Полак. Нефтехимия, 3, 683 (1963).
75. З. Н. Тарасова, М. Я. Каплунов и др. Труды Симпозиума по химии радиоактивных веществ МАГАТЭ (1963) (в печати).
76. А. С. Кузьминский. Высокомолекулярные соединения (1964) (в печати).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/298 USSR

Use of isotopes and radiation sources
in physical and chemical research

By P. L. Gruzin

This paper surveys the most important achievements of the past two or three years in the Soviet Union in the use of isotopes and radiation sources in physical and chemical research. Material provided by Australia, Belgium, Canada, Japan and Poland is also reviewed. Work in physics may be summarised as follows:

(a) Diffusion in solids and liquids, including:

- (i) self-diffusion, especially in metals;
- (ii) determination of diffusion constants and transfer numbers at low levels of mobility and low diffusate concentrations;
- (iii) volumetric diffusion in solids; and
- (iv) non-destructive determination of changes in integral radioactivity.

(b) Distribution of elements in alloys, including:

- (i) distribution of elements in micro-volumes of alloys;
- (ii) effects of allotropy, recrystallisation, deformation, alloying and other factors on the distribution of elements in steels, alloys and semi-conductors;

- (iii) study of flow of metals in hot and cold working, using contact autoradiography;
- (iv) cleaning of metals by zone melting; and
- (v) improvement of methods of autoradiography.

(c) Atomic interactions in metals, including:

- (i) degree of ionisation of atoms in solids;
- (ii) partial magnetic moments of atoms in alloys;
- (iii) electron distribution around atomic nuclei, and mean square displacement of atoms in crystal lattices;
- (iv) thermodynamic activities;
- (v) characteristics of phonon spectra;
- (vi) translocation of dissolved elements under the influence of an electric current;
- (vii) sublimation of metals and alloys; and
- (viii) applications of Mössbauer isotopes.

(d) Nature of radiation damage in solids, including:

- (i) effects of nuclear radiations on the elastic and mechanical properties of materials;
- (ii) physical nature of radiation defects (with special reference to dislocation loops) and the mechanism by which radiations interact with materials; and
- (iii) methods of treating solids by radiation.

Research in *chemistry* has comprised, among other fields:

- (a) Research in radiation chemistry, including:
- (i) elementary radiation processes in gases, liquid and organic solids;
 - (ii) mechanism of radiation processes in aqueous solutions, with special reference to radiolysis;
 - (iii) mechanism of polymerisation, and use of radiations as an initiator, in the production of ion-exchangers and in vulcanisation;
 - (iv) radiation cross-linkage; and
 - (v) radiation chemisorption.
- (b) Applications of radioisotopes in catalysis, including:
- (i) physio-chemical properties of radioactive solids;
 - (ii) effect of radioisotopes on efficiency of catalysts; and
 - (iii) influence of radioisotopes on electrochemical properties of solids.

A/298 URSS

**Emploi des radioéléments
et des sources de rayonnement
dans la recherche en physique et en chimie**
par P. L. Gruzin

Le mémoire passe en revue les principaux résultats acquis au cours des deux ou trois dernières années en Union soviétique concernant l'utilisation des radioéléments et des sources de rayonnement dans la recherche en physique et en chimie. Les renseignements fournis par l'Australie, la Belgique, le Canada, le Japon et la Pologne sont également étudiés.

Les travaux dans le domaine de la *physique* peuvent être résumés comme suit:

- a) Diffusion dans les solides et les liquides, notamment:
- i) autodiffusion, en particulier dans les métaux;
 - ii) détermination des constantes de diffusion et des nombres de transfert aux bas niveaux de mobilité et aux faibles concentrations du diffusat;
 - iii) diffusion volumétrique dans les solides; et
 - iv) détermination non destructive des modifications de la radioactivité intégrale.
- b) Distribution des éléments dans les alliages, notamment:
- i) distribution des éléments dans des micro-volumes d'alliage;

- ii) effets de l'allotropie, de la recristallisation, de la déformation, de l'alliage et d'autres facteurs sur la distribution des éléments dans les aciers, les alliages et les semi-conducteurs;
- iii) étude de l'écoulement des métaux dans le travail à chaud et à froid, par autoradiographie par contact;
- iv) épuration des métaux par la fusion par zone; et
- v) perfectionnement des méthodes d'autoradiographie par contact.

c) Interactions atomiques dans les métaux, notamment:

- i) degré d'ionisation des atomes dans les solides;
- ii) moments magnétiques partiels des atomes dans les alliages;
- iii) distribution des électrons autour des noyaux atomiques et déplacement moyen quadratique des atomes dans les réseaux cristallins;
- iv) activité thermodynamique;
- v) caractéristiques des spectres de phonons;
- vi) déplacement d'éléments dissous sous l'influence d'un courant électrique;
- vii) sublimation des métaux et des alliages; et
- viii) applications de l'effect Mössbauer.

d) Nature des dégâts par irradiation dans les solides, notamment:

- i) effets des rayonnements nucléaires sur les propriétés élastiques et mécaniques des matériaux;
- ii) nature physique des défauts radio-induits (en particulier des boucles de dislocation) et mécanisme de l'interaction des rayonnements avec les matériaux; et
- iii) méthodes de traitement des solides par irradiation.

La recherche en *chimie* a porté en particulier sur les domaines suivants:

- a) Recherche sur des questions de radiochimie, notamment:
- i) processus radiatifs élémentaires dans les gaz, les liquides et les solides organiques;
 - ii) mécanisme des processus radioinduits dans les solutions aqueuses, en particulier dans le cas de la radiolyse;
 - iii) mécanisme de la polymérisation et emploi des rayonnements comme agents d'amorçage dans la préparation des échangeurs d'ions et dans la vulcanisation;
 - iv) réticulation radio-induite; et
 - v) chimisorption radio-induite.

b) Applications des radioéléments dans la catalyse, notamment:

- i) propriétés physico-chimiques des solides radioactifs;
- ii) effets des radioéléments sur l'efficacité des catalyseurs; et
- iii) influence des radioéléments sur les propriétés électrochimiques des solides.

A/298 URSS

Utilización de isótopos y de fuentes de radiación en la investigación física y química

por P. L. Gruzin

En esta memoria se pasa revista a los resultados más importantes obtenidos en la Unión Soviética durante los últimos dos o tres años en la utilización de isótopos y de fuentes de radiación en la investigación física y química. También se examinan los materiales facilitados por Australia, Bélgica, el Canadá, el Japón y Polonia.

La investigación en física puede resumirse como sigue:

a) Difusión en sólidos y líquidos, sobre todo:

- i) autodifusión, especialmente en los metales;
- ii) determinación de las constantes de difusión y de los números de transferencia para bajos niveles de movilidad y pequeñas concentraciones de las sustancias difundidas;
- iii) difusión volumétrica en los sólidos, y
- iv) determinación no destructiva de cambios en la radiactividad integral.

b) Distribución de los elementos en las aleaciones, sobre todo:

- i) distribución de elementos en microvolúmenes de las aleaciones;
- ii) defectos de alotropía, recristalización, deformación, aleación y otros factores sobre la distribución de los elementos en aceros, aleaciones y semiconductores;
- iii) estudio del flujo de metales en el trabajo en caliente y en frío, utilizando autorradiografía de contacto;
- iv) limpieza de metales mediante fusión por zonas, y
- v) mejora de los métodos autorradiográficos.

c) Interacciones atómicas en los metales, sobre todo:

- i) grado de ionización de los átomos en los sólidos;
- ii) momentos magnéticos parciales de los átomos en las aleaciones; distribución de electrones en torno a los núcleos atómicos y desplazamiento cuadrático medio de los átomos en las redes cristalinas;
- iv) actividades termodinámicas;
- v) características de los espectros fónicos;
- vi) translocación de elementos disueltos bajo la influencia de una corriente eléctrica;
- vii) sublimación de metales y aleaciones, y
- viii) aplicaciones de los isótopos de Mössbauer.

d) La naturaleza de los daños por irradiación en los sólidos, sobre todo:

- i) efectos de las radiaciones nucleares sobre las propiedades elásticas y mecánicas de los materiales;
- ii) naturaleza física de los defectos producidos por la radiación (haciéndose especial referencia a los bucles de dislocación) y mecanismo de interacción de las radiaciones con los materiales, y
- iii) métodos de tratamiento de sólidos por irradiación.

La investigación en química comprende entre otros campos:

a) La investigación en la química de las radiaciones, sobre todo:

- i) procesos elementales de la irradiación en gases, líquidos y sólidos orgánicos;
- ii) mecanismo de los procesos de irradiación en soluciones acuosas, haciéndose especial referencia a la radiólisis;
- iii) mecanismo de la polimerización y utilización de las radiaciones como iniciador, en la producción de cambiadores de iones y en vulcanización;
- iv) enlace cruzado por irradiación, y
- v) sorción química por irradiación.

b) Aplicaciones de los radioisótopos en la catálisis, sobre todo:

- i) propiedades fisicoquímicas de los sólidos radiactivos;
- ii) efectos de los radioisótopos sobre la eficacia de los catalizadores, y
- iii) influencia de los radioisótopos sobre las propiedades electroquímicas de los sólidos.

The role of radioisotope techniques in hydrology

By B. R. Payne, J. F. Cameron, A. E. Peckham, L. L. Thatcher *

There is no doubt that water is the foremost requisite for development of an area, but it is only relatively recently that widespread measures have been taken to ensure its most efficient use. In 1965 the International Hydrological Decade will begin under the auspices of UNESCO. The main objective of this programme is to accelerate the study of the water resources with a view to their rational development and use. In drawing up the programme it was recognised that more emphasis must be placed in certain areas such as groundwater. During the Decade isotope techniques will be widely used. This paper reviews the role which these techniques are already playing and emphasizes how scientific hydrology can benefit by a wider use of these relatively new methods.

APPLICATION OF RADIOISOTOPES IN GROUNDWATER HYDROLOGY

The use of groundwater is based upon a knowledge of its origin, direction and velocity, quantity, accessibility and quality. Radioisotopes, because of their high sensitivity and quality, are now being used for the measurement of these parameters. The applications may be considered under three headings: localised groundwater studies involving the use of artificially injected radioisotopes; regional groundwater studies where use is made of environmental radioactivity; and borehole logging in measuring lithological characteristics relevant to groundwater investigations.

An important measurement that the groundwater hydrologist is frequently required to make is the velocity of movement of water through an aquifer. This may be regional movement from a large recharge area which gives information on the rate at which an underground reservoir is replenished, or it may be local movement at a single well which gives information on the yield of this well. Conventional methods of estimating the velocity of water movement include computations from head and permeability considerations, pumping tests and dye or salt tracer movement between wells. Pumping tests are costly and not always

applicable. Dye and salt tracing suffer from retardation effects, density effects and poor detection sensitivity. Radioisotope techniques for velocity measurement offer advantages in both the localized and regional applications. Hence this is one of the major applications of radioisotopes in groundwater hydrology.

Localized groundwater studies

Single well method for measurement of groundwater velocity

In 1957, an isotopic method for the determination of the rate of horizontal flow of groundwater was developed by Raymond *et al.* [1] and by Moser *et al.* [2]. This is the *single well* method which involves the injection of a radioisotope solution into a confined section of a well and the measurement of the exponential dilution of the isotope solution with time as unlabelled water slowly moves into the well. The expression for the calculation of velocity is:

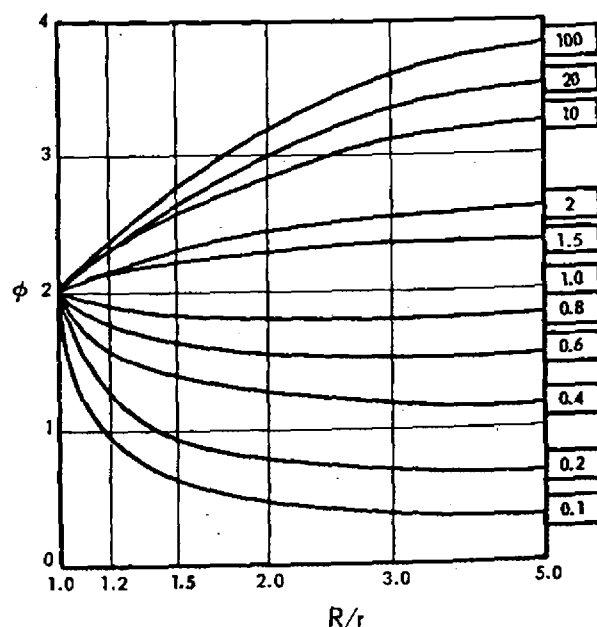


Figure 1. Graph of Ogilvi's equation
Boxes at right of graph indicate ratio of permeability of gravel pack or mud cake to permeability of aquifer. R : outer radius of gravel pack or mud cake; r : inner radius.

* International Atomic Energy Agency, Vienna.

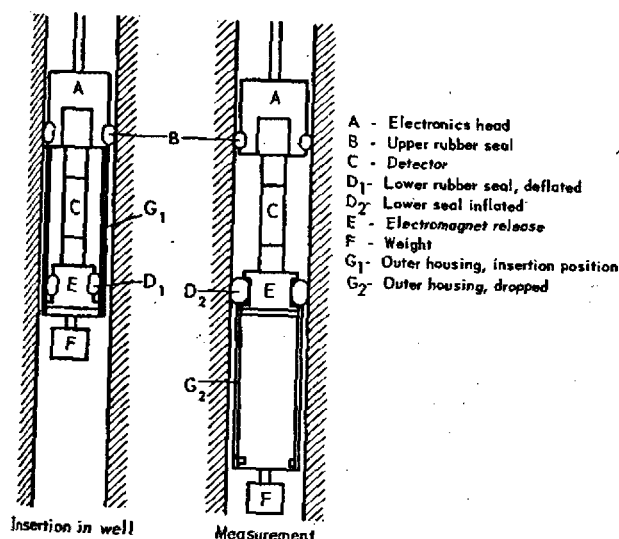


Figure 2. Point-dilution velocity probe, Mairhofer's design

$$v_s = -(V/\varphi Ft) \ln(C/C_0)$$

where v_s = the groundwater velocity

V = the dilution volume

F = the cross section of volume V

t = time

C = tracer concentration after t

C_0 = tracer concentration for $t = 0$

φ = coefficient taking into account the deformation of the hydrodynamical field due to the presence of the hole. This coefficient is defined by

$$Q = \varphi Q_w$$

where Q = the flow rate of water passing through the cross section of the well

Q_w = the flow rate of water passing through the same cross section of the aquifer.

This equation is derived on the basis of flow through a section of a cylinder at right angles to the axis. Therefore it applies to horizontal flow in wells and successful application to field measurements requires that vertical currents be insignificant. This is achieved in practice by confining the well section within which the measurement is made by seals at the top and bottom of the velocity probe.

The evaluation of the coefficient φ under widely varying underground conditions remains one of the most difficult aspects in the application of the point dilution method. Research sponsored by the IAEA [3] is directed toward the analysis of the parameters that affect φ so that the method may be extended to new problems on a scientific basis. For an ideal case in which the permeability of the well is effectively infinite in comparison with that of the aquifer, φ is equal to 2. Inasmuch as the coefficient is a function of relative permeabilities, it is affected by the porosity of the

filter tube and any gravel pack or mud cake surrounding the intake section. Values of φ for a wide range of conditions determined by Ogilvi [4] on theoretical considerations are reproduced in Fig. 1.

It should be noted that the uncorrected measured velocity, which has been termed *filtration velocity* [2] is itself very useful as it provides information on the yield of a well which can significantly reduce costly pumping tests.

Investigation at the Bundesversuchs- und Forschungsanstalt, Vienna [5] has been conducted in model tanks to test the application of Ogilvi's equation to sand and gravel aquifers found in Austria. The equation was generally confirmed and it was found in practice that filter tubes with 8 to 10 per cent perforation were satisfactory at velocities up to 0.1 cm/s where 30% perforation becomes necessary. At velocities below 10^{-4} cm/s correction for diffusion was made.

Development of refined point velocity probes has continued since the introduction of the first instruments in 1957. Moser has developed probes for measuring vertical velocity and an injector that permits sequential injections of isotope solution without removing the unit from the well [6]. A schematic representation of Mairhofer's probe [5] is shown in Fig. 2. This unit eliminates the mixing problem by use of a pre-mixed isotope solution which displaces almost all of the volume in the section to be tested. The solution is exposed to the groundwater stream by dropping the outer shell. Guizerix *et al.* [7] use an electrically driven stirring vane in the probe to maintain continuous mixing throughout the measurement.

The isotopes most frequently used are ^{131}I and ^{82}Br . Tritium was used in a technique which involved continuously removing samples from a well and ^{86}Rb in a situation where ^{131}I was highly absorbed.

The absorption properties of iodine are used constructively in the measurement of the direction of groundwater flow pioneered by Mairhofer. Radioisotope cations such as silver are also used. After the isotope is injected into the measurement section it is allowed to drift out and become adsorbed in the exposed aquifer. The section is then scanned radially with a collimated detector and the direction of exit of the isotope is determined.

In the Federal Republic of Germany [8] the single well method was used to establish seepage patterns at the Rosshaupten Dam at a depth of 40 meters below the storage level. Similar tests were made at the Sylvenstein Reservoir [9] and at another dam it was demonstrated that remedial measures had blocked under-seepage paths, but new seepage had developed laterally around the structure. These tests involved mainly the measurement of vertical flow which has now been successfully carried out at a depth of 250 meters. In Vorarlberg, Austria, results by the vane

meter method and the single well method were found to give good agreement. These tests involved permeability measurements by pumping in water to create a vertical flow. Mairhofer has applied the single well method to determine the relative yields of wells supplying Vienna.

In Poland, Borowczyk *et al.* [10] have continued the development of the single well method and have analyzed the effect of the detector tube volume on the flow equations. Królikowski [11, 12] has made further studies of the single well technique.

Several specialized variations of the versatile single well technique have been developed for specific problems. These are described below.

Underground storage studies. Radioisotopes are being used in Israel in a UN special fund project to investigate problems of changes in the salinity of groundwater induced by artificial recharge of aquifers. Suitable techniques are being developed for the control of quality of groundwater by a carefully planned system of pumping. In cases where the differences in chloride content of the waters cannot be used as a tracer, ^{60}Co in the form of potassium cobalticyanide is used to label large volumes of water which are being recharged through a pumping well. Water is then withdrawn from the same or another well and the concentration of ^{60}Co determined by by-passing part of the flow through a large counting vessel of 1 m³ capacity containing a large crystal scintillator. The concentration versus pumped volume curves give valuable information on dispersion between the two water bodies of different quality and show the effect of natural flow superimposed on the recharge-pumping cycle. The experimental data is being used to test theoretical and model studies and is also being considered as a means of control of the final operational programme.

Radioisotopes in pumping tests. A significant combination of radioisotope techniques with standard pumping tests to obtain additional information from the latter was reported by Degot *et al.* [13]. In the standard pumping test a single well is pumped for several hours to establish a cone of depression in the water table around the well. The rate of depression with time is noted in the pumped well and nearby observation wells. The rate of rise after cessation of pumping is also noted. Calculations that relate draw-down to time and area give the rate of water movement in the part of the aquifer investigated.

Degot *et al.* used ^{82}Br in connection with pumping tests to obtain directional information and to find the velocities in two superimposed aquifers in addition to the average velocity normally obtained in a pumping test. The test site was near Montélimar in the alluvium of the Rhone Valley. Two aquifers contribute to the wells, an upper gravelly loam of 2 meters average depth and a much deeper alluvial deposit of gravel

and fine particles. Water velocities in the two aquifers had been measured by modified Theis and Dupuit pumping methods and checked with micro-current meters. None of these gave quantitative directional information.

Directional flow measurements were made using three injection wells around the pumping well. ^{82}Br and fluorescein were used in one shallow aquifer test and gave the same velocities. The isotope was easier to detect and was used in the remaining surface and deep tests. The directions of flow to the pumping well were accurately defined in both aquifers and the fact that velocity was much greater through the surface aquifer was clearly established. Over-all the system was analyzed in less time and in more detail than would have been possible by the pumping test alone.

Differences in permeability between strata. Degot *et al.* [13] have used ^{82}Br to plot in detail sharp changes in the horizontal permeability with depth in a series of boreholes in the harbour sediments off Boulogne. Sea water labelled with the isotope was pumped into the boreholes to force the isotope into the sedimentary layers in proportion to their permeabilities. The water was then pumped out and the borehole scanned at timed intervals with scintillation and G-M counters as the isotope emerged. Activity at specified times was then plotted as shown in Fig. 3, which is for a series

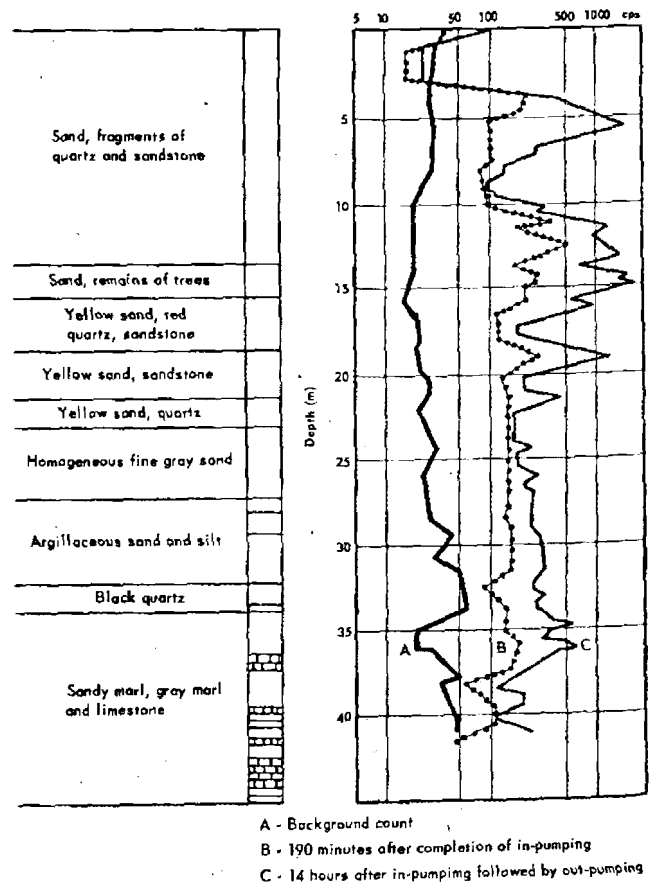


Figure 3. Stratification of permeability (dissolved tracer)

with poorly defined layering. The relative variations of permeability with depth were clearly disclosed in detail. It is noteworthy that variations of permeabilities within a single layer may be as great as between layers. In other boreholes with more clearly defined stratification the variations of permeability corresponded more closely to the stratigraphy.

A second method for the detailed examination of stratified water flow in wells has been presented by Bird *et al.* [14] who used the method to identify permeable strata for water flooding secondary recovery operations in oil fields. This involves the use of minute spherules containing an isotope. As the water under pressure moves into the permeable layers the spherules are filtered out on the face of the exposed aquifer in proportion to the permeability. The hole is then scanned with a collimated detector. Figure 4 shows the kind of plot obtained.

Groundwater tracing

UN Special Fund Project, Greece [15]. This project in the Peloponnese was intended to explore and develop the water resources of karstic terrain. Tritium tracing was used to investigate connections between sinkholes on the high plateau of Tripolis and springs, some of which issued under the sea. Two injections of tritiated water totalling 1 400 c gave the following results:

(a) Tritium could be successfully used to trace underground water movement over a distance of 30 km in karstic terrain where fluorescein gave no result;

(b) Two peaks at one spring revealed two distinct underground channels;

(c) On the basis of the accumulated water discharge and the shape of the tritium discharge curve it was established that the stored volume between a major

sinkhole and spring amounted to 30 000 cubic meters;

(d) The discharge of an underwater spring, which could not be measured by conventional methods was measured by integrating the concentration of tritium over the time of measurement and comparing with injected concentration.

Tritium tracer to investigate leakage into a mine was reported by Lapointe [16]. A mine in Ontario province was troubled by seepage with a lake 200 meters distant as the suspected source. The lake was labelled with tritium and groundwater samples were taken between the lake and the mine. No tritium increase was observed and thus the lake was ruled out. Tritium added to a sump in the rock wall outside the ore body revealed the true seepage path.

A method for measuring groundwater velocity in different strata was advanced by Inai and Inoue [17] who have tested it in a model tank with two sand layers separated by an impermeable membrane. A mixture of tritiated water and ^{90}Sr was introduced into the system and the respective breakthrough curves were observed. Substitution into an equation which includes factors for the relative adsorption hold up of the two tracers gives the velocity stratification. The method appears to involve several practical limitations which will have to be resolved for field application.

Regional groundwater studies

Under the category of regional hydrologic techniques the tritium technique introduced by W. F. Libby is unquestionably the most significant. Developments in recent years, however, have demonstrated the necessity for the closest cooperation between the hydrologist and the isotopic specialist for the intelligent application and interpretation of this specialized tool. As an example, Theis has called attention to the great significance of dispersion effects that spread the tracer front both laterally and longitudinally as it moves down gradient. Theis [18] provided a new interpretation of the results obtained by von Buttlar [19] in his studies of tritium in groundwater of the Carrizozo area, New Mexico. Studies at Hanford, Washington, demonstrated that a tracer in a glacial outwash formation could undergo lateral dispersion of 30 degrees in only 3.5 km of travel. The extent of longitudinal dispersion is indicated by the fact that approximately 140 days were required for the tracer to pass an observation well.

The extensive dispersion observed in this experiment is attributed to the great range of permeabilities found in the formation and the presence of sedimentary lenses and other heterogeneous features. Theis noted that the wells observed by von Buttlar are situated near arroyos which are filled with water during storms. At such times there is recharge to the ground and the

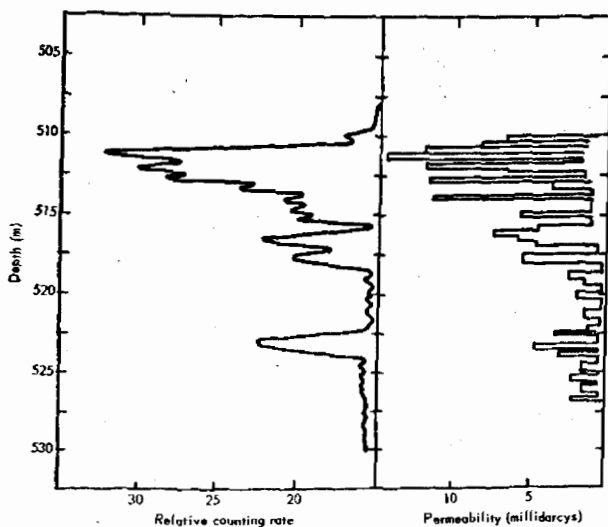


Figure 4. Stratification of permeability (particulate tracer)

new water would be expected to spread by dispersion in the course of its down gradient movement and thus to be intercepted by the wells. Hence the tritium concentrations in the Carrizozo wells are to be interpreted as response to seasonal rainfall (diluted somewhat by dead water in the system) rather than as the result of down gradient movement from the head of the alluvial fan in which the wells are situated.

Libby's group has provided further examples of the use of tritium in groundwater studies [20]. It was established that the San Fernando, California, city well situated 2.4 km east of the San Fernando reservoir was essentially tritium free and therefore indicated no measurable recharge from the reservoir. At the city of Santa Ana, California, an artificial recharge operation to restore the lowered groundwater table has been in operation for some years. Tritium analyses revealed that the recharge water is moving in localized regions into the groundwater rather than in a well mixed pattern. In the Montebello Forebay near Los Angeles a recharge operation has been similarly in operation for many years. Tritium analyses revealed that seven years after beginning operation the recharge water had still not reached the intakes of relatively near wells in three major aquifers. Tritium studies have aided in the planning of water development by the Hawaii Water Authority by providing measurements of the average time that the rain water is held up in the porous volcanic rocks which constitute Oahu's fresh water storage.

An example of the unique value of tritium was contributed by Carlston *et al.* [21] who used the variations of tritium content with depth in the Mullica River Basin of New Jersey to prove groundwater layering, a phenomenon which was theoretically required but could not be established by conventional hydrologic techniques. Thatcher *et al.* [22] studied water in wadi gravels of central Arabia. Here it was established that the water could not be more than 10 years old and therefore has no connection with any large groundwater body. Brown [23] has presented a tritium study of the Ottawa River basin which includes an analysis of the groundwater system. Tritium has been used by several groups to establish whether thermal waters originated from precipitation or magmatic sources. Brown and Tremblay [24] have studied flow rates in an aquifer of Quebec province where two lines of artesian wells are influenced by an escarpment. Fifteen tritium units were used as the pre-bomb tritium base, which gave dates of 1955, 1930, 1926, 1916 for down gradient water samples on one line. The calculated flow velocity is 45 m/yr. The wells on the second line gave a calculated down gradient flow velocity of 110 m/yr.

Brown *et al.* [25] have studied six deep wells and selected shallow wells in Saskatchewan. Wells at 140-150 m gave water ages ranging from 26 to 48 years. A well at 9 m gave a tritium value of 754 tritium units

in 1961. This indicates 1958 and 1959 water on the basis of known patterns of tritium in precipitation. From this it was deduced that the infiltration rate has been 3.2 vertical metres per year; which is consistent with the rate deduced from deep samples.

Accurate application of the tritium geophysics method to hydrological problems in coastal, continental, high and low altitude environments of the Northern and Southern hemispheres is based upon accurate knowledge of the tritium input function for the area of interest. It is found that tritium in precipitation varies widely, the concentration generally increasing with distance from the ocean and with altitude. Concentrations at inland sites in the Northern hemisphere in 1963 averaged 2-3 thousand tritium units as compared with 20-100 for the Southern hemisphere. The IAEA and WMO are conducting a world wide survey of precipitation at 103 stations. Monthly samples are collected and measured for tritium, deuterium and ^{18}O . Results are published in IAEA Tritium Water Lists [26].

^{14}C has been proposed for the study of old, deep groundwaters in confined formations. The ^{14}C half-life of 5700 years extends dating possibilities back to 20 000-30 000 years to include recharge events during recessions of recent glacial periods. Studies have been presented by Vogel [27], Münnich *et al.* [28]. Studies in Arabia [22] indicated ages in the range of 20 000 years for water from deep wells.

Loss of ^{14}C by exchange into the carbonate in an aquifer results in the assignment of an excessive age. The question of exchange must be resolved to place the hydrologic application of ^{14}C on a firmer base. This is the subject of an IAEA sponsored investigation by Münnich [29].

Research in groundwater tracing

Dispersion

Study of dispersion phenomena in groundwater is of interest whenever knowledge of movement of dissolved substances in the subsurface is desired. The use of artificially injected tracers to investigate permeability or groundwater velocity and direction of flow, and studies of the spread of pollution or contamination in groundwater are the major types of investigations the interpretation of which requires an understanding of dispersion mechanics. These studies always consist in introducing a tracer at one point in an aquifer and subsequently observing the dilution which occurs during flow through a portion of it. The amount of dilution which occurs is used as an integrated index of dispersion which is caused by the more or less complex physical and chemical characteristics of the system.

As early as 1887, Thies [30] developed a method for measuring groundwater velocity by dispersing a salt tracer in an aquifer. His method was further developed

by Slichter [31] but these early studies of groundwater movement were often frustrated by lack of knowledge of the physical dispersive and chemical phenomena which critically affect the movement of dissolved constituents in groundwater.

Several workers have studied dispersion phenomena [18, 32-45].

This has emphasized heterogeneity in geological formations as being of utmost importance in influencing the spread of contaminants in the subsurface. Inoue and Kaufman [46] have developed a method for predicting the breakthrough times and concentrations of radionuclides moving in solution through the ground without making a direct or detailed assessment of the heterogeneity of the formation through which dispersion takes place. However, the accuracy of the prediction varies as a function of the heterogeneity of the strata. Their prediction was closely verified in a formation having a permeability varying by a factor of 3.5.

The Weizmann Institute is also conducting research in the dispersion of tritium during underground movement. The model of piston flow appears to be satisfactory for relatively homogeneous, confined aquifers when the length of travel exceeds the depth of the formation by a large factor. The field experience of others, however, indicates that piston flow may be the exception rather than the rule. Undoubtedly, the problem requires much study and early conclusions must be accepted with caution.

Nelson and Reisenauer [47] have developed perhaps the most advanced mathematical approach to hydrodynamic dispersion. They point out, however, that this can only be used meaningfully when applied in a system where a detailed basic flow analysis is available. The difficulty and expense of developing such an analysis to which tracer tests may be routinely applied is very great and can seldom be justified in normal groundwater supply investigations. In areas where industrial or radioactive wastes are discharged into aquifers, however, an elaborate analysis may be the only means of obtaining the required knowledge.

Comparative tracer evaluation

The literature contains many reports of tracer studies and laboratory tests of individual tracers. Few comparative evaluations of tracers under controlled conditions have been offered, however, since the early work of Kaufman and Orlob [48] and others. The conclusions of field experiments are frequently weakened by uncertainty about the tracer performance. A critical report on the performance of nine radioisotope tracers for use in water flooding operations in oil fields was presented by Heemstra *et al.* [49]. They studied both breakthrough characteristics and the long term loss of tracer under continuous recycle con-

ditions in Roubidoux sandstone. It was established that tritiated water was the best tracer and ^{131}I and ^{124}Sb (EDTA) were satisfactory. ^{60}Co (EDTA) and ^{192}Ir (EDTA) were less satisfactory but could be used if corrections for tracer delay and loss were made.

Other papers which provide useful information on tracer performance are Hours [50], Lacey *et al.* [51], Halevy *et al.* [52] and Knutson *et al.* [53].

Borehole logging

Radiation logs are used in boreholes for locating and studying the characteristics of water bearing strata. Three types of radiation logs are in common use; the natural gamma log for measuring radioisotope content of rocks, the neutron log which measures hydrogen content, and the gamma backscatter or gamma-gamma log which measures formation density [54, 55].

The content of the naturally occurring radioisotopes of uranium, thorium and potassium differ significantly from one rock type to another. Silts and clays generally show higher gamma ray activities than gravel and sand formations. Limestones and basalts, which are important aquifers in some areas generally have very low gamma ray activities. The natural gamma ray log is most useful in logging cased holes, dry holes, or holes filled with oil base muds when electrical methods of logging are ineffective, and is mainly used to obtain correlation from one borehole to another.

The neutron log uses a radioisotope source of fast neutrons and measures the effect of the strata in slowing down or moderating the neutrons. Hydrogen is the most effective element for neutron moderation and hence the neutron log gives a signal which decreases with increasing hydrogen content. Thus if consecutive natural gamma and neutron logs are run in a borehole, penetrating a water bearing limestone or sandstone, both the natural gamma signal and the neutron signal will be low. Clays which have a high bound water content can be picked out by the high signal which they give on the natural gamma curve [56].

Formation density obtained by gamma-gamma logs when combined with information on fluid content and fluid density can be used to evaluate porosity [55].

New developments in radioisotope logging include neutron activation logs, neutron gamma ray spectral logs, natural gamma ray spectral logs and the use of borehole neutron generators [57].

The use of radioactivity logging techniques as an adjunct to groundwater investigations can be particularly valuable when combined with other geophysical logging techniques including resistivity, spontaneous potential, temperature, sonic and caliper logging and examination of drill cuttings, water quality difference and other available hydrogeological, geophysical and geochemical knowledge.

APPLICATION OF RADIOISOTOPES TO SURFACE WATER RESOURCES

For efficient use of surface water for domestic, agricultural, industrial and hydroelectric purposes, accurate measurement is required of the amount of available water, both as it is precipitated as rain or snow and subsequently in the soil, and as it flows in rivers. Radioisotope techniques are employed for measuring the flow rates of rivers and soil moisture and for estimating the quantity of snow deposited in a catchment area.

Sediment transported by rivers and subsequently deposited at points where the turbulence and velocity is insufficient to transport it further, is a major problem as the silt gradually accumulates in reservoirs, navigable rivers and estuaries. To keep rivers and estuaries navigable, costly dredging schemes are necessary. Sediment deposited in reservoirs limits the life of dams in some areas as it reduces the storage volume. Cases are known where the storage volume has been reduced by a factor of 2 in 10 years. Sediment content of rivers also provides an integrated measure of the effectiveness of land conservation methods. Thus an accurate assessment of the mass rate of transport of sediment is required and radioisotope methods provide a means of accomplishing this.

Gauging river flow

Four principal methods exist for measuring the flow of water in streams, canals and rivers. One method consists in establishing a stage discharge relationship at a gauging site which enables the flow to be estimated from the given stage height of the river. Flow rates are also measured from the discharge-head relationship established for hydraulic structures such as critical throated flumes. Another frequently used method, known as the velocity area method, consists of measuring the velocity of the flow at a number of points across the cross section with a current meter. From a knowledge of the area of the cross section the flow can then be calculated. The drawback of this method is that the cross-sectional area is not always easy to measure and may even change with time. In the case of a large river the method is quite time consuming and will lead to errors if there is a change in flow rate during measurement of the velocity. The salt dilution method is the fourth technique and consists of introducing a known amount of salt into the stream and measuring its concentration at a point sufficiently far downstream to permit complete transverse mixing. In some countries this method is routinely used for flow rates up to 50 m³/s. The method is not easily applicable to muddy water and for higher flow rates this method becomes more difficult and less economical because of the larger quantities of tracer required.

The use of radioactive material was suggested for flow gauging as long ago as 1922 by Joly [58]. However, it was not until the more widespread availability of artificial radioisotopes that serious attention was given to this possibility based upon the premise that the higher sensitivity of detection of radioisotopes would lead to more accurate measurement. Since radioisotopes are simply another form of tracer they have mainly been used in the salt dilution technique. Their use in the velocity area method has mainly been restricted to flow in pipes because of the difficulty in measuring the cross-sectional area of open streams. The following discussion is therefore restricted to the different modifications of the salt dilution method.

The tracer may be injected instantaneously into the stream as in the pulse or integration method. If A is the quantity of tracer injected then the mass flow equation is

$$A = Q \int c dt$$

$$Q = A / \int c dt$$

This method consists of evaluating $\int c dt$ at a measuring point downstream where transverse mixing is complete.

In the dilution method the tracer at a known concentration C_1 may be continually injected into the stream at a known rate q . Sufficiently far downstream to have ensured complete transverse mixing the measured concentration of the tracer will be C_2 . If Q is the flow rate of the stream then the following tracer balance is obtained:

$$qC_1 = (Q + q)C_2$$

Thus

$$Q = q(C_1 - C_2)/C_2$$

Hull [59] first reported the use of ¹⁹⁸Au in the pulse method. A Geiger counter was submerged in the stream to record the total number of counts from the radioisotope as it passes. The counter was previously calibrated in a vessel containing ¹⁹⁸Au of known concentration so that the flow rate could be computed. Moser *et al.* [60, 61] have also employed this technique using ⁸²Br, ¹³¹I and ²⁴Na and a scintillation detector. Owing to the difficulty of placing the detector in an *infinite volume* in the stream Moser pumped water from the stream through a container of known geometry in which the scintillation counter is placed. Clayton *et al.* [62] have also investigated this method by pumping water from the stream through containers placed in the ground to reduce effects due to the tracer passing in the river. This work was part of a comparison with the dilution, and continuous sample methods. In the latter periodic samples were taken during the passage of the tracer cloud. The concentration of the samples enabled the integral to be computed.

Guizerix *et al.* [63] have a different approach to the determination of the integral. They remove water

from the stream by means of a small battery-driven pump into an 18 l container fitted with a constant head device. The diameter of the input pipe to the container from the constant head device may be adjusted so that the time for filling of the container embraces the time of passage of the tracer cloud. A scintillation counter is immersed into the 18 l container to measure the mean concentration of the total sample. The same container is used for counting an aliquot of the injected solution. Mention should be made of the necessity of making a very accurate dilution of this aliquot if the flow is to be gauged with an accuracy of a few per cent. This difficulty is accentuated in the measurement of higher flow rates when it may be almost impossible to carry out this dilution in the field because of the higher activities required. Both this technique and that of taking individual samples have a number of advantages over the immersion of a detector in the stream. The difficulty of placing a detector in an infinite volume is avoided which is particularly important for shallow rivers. It is possible to take samples from the edge of the river; and the counting of the sample or samples may be carried out under standardised conditions.

Use of the dilution method requires the constant injection of a solution of radioisotope of known concentration over a period of time sufficiently long to ensure that at the sampling point the concentration has reached a steady value. This value may be obtained either by placing the counter in the stream or in a container through which water is pumped from the stream or by taking samples.

The prime requisite for all tracer methods is that transverse mixing is complete at the sampling point. A rough indication of this point may be obtained visually in the case of small streams by injecting a dye in the stream. Guizerix employs this method and checks that mixing is complete by pumping samples from these points across the river.

A number of attempts have been made to estimate this distance. Hull [64] has proposed that the mixing length L_{mix} is given by

$$L_{mix} = a Q^{1/2}$$

where $a = 50$ for centre point injection, and 200 for injection at the side of the stream.

A number of subsequent experiments by other workers have shown that this formula underestimates the mixing length.

Rimmar [65] assumed that vertical mixing was much more rapid than transverse mixing and proposed the formula

$$L_{mix} = 0.13 C \left(\frac{B^2}{H} \right) \left(\frac{0.7C + 6}{g} \right)$$

where $C =$ Chezy coefficient; $B =$ breadth in metres; $H =$ depth in metres; and $g =$ gravitational constant.

This formula seems to give more realistic estimates of the mixing length. However, a more systematic study is required of the determination of lateral and longitudinal dispersion.

The longitudinal dispersion determines the duration of sampling and also the quantity of radioactive tracer to be used. Smith [66] in a recent series of experiments reports a fairly close agreement with the theoretical dispersion calculated from Taylor's [67] formula for dispersion in turbulent flow through a pipe by using the hydraulic radius of the stream and estimating the friction factor of the stream bed.

Present experience shows that a few tens of milligrams of ^{82}Br or ^{131}I per cubic metre are necessary for the pulse injection method of measuring flows of the order of $10 \text{ m}^3/\text{s}$. The choice of the radioisotope is dependent upon half-life, type and energy of emitted radiation, maximum available specific activity and the maximum permissible level in drinking water. Careful consideration must be given to the possible loss of tracer by adsorption which would invalidate the method.

Considering the merits of the two main methods, the continuous dilution method has the advantage that one does not have the difficulty of measuring the long tail of the pulse in the instantaneous pulse injection method. On the other hand, if the period of injection is too limited and large longitudinal dispersion occurs it can be difficult to establish the equilibrium concentration at the sampling site, so that the pulse injection method would be preferred. Moreover, for larger flow rates the quantity of tracer required for the dilution method would become uneconomical. Gauging large flows would be widely applicable if the accuracy of one or two per cent, obtainable at present with flows up to $100 \text{ m}^3/\text{s}$, could be retained. The quantity of radioisotope necessary for large flow rates may be uneconomical in terms of cost and also the weight of shielded containers which would be required. One answer may be an extension of the enrichment procedure which has already been examined by Moser. He has precipitated silver iodide from the water samples and counted the precipitate. Guizerix has shown that a factor of ten increase in sensitivity may be obtained by concentrating the radioisotope from the solution onto an ion exchange resin. The ultimate answer to the measurement of flows greater than $1000 \text{ m}^3/\text{s}$ may lie in the use of tritium which does not have the problems of shielding and is relatively cheap. One may envisage the collection of a number of samples to be analysed in a base laboratory. Consideration should also be given to the injection of inactive tracer and measuring its concentration by radioactivation or by the radiorelease method. In the latter a suitable inactive tracer releases radioactive ions from a radioactive metal immersed in the stream.

Measurement of snow deposition and soil moisture

The mass of snow deposited in a catchment area is estimated by choosing snow courses about 200 m long which are found by experience to be representative of a much larger area, and taking and weighing samples every 20 m along the course. The number of these snow courses need not be large to cover a wide area. For example, most of the spring run-off from the Andes into Chile and Argentina is predicted from only 5 snow courses, and it is possible to predict the run-off with an accuracy better than 20% in 99% of the measurements.

For a prolonged series of measurements one representative point on a snow course can be chosen. Measurements at such points are extremely difficult and hazardous even when helicopters are used and hence a self-contained instrument which continuously measures and either stores the information for periodic collection, or transmits it to a central accessible station, is highly desirable.

Gamma-transmission gauges have been developed for this purpose. In one design, a 40 mc ^{60}Co source is mounted at the lower end of a heavy lead tube inserted in the ground with the Geiger counter detector mounted 5 m above the ground [68]. Over a range of up to 110 cm water equivalent the accuracy is better than 5%.

Fundamental research on the hydrological characteristics and thermal qualities of mountain snowpacks is being conducted with gamma backscatter density gauges [69]. It is hoped to correlate density variations and the presence of ice lenses with rate of melting in order to predict run-off more accurately and also assess the effect of vegetation in delaying melting to prevent floods.

The amount of water in soil and rock strata can be measured using neutron moderation moisture gauges [70]. These instruments consist of a radioisotope source of fast neutrons such as Ra/Be, a slow neutron detector and a means of indicating the counting rate in the slow neutron detector. A BF_3 -filled proportional counter is used as detector and the counting rate is measured with a portable, battery-operated scaler or ratemeter. Fast neutrons from the source are slowed down in the soil mainly by collisions with hydrogen atoms, and hence the number of slow neutrons produced is a function of hydrogen or water content. Measurements are made both on the surface and at depth.

With a source activity of about 10 mc, moisture content in the range 1-50% by volume can be measured with an accuracy of about 1 per cent in counting times of about 1 minute. The instrument integrates the water content over a cylinder of diameter about 6 in and length equal to the distance between source and detector.

If the water content is required in weight per cent, then an independent measurement of the soil density is required. This is accomplished with a gamma backscatter density gauge which gives an accuracy of 1% in a measuring time of about one minute.

Movement of sand and sediment in rivers and estuaries

Sediment is transported both in suspension and along the bed of a river. Although the total mass in suspension is smaller than the total moving bed load, because of the higher velocity of the former, the proportion of sediment transported in suspension is often greater than 75%. The maximum concentrations reach as high as 200 g/l. but the concentration range of most interest is 1 to 50 g/l.

A portable instrument for measuring in this range has been constructed which uses the preferential absorption of 22 keV gamma rays from ^{109}Cd [71]. With a 2 mc source and a scintillation counter detector, a source detector separation of 8 cm and a measuring time of 15 minutes, an accuracy of 20% is achieved at a concentration of 1 g/l and better accuracies at higher concentrations.

Transport of silt, sand and pebbles as bed load in rivers, irrigation channels and estuaries is followed by using artificial silt labelled with a gamma-emitting radioisotope [72]. The movement of this silt along the bed of a river or estuary is followed by means of a scintillation or Geiger counter detector towed along the bottom on a sledge. The detector count-rate is indicated on a ratemeter in the boat towing the sledge.

The silt is labelled either by irradiation in a nuclear reactor of specially prepared glass containing a suitable material for activation or by surface adsorption of the radioisotope on the grains. Radioisotopes used include ^{182}Ta , ^{192}Ir , ^{51}Cr , ^{46}Sc , ^{65}Zn and ^{60}Co . The labelled sand is matched in particle size distribution and specific gravity to the sand whose movement is to be followed. The activities used range from a few tens of millicuries to 20 curies. Movement has been followed over distances up to several miles.

All such studies to date have shown the direction and rate of movement of the labelled particles. Attempts are being made to obtain a quantitative estimate of the mass rate of flow of bedload using methods similar to those outlined above for stream gauging [73]. A good review of this subject has been made by Griesseier [72].

POLLUTION STUDIES

As countries become more industrialised and centres of dense population become more numerous the question of the pollution and quality of water supplies assumes an even greater importance.

Water quality

Here the impact of nuclear techniques has been less than in other areas of hydrology because the well known and widely used methods of water analysis are generally satisfactory. Sensitive conventional techniques such as emission spectrography and polarography are available for trace element analysis. Nevertheless, as industrial requirements become more demanding and the physiological role of trace elements in water becomes better understood, the application of sensitive nuclear techniques is likely to increase.

A system for complete chemical analysis of water by neutron activation analysis has been developed by Blanchard *et al.* [14]. They combined gamma ray spectrometry with simple group chemical separations based on the traditional qualitative analysis scheme. They determined the major constituents and the following trace elements: As, Br, F, Cu, Mn, Rb, Sr and Zn. Accuracy for trace elements was superior to emission and flame spectroscopy. This analytical scheme could be made economically competitive by a sufficient volume of work. Lyon *et al.* [75] have detected 20 elements in tap water by neutron activation.

The problem of detergents, fertilizer residues and pesticides with their decomposition products is becoming acute in the ground and surface waters of certain areas. Detergents in groundwaters can be traced by using a detergent molecule labelled with a radioactive atom in the molecule. Some pesticides may be toxic at extremely low concentrations. Methods of accurate analysis at these concentrations are still in the research stage. A promising approach is the use of sensitive isotope dilution techniques based on the dilution of labelled DDT, dieldrin, aldrin, etc., by the inactive pesticide in the water.

Effluent disposal

As countries become more industrialized and centres of dense population become more numerous the question of the pollution and quality of water supplies assumes an even greater importance. A number of tests in pipelines, treatment tanks and hydraulic models have been described. Radioactive materials have been used in evaluating the quantities of radioactive waste which may safely be discharged into a river. However, there is an increased interest in the use of radioisotopes for tracing sewage effluent. Studies have been made of the flow characteristics of an anaerobic sewage treatment plant [76] and on the tracing of sewage discharged into the sea [77]. Putman *et al.* [78] compared the use of radioisotopes and an easily recognizable bacteria for the labelling of sewage. These techniques are now helping to establish the proper design of effluent pipelines to guard against beach pollution. Earlier work gave qualitative information on the flow patterns, but Berg *et al.* [79] have taken the method

a step further and are able to predict the concentrations of sewage water at different points to be expected from long term build-up. They make a point injection of ^{82}Br in the form of ammonium bromide and assume that a continuous injection is made up of an infinite number of identical short-term injections. By integration of the activity concentration with time a chart is constructed showing the distribution of sewage concentration to be expected from a sewage outlet with a given flow.

The Danish group have further developed the method [80], particularly in presenting the data in a form which demonstrates the most economical solution in terms of length of effluent pipe and sewage purification factor. The two extreme solutions are either a long pipe discharging unpurified effluent or a short pipe discharging highly purified effluent. In practice three experiments are carried out by making three injections of ^{82}Br at three different points corresponding to varying effluent pipe lengths. A diagram may then be prepared (Fig. 5) showing the total cost

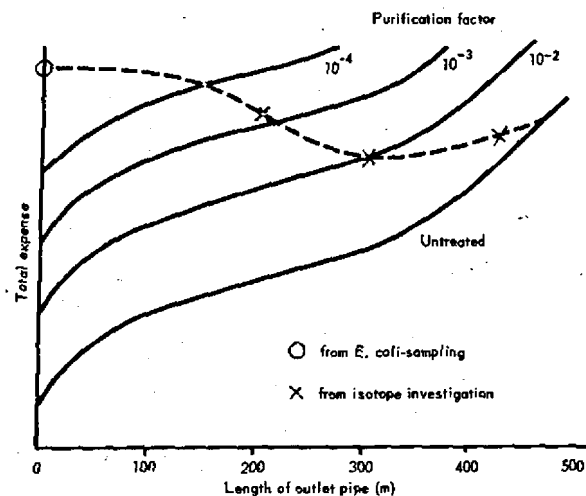


Figure 5. Prediction of most economical combination of length of outlet pipe and purification factor

for the most economic solution, which in this case is a pipe 300 m long discharging effluent purified by a factor of 10^{-2} . Plans are being made for equipping a boat specifically for this type of investigation and it is hoped to record all the data on board on punched tape, which may be fed into a computer when the boat returns to harbour.

CONCLUSION

It has been shown that isotope techniques are already being used in many branches of hydrology. The stage has now been reached when they should be looked upon as available tools capable of providing complementary and in some cases unique information to the hydrologist. In the solution of certain hydrological

problems the use of isotope techniques can be more advantageously employed and indeed provide short-cuts to the desired goals [81]. Consideration should be given to the potentiality of isotope techniques in the planning of investigations leading to the rational development of water resources.

ACKNOWLEDGEMENT

The authors wish to acknowledge the information submitted for inclusion in this review by Canada, the Federal Republic of Germany, Japan, Poland and Romania.

REFERENCES

1. Raymond, J., and Bierschenk, W., *Hydraulic Investigations at Hanford*, Trans. Am. Geophys. Union, 38, 5, 24 (1957).
2. Moser, H., Neumaier, F., and Rauert, W., *Ein Verfahren zur Ermittlung der Ergiebigkeit von Grundwasserströmungen*, Atomkernenergie, 2, 225 (1957).
3. Mairhofer, J., IAEA Research Contract No. 177/RB.
4. Ogilvi, N. A., Bulletin for the Scientific and Technical News No. 4 (1958) Gosgeoltekhizdat, Moscow.
5. Mairhofer, J., Report by Bundesversuchs- und Forschungsanstalt, Vienna (1964).
6. Moser, H., Neumaier, F., and Rauert, W., *New Experiences with the Use of Radioactive Isotopes in Hydrology*, Symposium on Radioisotopes in Hydrology, IAEA Report STI/PUB/71, p. 283 (1963).
7. Guizerix, J., Grandclément, G., Gaillard, B., and Ruby, P., *Appareil pour la Mesure des Vitesses Relatives des Eaux Souterraines par la Méthode de Dilution Ponctuelle*, Symposium on Radioisotopes in Hydrology, IAEA Report STI/PUB/71, p. 25 (1963).
8. Moser, H., and Neumaier, F., *Wasserwirtschaft*, 48, 290 (1958).
9. Annual Rep. 1962, Forschungsstelle für Radiohydrometrie, Munich.
10. Borowczyk, M., Mairhofer, J., and Zuber, A., *Laboratory Investigations on the Determination of the Filtration Velocity by Means of Radioisotopes*, Seminar on Soil Mechanics and Foundation Engineering, Lodz, 16-19 June (1964).
11. Królikowski, Cz., *Influence of Measurement Probes on Determination of Filtration Velocity in Boreholes and Piezometers*, Kwartalnik Geologiczny, No. 3 (1964).
12. Królikowski, Cz., *Electrical Methods in the Investigation of Soil Parameters*, Bulletin of the Geological Institute, 2, 182 (1963).
13. Degot, B., Lévêque, P., Courtois, G., Gasnier, M., and Godar, S., *Deux Utilisations du Brom-82 en Hydrodynamique Souterraine*, Symposium on Radioisotopes in Hydrology, IAEA Report STI/PUB/71, p. 321 (1963).
14. Bird, I., and Dempsey, J., *Producers Monthly*, 20, 36, 12 (1956).
15. Burdon, D., Eriksson, E., Papadimitropoulos, T., Pappakis, N., and Payne, B. R., *The Use of Tritium in Tracing Karst Groundwater in Greece*, Symposium on Radioisotopes in Hydrology, IAEA Report STI/PUB/71, p. 309 (1963).
16. Lapointe, C., Publication Ms-62-53, Mineral Sciences Div., Dept. of Mines and Technical Surveys, Ottawa (1962).
17. Inai, S., and Inoue, Y., *A Method for the Estimation of Groundwater Stratification*, Symposium on Radioisotopes in Hydrology, IAEA Report STI/PUB/71, p. 297 (1963).
18. Theis, C., *Hydrologic Phenomena Affecting the Use of Tracers in Timing Groundwater Flow*, *ibid.*, 163.
19. von Buttlar, H., *Groundwater Studies in New Mexico Using Tritium as a Tracer*, *J. Geophys. Res.*, 64, 1031 (1959).
20. Libby, W. F., *Tritium Geophysics*, *J. Geophys. Res.*, 66, 3767 (1961).
21. Carlston, C., Thatcher, L., and Rhodehamel, E., *Tritium as a Hydrologic Tool, the Wharton Tract Study*, Publication No. 52, p. 503, IASH.
22. Thatcher, L., Rubin, M., and Brown, G., *Dating Desert Groundwater*, *Science*, 134, 3472, 105 (1961).
23. Brown, R., *Hydrology of Tritium in the Ottawa Valley*, *Geochim. et Cosmochim. Acta*, 21, 214 (1961).
24. Brown, R., and Trembley, J., Private communications to C.A. Mawson reported in Survey of Hydrological Applications of Tracers in Canada (1964).
25. Brown, R., and Meyboom, P., *ibid.*
26. *Tritium Water List*, Published by Section of Hydrology, IAEA: No. 1, Feb. 1962; No. 2, Oct. 1962; No. 3, Nov. 1963.
27. Vogel, J., Proc. Summer Course in Nuclear Geology, Varenne, Sept. (1960).
28. Münnich, K., and Vogel, J., *C¹⁴ Alterbestimmung von Süßwasser Kalkablagerungen*, *Naturwissenschaften*, 46, 168 (1959).
29. Münnich, K., and Roether, W., *A Comparison of C¹⁴ and Tritium Ages of Groundwater*, Symposium on Radioisotopes in Hydrology, IAEA Report STI/PUB/71, p. 397 (1963).
30. Thies, A., *Verfahren für Messung natürlicher Grundwassergeschwindigkeiten*, *Polyt. Notizblatt*, 42 (1887).
31. Slichter, C. S., *Field Measurement of the Rate of Movement of Underground Waters*, U.S. Geol. Surv. Water Supply Paper 140 (1905).
32. De Josselin de Jong, G., *Dispersion in Flow Through Porous Media*, USAEC Contractor report TID-7621, p. 123 (1961).
33. Ogata, A., and Banks, R., *A Solution of the Differential Equation of Longitudinal Dispersion in Porous Media*, U.S. Geol. Survey Profess. Paper 411 A (1961).
34. Skibitzke, H., Chapman, H., Robinson, G., and McCullough, R., *Radiotracer Techniques for Study of Flow in Saturated Porous Materials*, *Intern. J. Appl. Radiation Isotopes*, 10, 38 (1961).
35. Harleman, D., Melhorn, P., and Rumer, R. Jr., *Longitudinal Dispersion in Uniform Porous Media*, Hydrodynamics Lab., Mass. Inst. of Tech., Cambridge, Mass. Report 57 (1962).
36. Ogata, A., *Transverse Diffusion in Saturated Isotropic Granular Media*, U.S. Geol. Surv. Profess. Paper 411 B (1961).
37. Simpson, E., *Transverse Dispersion in Liquid Flow Through Porous Media*, U.S. Geol. Surv. Profess. Paper 411 C (1962).
38. Theis, C., *Notes on Dispersion in Fluid Flow by Geologic Features*, USAEC Contractor report TID-7628, p. 166 (1962).
39. Bierschenk, W., *Aquifer Characteristics and Groundwater Movement at Hanford*, USAEC, Contractor report HW-60601 (1959).

40. Newton, T., *On the Dispersion of Fission Products by Groundwater*, Atomic Energy of Canada Ltd. report CRT-866 (1959).
41. Parsons, P., *Movement of Radioactive Wastes Through Soil; Part 1, Soil and Groundwater Investigations in Lower Perch Lake Basin*, Atomic Energy of Canada Ltd. report CRER-932 (1960).
42. Parsons, P., *Movement of Radioactive Wastes Through Soil; Part 3, Investigating the Migration of Fission Products from High Ionic Liquids Deposited in Soil*, Atomic Energy of Canada Ltd. report CRER-1018 (1961).
43. Jones, P., *Hydrology of Waste Disposal at NRTS, Idaho, an Interim Report*, U.S. Geol. Surv. report IDO-22042 (1961).
44. Inoue, Y., and Kaufman, W., *Dispersion Relations in Injection Disposal of Radioactive Wastes*, USAEC Contractor report TID-7621, p. 131 (1961).
45. Skibitzke, H., and Robinson, G., *Dispersion in Groundwater Flowing Through Heterogeneous Materials*, US Geol. Surv. Profess. Paper 386 B (1963).
46. Inoue, Y., and Kaufman, N., *Prediction of Movement of Radionuclides in Solution Through Porous Media*, Health Phys., 9, 705 (1963).
47. Nelson, R., and Reisenauer, A., *Application of Radioactive Tracers in Scientific Groundwater Hydrology*, Symposium on Radioisotopes in Hydrology, IAEA Report STI/PUB/71, p. 207 (1963).
48. Kaufman, J., and Orlob, G., *Measuring Groundwater Movement with Radioactive and Chemical Tracers*, J. Am. Water Works Assoc., 48, 559 (1956).
49. Heemstra, R., Watkins, J., and Armstrong, R., *Laboratory Evaluation of Nine Water Tracers*, Nucleonics, 19, 559 (1961).
50. Hours, R., *Les Traceurs Radioactifs en Hydrologie*, Houille Blanche, numéro spécial A, 14 (1955).
51. Lacey, W., and de Lagune, W., *Method of Preparing Radioactive Cations for Tracing Groundwater*, Science, 124, 402 (1956).
52. Halevy, E., Nir, A., Harpaz, Y., and Mandel, S., *Use of Radioisotopes in Studies of Groundwater Flow. Part I. Laboratory and Field Experiments on the Suitability of Various Tracers*, Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, P/1613, Vol. 20, p. 158, United Nations (1958).
53. Knutson, G., Ljunggren, K., and Forsberg, H., *Field and Laboratory Tests of Chromium-51-EDTA and Tritium Water as a Double Tracer for Groundwater Flow*, Symposium on Radioisotopes in Hydrology, IAEA Report STI/PUB/71, p. 347 (1963).
54. Pickell, J., and Heacock, J., *Density Logging*, Geophysics, 25, 891 (1960).
55. Trans. of the All-Union Scientific Conference on the Use of Radioactive and Stable Isotopes and Radiations in the National Economy and in Science, Prospecting and Development of Useful Minerals, April (1957), AEC-tr-4475.
56. Rapolova, V. A., *ibid.*, 67.
57. Mardock, E., *Radioactivity Logging and its Future Potential*, Geophysics, 25, 883 (1960).
58. Joly, J., *On a Method of Gauging the Discharge of Rivers*, Proc. Royal Dublin Soc., 16, 489 (1922).
59. Hull, D. E., *The Total-Count Technique: A New Principle in Flow Measurement*, Intern. J. Appl. Radiation Isotopes, 4, 1 (1958).
60. Moser, H., and Rauert, W., *Die Anwendung radioaktiver Isotope in der Hydrologie*, Atomkernenergie, 5, 419, 462 (1960).
61. Moser, H., Neumaier, F., and Rauert, W., *Die Anwendung radioaktiver Isotope in Hydrologie*, Atomkernenergie, 7, 321 (1962).
62. Clayton, C. G., and Smith, D. B., *A Comparison of Radioisotope Methods for River Flow Measurement*, Symposium on Radioisotopes in Hydrology, IAEA Report STI/PUB/71, p. 1 (1963).
63. Guizerix, J., Grandclément, G., and Hours, R., *Les Mesures de Débits Effectués en France à l'Aide de Traceurs Radioactifs par la Méthode d'Intégration*, *ibid.*, 255.
64. Hull, D. E., *Dispersion and Persistence of Tracer in River Flow Measurements*, Intern. J. Appl. Radiation Isotopes, 13, 63 (1962).
65. Rimmar, G. M., *The Use of Electrical Conductivity for Measuring Discharges by the Dilution Method*, Trudy Gornogeo-logicheskogo Instituta, Fascicule, 36, 18 (1952).
66. Smith, D. B., Private communication.
67. Taylor, G. I., *The Dispersion of Matter in Turbulent Flow Through a Pipe*, Proc. Roy. Soc. A., 223, 446 (1954).
68. Doremus, J., *Telemetry System for Radioactive Snow Gauge*, Electronics, 88 (Feb. 1961).
69. Holscher, D., *Use of Radioactive Isotopes in Measuring Hydrologic Performance of Mountain Snow Packs*, USAEC Contractor report TID-7681, p. 35 (1963).
70. Symposium on Nuclear Methods for Measuring Soil Moisture and Density, ASTM Special Techn. Pub. No. 293 (1960).
71. Bird, L., Papadopoulos, J., Rex, R., and Ziegler, C., *Radio-logical Mechanisms for Geophysical Research*, NYO 220 (1963).
72. Giesseler, H., *Zur Anwendung von Radioisotopen beim Studium der Litoralen Materialbewegungen*, Acta Hydro-physica, 6, 163 (1960).
73. Lean, G., and Crickmore, M., *Methods for Measuring Sand Transport Using Radioactive Tracers*, Symposium on Radioisotopes in Hydrology, IAEA Report STI/PUB/71, p. 133 (1963).
74. Blanchard, R., Leddicotte, G., and Modler, D., J. Am. Water Works Assoc., 51, 967 (1959).
75. Lyon, W., and Reynolds, S., *Radioactive Species Induced in Reactor-Cooling Water*, Nucleonics, 13, 10, 60 (1955).
76. Straub, C. P., and Hagee, G. R., *Radioactive Tracers in Sanitary Engineering*, J. Am. Water Works Assoc., 49, 743 (1957).
77. Ely, R. L., *Radioactive Tracer Study of Sewage Field in Santa Monica Bay*, IRE Trans. Nuclear Science, NS-4, 1, 49 (1957).
78. Putman, J. L., Wildblood, A. M., and Robinson, J. E., *The Use of Radioactive and Bacterial Tracers to Follow Sewage Pollution in the Sea*, Water and Sanitary Engineer and Waste Treatment J., 6, 99 (1956).
79. Berg, O., and Somer, E., *Determination of the Distribution of Sewage Concentration in Large Natural Waters from Planned Sewage Outlets*, Symposium on Production and Use of Short-Lived Radioisotopes from Reactors, IAEA Report STI/PUB/64, Vol. 1, p. 405 (1963).
80. Harremoës, P., *Isotopundersøgelser og Øresunds forurening*, Ingeniøren No. 24 (December 1963).
81. Feely, H. W., Walton, A., Barnett, Ch. R. and Bazan, F., *The Potential Applications of Radioisotope Techniques to Water Resource Investigations and Utilization*, NYO-9040 (1961).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/875 AIEA

**Rôle des techniques radioisotopiques
en hydrologie**par B. R. Payne *et al.*

L'emploi des techniques radioisotopiques comme moyen d'étude des phénomènes hydrologiques est déjà répandu. Les auteurs passent en revue les différentes utilisations et donnent des exemples de leurs applications. Quelques-unes de ces techniques sont actuellement assez perfectionnées pour justifier la généralisation de leur emploi; il s'agit notamment de celles qui concernent la détermination des ressources en eaux souterraines.

A/875 МАГАТЭ

Роль радиоизотопных методов в гидрологииБ. Р. Пэйн *et al.*

Радиоизотопные методы уже зарекомендовали себя как средство исследования гидрологи-

ческих явлений. Рассматриваются различные виды применения с привлечением конкретных примеров. Некоторые из этих методов находятся в настоящее время в такой стадии, когда оправдано их широкое применение, особенно для оценки запасов грунтовых вод.

A/875 OIEA

Papel de las técnicas radioisotópicas en hidrologíapor B. R. Payne *et al.*

Las técnicas radioisotópicas se han impuesto ya como un instrumento para el estudio de los fenómenos hidrológicos. Los autores examinan sus diferentes usos y mencionan ejemplos de su aplicación. Algunas de estas técnicas se encuentran actualmente en una etapa en que se justifica una aplicación extensa, particularmente en la evaluación de los recursos de aguas subterráneas.

Applications of isotopes and radiation sources in the physical sciences

Chairman: I. I. Rabi (United States of America)

Paper P/196 (presented by E. E. Fowler)

DISCUSSION

F. BEHOUNEK (Czechoslovakia): It should be pointed out that the use of radionuclides, especially plutonium-238, for the power supply of satellites will be limited by the extent to which they contaminate the atmosphere. Since most satellites will ultimately descend into the lower levels of the atmosphere and burn out, there is a danger of airborne radioactivity being produced from the radioisotopes used (most of which are alpha emitters). In the case of plutonium-238, the maximum permissible concentration in air is very low.

G. I. KIKNADZE (USSR): At IAEA's Warsaw Conference in 1959 and its Salzburg Conference in 1963, several papers were submitted on the possibilities of using nuclear reactors together with special radiation loops for obtaining pure gamma-radiation fields.* Has any work been done in this direction in the United States?

E. E. FOWLER (United States of America): There continues to be a great interest in the possibility of using reactors for chemical production purposes generally. For the period you mention, no substantial progress has been made towards putting such utilization on a commercial basis, but research and development programmes are being carried on, particularly as regards using the energy of fission fragments (as opposed to loops).

N. E. BREZHNEVA (USSR): The United States have in fact announced a comprehensive programme for using radioactive fission products as a source of radioisotopes. Am I right in understanding that the realization of this programme calls for the processing of a large volume of waste solutions?

E. E. FOWLER (United States of America): The activities to which you refer are a part of our normal waste management programme, in addition, of course, to the long-term storage of fission products. We have a continuing interest in separating out the main heat-

producing fission products, in order to optimize the waste handling process. But, as I have indicated, we are also very much interested in finding ways and means of making productive use of the valuable energy source present in fission products. We therefore take the fission products to the point of separation and purification.

G. I. KIKNADZE (USSR): I think it is appropriate to mention at this point the results of measurements done on the two loop-type radiation installations described by Ryabukhin *et al.* at Salzburg in 1963.

Measurements made on these installations after two years of operation show that, in the case of a 2 MW(th) IRT reactor, by using only leakage neutrons not needed in the reactor, one can obtain a radioactive source equivalent to ≈ 500 kg Ra. Such a source could probably be used for research in radiation chemistry.

H. ALBERT (France): In your opinion, Mr. Fowler, what are the factors which tend to limit the use of fission products? Is it a lack of markets, the cost of processing, or the psychological aspects (i.e., the dangers involved in using radiations)?

E. E. FOWLER (United States of America): I think that the limited use of fission products thus far has been due to a combination of several factors. The necessity of having large quantities of these materials available in a purified form at an economic cost has certainly been a major consideration. A second factor is that the technologies in which fission products could be used as radiation sources have been in the process of development during the last few years and only now have we reached a point where we can begin to see how they could be used productively. I do not believe that the psychological problems which you mention are as important as these two.

M. F. ABDEL-WAHAB (United Arab Republic): In connection with the statement in the paper (under the heading *Large-scale production of isotopes*) that cobalt-60 is being produced in the United States in the form of high activity sources, could Mr. Fowler describe the type of gamma-irradiation facilities being developed (indoor, outdoor, or both)?

E. E. FOWLER (United States of America): The material of very high specific activity which we are currently producing is intended for experimental work. It is possible that it can be used in connection with

* See, for example, Breger, A. K., *et al.*, *Indium-gallium radiation contour of the IRT-reactor*, Large Radiation Sources in Industry, Vol. I, 55-65, IAEA, Vienna (1960), and Ryabukhin, Y. S., *et al.*, *Reactor radiation loops as large gamma sources*, Industrial Uses of Large Radiation Sources, Vol. II, 175, IAEA, Vienna (1963).

process radiation activities and also as a source of heat or power in selected applications. For the most part, the United States facilities are of what you call the "indoor" type, i.e., they are water pools designed to serve as shielding. The source is raised to the open-air position for the purpose of irradiation.

M. DEL VAL COB (Spain): Leaving aside the applications of radioisotopes as intense sources of radiation, it might be useful to make a general study of developments in the remaining applications of isotopes, say, as tracers in measuring and control systems. A basis for such a study might be provided by the known facts about investment in measuring apparatus.

F. DE LA CRUZ CASTILLO (Spain):* We share the opinion of the author that progress in the production of radioisotopes has been very outstanding in recent years. We should like, however, to make a distinction between what can be expected with the means available in countries with extensive resources and the approach which must be used for the production of radioisotopes in small countries with limited economic resources and few facilities for irradiation.

In this connection, Spain, which has a small, 3 MW(th) research reactor, has in recent years been developing new methods, or adapting other known techniques, for the production of radioisotopes, taking into account the possibilities available with a reactor of this type. A summary of this work is to be found in paper P/492.** In our opinion, radioisotope production methods intended for use under limited irradiation conditions must be directed towards ease of separation, thereby enabling one to start with large quantities or irradiated material (see description of production methods for ^{35}S , ^{131}I and ^{32}P in paper P/492,** and towards the use of nuclear reactions other than the (n, γ) one, as far as possible.

Paper P/298 (presented by P. L. Gruzin)

DISCUSSION

P. S. POLLAK (USSR): I would like to mention some noteworthy prospects involving the use of radiation sources in connection with certain important types of polymerization which, as the author rightly pointed out in presenting his paper, cannot be carried out by chemical, thermal or any other methods. Among the projects of this kind on which we are actively engaged is the radiation polymerization of inclusion complexes of the channel and layer type (matrix polymerization), by which stereoregular polymers of high molecular weight and pre-determined physical and mechanical properties can be obtained

* This comment was not made during the meeting but was received subsequently in writing.

** These Proceedings, Vol. 7, Session D.

in high yields from such monomers as dimethylbutadiene, acrylonitrile and many others. Another project is concerned with graft polymerization and the reproduction of structures. This technique can be used for the preparation of simple models for use in the simulation of certain biological processes.

Paper P/875 (presented by B. R. Payne)

DISCUSSION

A. H. W. ATEN (Netherlands): I would like to have some information about labelling a lake or a similar quantity of water with tritium. How much tritium is needed to obtain an activity suitable for measurement? Is it possible to measure the activity of the hydrogen contained in the samples as such or does one have to resort to a tritium concentration process in the hydrogen? In other words, does the tritium in the hydrogen have to be enriched by isotope separation before its activity can be measured?

B. R. PAYNE (IAEA): Lake Chala, which has a volume of $3 \times 10^8 \text{ m}^3$, was labelled with tritium so that the concentration was about 2 000 tritium units. The concentration in the lake is at present being measured directly by liquid scintillation counting. Samples of water from the springs some miles from the lake are being enriched by electrolysis prior to scintillation counting. Later, lake samples will also need to be enriched before counting.

C. A. MAWSON (Canada): I would not like the impression to be left that tritium is the only tracer that can be used for large bodies of water. The Ottawa river is 1 to 2 km wide and flows at about $5 \times 10^7 \text{ m}^3$ per day. When we investigated the dilution rate from the NPD reactor, near to Chalk River, we put rhodamine-B into the process sewer. We were still able to measure the dye concentration in the river water at Ottawa, about 250 km down-river. We used a fluorometer mounted in a boat, with continuous recording of dye concentration.

J. P. BAXTER (Australia): In Australia there has been some fairly successful work on the ^{14}C measurement of the age of waters in the great artesian basin in Queensland. Isotopic addition methods of river-flow gauging have also been used with success. I should like to ask Mr. Payne whether he has encountered any public reaction to the addition of isotopes to natural waters, even though the operations are obviously safe. If so, has anything been done to educate the public in these matters?

B. R. PAYNE (IAEA): We have not encountered any strong reaction to the use of radioisotopes in hydrological problems. In the case of the Greek investigations, for example, we worked in collaboration with the Greek Atomic Energy Commission, which briefed

the local people on the object of the proposed experiments and the way in which they were to be carried out.

J. K. BASSON (South Africa): In many South African gold mines there exist tremendous problems arising from the inflow of underground water. Individual mines may pump as much as 20 million gallons per day from a depth of 10 000 feet. This water is released on the surface and, consequently, it is important to know whether recirculation takes place. Successful studies have been carried out, using a few curies of iodine-131, in which it was found that the labelled underground reservoir was as much as 2 000 million gallons.

The addition of a suitable carrier for the iodine-131 presents a problem as iodine compounds are rather expensive for large-scale use. Consequently we used another halide, sodium chloride (ordinary salt), as carrier material.* Could you comment on these techniques?

B. R. PAYNE (IAEA): Personally, I would always treat the question of iodine with some reserve, due to possible losses by adsorption or as free iodine. In the investigation you mention, it would have been of interest to see what information would have been obtained by measuring the natural tritium content of the waters concerned. If recirculation was indicated, this could then have been confirmed by the introduction of a suitable tracer.

A. MORENO Y MORENO (Mexico): What is the present trend in tritium counting methods? Is the technique originally proposed by Libby still in use or is it being replaced by liquid scintillation counting?

* See C. J. Verwey, Proceedings of the National Conference on Nuclear Energy, Pretoria (1963).

B. R. PAYNE (IAEA): The choice of counting system depends to a large extent on the levels of tritium to be measured. Measurement in a liquid scintillation counter is very convenient, but at present the best efficiency for counting as water is about 15 per cent. However, 100 per cent efficiency is obtained when using internal gas counting techniques. In this case, one must convert the water sample into a suitable counting gas in an appropriate apparatus. In summary, both systems are being improved and both are being used, depending on the level of tritium.

W. P. BEBBINGTON (United States of America): We have used deuterium as a tracer with some success in hydrological studies at Savannah River. The deuterium is injected as D₂O and detected by activation analysis *in situ* by the gamma-photon neutron reaction by ²⁴Na. The method is described by Haskell and Hawkins.**

A. S. SHTAN (USSR): Tritium has been used in the Soviet Union for more than ten years for studying the movement of waters, e.g., to determine the direction of migration, flow and movement of surface and ground water (especially in the arid regions of Central Asia); to study problems of seepage through dams of hydroelectric power plants; and to investigate the movement of deep-seated waters and the flooding of boreholes. In this work use has been made of both natural and specially introduced tritium. The work of Soviet scientists in this field is well known and has been reported in scientific publications both in the Soviet Union and other countries.

** D₂O-²⁴Na method for tracing soil moisture movement in the field, to be published in the Proceedings of the Soil Science Society of America.

Compte rendu de la séance F

Applications des radioéléments et des sources de rayonnement dans les sciences physiques

Président: I. I. Rabi (Etats-Unis d'Amérique)

Mémoire P/196 (présenté par E. E. Fowler)

DISCUSSION

F. BEHOUNEK (Tchécoslovaquie): Il faut souligner que l'utilisation des radionucléides, et spécialement du plutonium 238, comme source d'énergie dans les satellites sera limitée par les risques de contamination

atmosphérique. Comme la plupart des satellites descendront en fin de compte dans les couches inférieures de l'atmosphère et s'y consumeront, les radioisotopes utilisés (généralement des émetteurs alpha) risquent d'introduire dans l'atmosphère une certaine radioactivité. Dans le cas du plutonium 238, la concentration maximale permmissible dans l'air est très faible.

G. I. KIKNADZE (URSS): Aux conférences de l'AIEA de Varsovie (1959) et de Salzbourg (1963), plusieurs communications envisageaient l'utilisation de réacteurs nucléaires et de boucles spéciales de rayonnement pour obtenir des champs gamma purs *. Ce type de recherches est-il poursuivi aux Etats-Unis?

E. E. FOWLER (Etats-Unis d'Amérique): La possibilité d'utiliser des réacteurs pour la production de produits chimiques en général continue à susciter un grand intérêt. Pendant la période que vous mentionnez, il n'y a pas eu de progrès notable conduisant à de telles utilisations dans des conditions commerciales, mais les programmes de recherche et de développement continuent, en particulier en ce qui concerne l'utilisation de l'énergie des fragments de fission (par opposition aux boucles).

N. E. BREZHNEVA (URSS): Les Etats-Unis ont effectivement annoncé un programme de recherches détaillé pour l'utilisation des produits de fission radioactifs comme source de radioéléments. Est-il correct de penser que la réalisation de ce programme impliquera le traitement de volumes importants de solutions de déchets radioactifs?

E. E. FOWLER (Etats-Unis d'Amérique): Les activités auxquelles vous faites allusion font partie de notre programme normal de traitement des résidus radioactifs, en plus, naturellement, du stockage à long terme des produits de fission. Nous nous intéressons toujours à la séparation des principaux produits de fission générateurs de chaleur, en vue d'optimiser les procédés de traitement des résidus. Mais, comme je l'ai indiqué, nous cherchons aussi avec intérêt les moyens d'utiliser de façon productive l'intéressante source d'énergie que représentent les produits de fission. Ceci nous conduit à entreprendre la séparation et la purification des produits de fission.

G. I. KIKNADZE (URSS): Je pense qu'il faut mentionner les résultats des mesures réalisées sur les installations du type à boucles décrites par Ryabukhin *et al.* à Salzbourg en 1963.

Les mesures faites sur ces installations après deux ans de fonctionnement montrent que, dans le cas d'un réacteur IRT de 2 MW(th), l'utilisation des seuls neutrons de fuite, qui ne sont pas nécessaires au réacteur, permet d'obtenir une source radioactive correspondant environ à 500 kg de radium. Une telle source pourrait être utilisée pour des recherches en chimie sous irradiation.

H. ALBERT (France): A votre avis, M. Fowler, quels sont les facteurs qui tendent à limiter l'utilisation

des produits de fission? Est-ce le manque de débouchés, le prix de revient du traitement, ou les aspects psychologiques (par exemple, les dangers liés à l'emploi du rayonnement)?

E. E. FOWLER (Etats-Unis d'Amérique): Je crois que l'utilisation des produits de fission a, jusqu'à présent, été limitée par une combinaison de plusieurs facteurs. La nécessité de pouvoir disposer de quantités importantes de ces produits sous forme purifiée à un prix de revient économique a certainement constitué un facteur important. D'autre part, les technologies qui pourraient utiliser les produits de fission comme sources de rayonnement ont été mises au point au cours des dernières années, et ce n'est que maintenant que nous atteignons le point où nous pouvons commencer à envisager des utilisations productives. Je ne crois pas que les problèmes psychologiques que vous avez mentionnés sont aussi importants que ces deux facteurs.

M. F. ABDEL-WAHAB (République arabe unie): A propos de la phrase de votre mémoire (à la partie qui traite de la production d'isotopes à grande échelle) selon laquelle du cobalt 60 est produit aux Etats-Unis sous forme de sources de haute activité, pourriez-vous décrire le type d'installations d'irradiation gamma en cours d'étude (type d'intérieur, de plein air, ou les deux)?

E. E. FOWLER (Etats-Unis d'Amérique): Le matériau de très haute activité spécifique que nous produisons actuellement est destiné à des travaux expérimentaux. Il pourrait être utilisé en liaison avec des activités de chimie sous radiation et aussi comme source de chaleur ou d'énergie pour certaines applications. En général, les installations américaines sont du type que vous appelez « d'intérieur »: il s'agit des piscines qui assurent la protection. La source est amenée à une position à l'air libre pour les irradiations.

M. DEL VAL COB (Espagne): En dehors des applications des radioéléments comme sources intenses de rayonnement, il pourrait être utile de faire une étude générale de l'évolution des autres applications des isotopes, par exemple comme traceurs dans des systèmes de mesure et de contrôle. Ce qu'on sait des investissements en appareils de mesure pourrait servir de base à une telle étude.

F. DE LA CRUZ CASTILLO (Espagne) **: Nous partageons l'avis de l'auteur qui estime que la production des radioéléments a fait des progrès remarquables au cours des dernières années. Nous voudrions cependant établir la distinction entre ce que l'on peut espérer avec les moyens disponibles dans les pays disposant de ressources abondantes et les méthodes que l'on doit utiliser pour la production des radioéléments

* Voir, par exemple, Breger, A. K., *et al.*, *Circuit d'activation d'indium-gallium dans le réacteur nucléaire IRT*, Large Radiation Sources in Industry, Vol. I, p. 55, AIEA, Vienne (1960); et Ryabukhin, Y. S., *et al.*, *Boucles d'irradiation des réacteurs nucléaires utilisées comme sources gamma intenses*, Industrial Uses of Large Radiation Sources, Vol. II, p. 175, AIEA, Vienne (1963).

** Cette question n'a pas été posée en séance, mais a été reçue plus tard par écrit.

dans les petits pays qui n'ont que des ressources économiques limitées et peu d'installations d'irradiation.

A ce sujet, disposant d'un petit réacteur de recherche de 3 MW(th), nous avons, en Espagne, mis au point au cours des dernières années de nouvelles méthodes pour la production des radioéléments ou adapté des techniques connues, en tenant compte des possibilités d'un réacteur de ce type. On peut trouver un résumé de ce travail dans le mémoire P/492*. A notre avis, les méthodes de production de radioéléments destinées à être appliquées dans des conditions d'irradiation limitée doivent tendre à faciliter la séparation et permettre ainsi de partir de quantités importantes de matériau irradié (voir la description des méthodes de production de ^{35}S , ^{131}I et ^{32}P dans le mémoire P/492*), et à l'utilisation, autant que possible, de réactions nucléaires autres que la réaction (n, γ).

Mémoire P/298 (présenté par P. L. Gruzin)

DISCUSSION

P. S. POLLAK (URSS): Je voudrais mentionner quelques aspects intéressants de l'utilisation des sources de rayonnement pour certains types importants de polymérisations qui, comme l'auteur l'a très justement fait remarquer en présentant son mémoire, ne peuvent pas être réalisées chimiquement, thermiquement ou par toute autre méthode. Parmi les projets de ce type que nous étudions activement figure la polymérisation par irradiation de complexes d'inclusion du types linéaires ou en couche (polymérisation de matrice), qui permet d'obtenir des polymères stéréoréguliers de poids moléculaire élevé et de propriétés physiques et mécaniques prédéterminées avec des rendements élevés à partir de monomères tels que le diméthylbutadiène, l'acrylonitrile, et bien d'autres. Une autre étude intéresse les polymères greffés et la reproduction des structures. Cette technique peut être utilisée pour la préparation de modèles simples, utilisables pour simuler certains processus biologiques.

Mémoire P/875 (présenté par B. R. Payne)

DISCUSSION

A. H. W. ATEN (Pays-Bas): J'aimerais avoir des renseignements sur le marquage au tritium d'un lac ou d'une quantité d'eau du même ordre. Combien faut-il de tritium pour obtenir une activité permettant les mesures? Est-il possible de mesurer l'activité de l'hydrogène contenu dans les échantillons telle quelle, ou faut-il utiliser un procédé de concentration du

tritium dans l'hydrogène? En d'autres termes, faut-il enrichir le tritium contenu dans l'hydrogène par séparation isotopique avant de pouvoir mesurer son activité?

B. R. PAYNE (AIEA): Le lac Chala, qui a un volume de $3 \times 10^8 \text{ m}^3$, a été marqué au tritium de façon à obtenir une concentration d'environ 2000 unités tritium. La concentration est maintenant mesurée dans le lac directement par comptage avec un scintillateur liquide. Les échantillons d'eau venant de sources situées à quelques kilomètres du lac sont enrichies par électrolyse avant comptage par scintillation. Plus tard, les échantillons du lac devront aussi être enrichis avant comptage.

C. A. MAWSON (Canada): Je ne voudrais pas laisser se créer l'impression que le tritium est le seul traceur utilisable pour de grande volumes d'eau. La rivière Ottawa est large de 1 à 2 km, avec un débit voisin de $5 \times 10^7 \text{ m}^3$ par jour. Quand nous avons étudié le taux de dilution pour le réacteur NPD, près de Chalk River, nous avons injecté de la rhodamine B dans la canalisation de rejet. Nous avons encore pu mesurer la concentration en colorant de l'eau de la rivière à Ottawa, quelque 250 km plus loin. Nous avons utilisé un fluoromètre monté sur un bateau avec enregistrement continu de la concentration du colorant.

J. P. BAXTER (Australie): Nous avons eu quelques résultats fort satisfaisants en Australie en ce qui concerne le mesure au ^{14}C de l'âge des eaux dans le grand bassin artésien du Queensland. Des méthodes d'addition d'isotopes pour la mesure du débit des rivières ont aussi été utilisées avec succès. Je voudrais demander à M. Payne s'il s'est heurté à des réactions du public contre l'addition d'isotopes aux eaux naturelles, bien que ces opérations soient évidemment sans danger. Si la réponse est positive, a-t-on essayé de préparer le public dans ce domaine?

B. R. PAYNE (AIEA): Nous n'avons rencontré aucune opposition sérieuse à l'utilisation des radioéléments dans les problèmes d'hydrologie. Dans le cas des études en Grèce, par exemple, nous avons travaillé en liaison avec la Commission de l'énergie atomique de Grèce, qui a expliqué aux populations locales l'objet des expériences envisagées et la façon dont elles seraient réalisées.

J. K. BASSON (Afrique du Sud): Il y a, dans de nombreuses mines d'or d'Afrique du Sud, des problèmes considérables dus à la pénétration d'eaux souterraines. Certaines mines pompent jusqu'à 20 millions de gallons par jour d'une profondeur de 10 000 pieds. Cette eau est rejetée à la surface et il est donc important de savoir s'il y a recirculation. Des études entreprises avec quelques curies d'iode 131 ont permis de montrer que le réservoir souterrain marqué contenait pas moins de 2 milliards de gallons.

* Voir les présents Actes, vol. 7, séance D.

L'addition d'un entraîneur convenable pour l'iode 131 pose un problème parce que les composés de l'iode sont relativement coûteux pour des utilisations à grande échelle. Nous avons donc utilisé un autre halogénure comme entraîneur, le chlorure de sodium (sel ordinaire) *. Que pensez-vous de ces techniques?

B. R. PAYNE (AIEA): Personnellement, j'ai certaines réserves en ce qui concerne l'iode en raison des pertes possibles par adsorption ou à l'état d'iode libre. Dans l'expérience que vous avez mentionnée, il aurait été intéressant de connaître les renseignements qu'aurait donnés la mesure de la teneur en tritium naturel des eaux considérées. La possibilité de recirculation aurait pu être confirmée par introduction d'un traceur approprié.

A. MORENO Y MORENO (Mexique): Quelle est la tendance actuelle pour le comptage du tritium? La technique initialement proposée par Libby est-elle toujours utilisée ou bien est-elle remplacée par le comptage avec scintillateur liquide?

B. R. PAYNE (AIEA): Le choix du système de comptage dépend en grande partie des niveaux de tritium à mesurer. La mesure par compteur à scintillateur liquide est très pratique, mais le meilleur rendement actuel du comptage pour l'eau est de l'ordre de 15%. On obtient cependant un rendement de 100% quand on utilise des techniques de comptage

* Voir Verwey, C. J., Comptes rendus de la Conférence nationale sur l'énergie nucléaire, Pretoria (1963).

interne pour le gaz. Dans ce cas, il faut transformer l'échantillon d'eau en gaz de comptage convenable dans un appareillage approprié. En résumé, les deux systèmes font l'objet d'améliorations et sont utilisés tous les deux, selon le niveau de tritium.

W. P. BEBBINGTON (Etats-Unis d'Amérique): Nous avons utilisé avec un certain succès le deutérium comme traceur pour des études hydrologiques à Savannah River. Le deutérium est injecté sous forme de D₂O et détecté par analyse par activation *in situ* par la réaction gamma-photonéutron avec ²⁴Na. La méthode est décrite par Haskell et Hawkins **.

A. S. SHTAN (URSS): Il y a plus de dix ans que nous utilisons le tritium en Union soviétique pour étudier les mouvements des eaux, c'est-à-dire pour déterminer la direction de migration, le débit et les mouvements des eaux de surface et des eaux souterraines (spécialement dans les régions arides d'Asie centrale); pour étudier les problèmes d'infiltration dans les barrages des centrales hydroélectriques; et pour étudier les mouvements des eaux profondes et l'inondation des trous de sonde. On a utilisé pour ces travaux aussi bien le tritium naturel que le tritium introduit spécialement. Les travaux des savants soviétiques dans ce domaine sont bien connus et ont fait l'objet de publications en Union soviétique et dans d'autres pays.

** D₂O²⁴ Na Method for tracing Soil Moisture Movement in the Field, qui sera publié dans les comptes rendus de la Soil Science Society of America.

Протокол заседания F

Применение изотопов и источников радиации в физике

Председатель: И. И. Раби (США)

Доклад P/196 (представил Э. Э. Фаулер)

ДИСКУССИЯ

Ф. БЕГОУНЕК (ЧССР): Необходимо указать, что использование радионуклидов, особенно Pu²³⁸, в энергетических установках спутников будет ограничиваться тем, в какой мере они загрязняют атмосферу. Поскольку большая часть спутников в конце концов спускается в нижние слои атмосферы и сгорает, существует опасность того, что использование изотопов (большинство которых испускает α-частицы) приведет к радиоактивному загрязнению воздуха. Максимально допустимая концентрация в воздухе для Pu²³⁸ очень низка.

Г. И. КИКНАДЗЕ (СССР): На конференциях МАГАТЭ в Варшаве в 1959 году и в Зальцбурге в 1963 году было представлено несколько докладов о получении чистых полей γ-излучения при помощи ядерных реакторов со специальными радиационными петлями*. Велись ли какие-нибудь работы в этом направлении в Соединенных Штатах?

Э. Э. ФАУЛЕР (США): По-прежнему большое внимание привлекает возможность исполь-

* См., например, A. K. Bregger et al. Indium-gallium radiation contour of the IRT-reactor. Large Radiation Sources in Industry, Vol. I, IAEA, Vienna, 1960, pp. 55-56 and Yu. S. Raybukhin et al. Reactor radiation loops as large gamma sources Industrial Uses of Large Radiation Sources, Vol. II, Vienna 1963, pp. 175.

зования реакторов в химическом производстве. За период, о котором Вы говорите, не было достигнуто существенного прогресса в осуществлении такого использования на коммерческой основе. Но работы по исследовательским программам ведутся, в частности, в отношении использования энергии осколков деления.

Н. Е. БРЕЖНЕВА (СССР): Соединенные Штаты опубликовали обширную программу использования продуктов деления в качестве источников радиоактивных изотопов. Правильно ли считать, что реализация этой программы требует переработки больших объемов жидких отходов?

Э. Э. ФАУЛЕР (США): Работы, о которых Вы говорите, являются частью нашей обычной программы по обработке отходов в дополнение, конечно, к долговременному хранению продуктов распада. Мы продолжаем интересоваться выделением основных продуктов распада, выделяющих тепло, чтобы усовершенствовать процесс обработки отходов. Но, как я указывал, мы проявляем также большой интерес к изысканию путей и средств для того, чтобы производительно использовать ценный источник энергии, каким являются продукты распада. Поэтому мы обращаем особое внимание на выделение и очистку продуктов распада.

Г. И. КИКНАДЗЕ (СССР): Я думаю, что по этому поводу уместно упомянуть результаты измерений, сделанных на двух установках по облучению петлевого типа, которые были описаны Рябухиным и др. в Зальцбурге в 1963 году*.

Измерения, проведенные на этих установках после двух лет работы, показывают, что в случае реактора ИРТ тепловой мощностью 2 Мвт при использовании только нейтронов рассеяния можно получить источник радиоактивности, эквивалентный ~500 кг Ra. Такой источник, вероятно, можно было бы использовать для исследований по радиационной химии.

Х. АЛЬБЕРТ (Франция): Каковы, по Вашему мнению, г-н Фаулер, те факторы, которые ограничивают использование продуктов деления? Относятся ли к ним недостаток рынков, стоимость переработки или психологические аспекты (то есть опасения, вызванные использованием радиаций)?

Э. Э. ФАУЛЕР (США): Я думаю, что ограничения в использовании продуктов деления до сих пор обусловлены сочетанием различных факторов. Главным препятствием была, конечно, необходимость иметь в распоряжении большие количества этих материалов в очищенном виде и по недорогой цене. Другой фактор состоит в том, что технологические процессы, в которых продукты деления могли бы использоваться как источники радиации, разрабатывались в течение немногих последних лет, и

только теперь мы достигли того уровня, когда можно использовать их продуктивно. Я не думаю, что психологические проблемы, о которых Вы говорите, так же важны, как эти два фактора.

М. Ф. АБДЕЛЬ-ВАХАБ (ОАР): В связи с утверждением, содержащимся в докладе (в разделе «Производство изотопов в широком масштабе»), согласно которому Co^{60} производится в Соединенных Штатах в виде высокоактивных источников, не мог бы г-н Фаулер описать тип применяемого оборудования для γ -облучения (внешнего, внутреннего или обоих типов)?

Э. Э. ФАУЛЕР (США): Материал очень высокой удельной активности, который мы производим, предназначен для экспериментальных исследований. Возможно, что его можно использовать в процессах, требующих применения высоких активностей облучения, а также в некоторых случаях как источник тепла или энергии. В большинстве случаев в США используются установки, как Вы назвали, «внутреннего» типа, то есть облучатель помещается в водяной бассейн, служащий защитой. Для проведения облучений источник поднимается.

М. ДЕЛЬ ВАЛЬ КОБ (Испания):** Оставляя в стороне применение изотопов как мощных источников излучения, было бы полезно изучить развитие других аспектов применения изотопов, например, в качестве индикаторов в измерительных и контрольных системах. Основной для такого изучения могли бы служить данные о средствах, затрачиваемых на разработку измерительных приборов.

Ф. ДЕ ЛЯ КРУС КАСТИЛЬО (Испания):** Мы разделяем мнение автора, что за последние годы в производстве изотопов наблюдается значительный прогресс. Однако мы хотели бы указать на разницу между тем, чего можно ожидать от применения радиоизотопов при наличии средств, доступных в странах с обширными ресурсами, и подходом, который должен использоваться для производства изотопов в малых странах с ограниченными экономическими ресурсами и небольшим количеством оборудования для облучения.

В этой связи Испания, которая имеет небольшой исследовательский реактор мощностью 3 Мвт (тепл.) разрабатывала в последние годы новые методы или приспособлявала известную технику для производства радиоизотопов, имея в виду возможности реактора этого типа. Отчет об этой работе можно найти в докладе P/492***. По нашему мнению, работы по методам производства радиоизотопов, применяемые для использования при ограниченных возможностях облучения, должны быть направлены на процессы разделения, что позволит начинать с

**Эти замечания были сделаны не на заседании, а получены позднее в письменном виде.

***Настоящее издание, т. 7, заседание D.

* См. там же.

больших количеств облученного материала (см. описание методов производства для S^{35} , J^{131} и P^{32} в докладе P/492*), и на использование ядерных реакций, отличных насколько это возможно от реакции (n, γ).

Доклад P/298 (представил П. Л. Грузин)

ДИСКУССИЯ

П. С. ПОЛАК (СССР): Я хотел бы отметить некоторые интересные перспективы использования источников излучения в связи с важными типами полимеризации, которые, как справедливо указал автор, представляя свою работу, не могут быть достигнуты химическими, термическими или любыми другими средствами. К проектам этого рода, которыми мы активно занимаемся, относится радиационная полимеризация комплексных включений канального или слоистого типа (матричная полимеризация), благодаря которой удается получать с высоким выходом полимеры с большим молекулярным весом и заданными физическими и механическими свойствами из таких мономеров, как диметилбутадиен, акрилонитрил и многие другие. Другой проект касается графт-полимеризации и воспроизведения структуры. Эта методика может быть использована для получения простых моделей, служащих для имитации некоторых биологических процессов.

Доклад P/875 (представил Б. Р. Пейн)

ДИСКУССИЯ

А. Х. В. АТЕН (Нидерланды): Я хотел бы получить некоторую информацию относительно меченя озера или аналогичного количества воды тритием. Сколько нужно трития, чтобы получить активность, достаточную для измерений? Можно ли измерять активность водорода, содержащегося в пробах как таковых, или нужно прибегать к процессу концентрации трития в водороде? Другими словами, нужно ли обогащать водород тритием при помощи отделения изотопа перед тем, как измерять его активность?

Б. Р. ПЕЙН (МАГАТЭ): Озеро Чала, имеющее объем в $3 \cdot 10^8$ м³, было мечено тритием таким образом, что концентрация составляла примерно 2000 тритиевых единиц. В настоящее время концентрация в озере измеряется непосредственно при помощи жидких сцинтилляторов. Пробы воды, взятые из источников в нескольких милях от озера, перед подсчетом сцинтилляций обогащаются с помощью электролиза. Более поздние пробы из озера также придется обогащать перед подсчетом.

* Настоящее издание, т. 7, заседание D.

К. А. МОУСОН (Канада): Я не хотел бы, чтобы осталось впечатление, что тритий является единственным индикатором, который можно использовать для больших масс воды. Река Оттава имеет ширину от 1 до 2 км и расход около $5 \cdot 10^7$ м³ в сутки. Исследуя степень разбавления отходов от реактора NPD, расположенного вблизи Чок-Ривера, мы использовали родамин В. Можно было еще измерить концентрацию красителя в речной воде в Оттаве, примерно на 250 км вниз по реке. Мы использовали установленный в лодке флуорометр с непрерывной записью концентрации красителя.

Дж. П. БАКСТЕР (Австралия): В Австралии была проведена довольно успешная работа по измерению возраста воды в большом артезианском водоеме в Квинсленде при помощи C^{14} . Методы добавления изотопов с успехом использовались также для определения дебита воды в реках. Мне хотелось бы спросить г-на Пейна, приходилось ли ему сталкиваться с реакцией общественности на добавление изотопов к природной воде, хотя вполне очевидно, что эти действия являются безопасными. Если да, то было ли что-нибудь сделано для просвещения общественности в этих вопросах?

Б. В. ПЕЙН (МАГАТЭ): Мы не встретились с сильной реакцией на использование радиоизотопов в решении гидрологических проблем. Например, при исследованиях в Греции мы работали в сотрудничестве с Греческой комиссией по атомной энергии, которая кратко оповестила местное население о предмете предполагаемых экспериментов и способе, которым они должны были проводиться.

Дж. К. БАССОН (ЮАР): Во многих южноафриканских золотых рудниках существуют серьезные проблемы, связанные с притоком грунтовых вод. В отдельных шахтах выкачивается около 76 тыс. м³ в день с глубины в 3000 м. Эта вода выбрасывается на поверхность, и, следовательно, важно знать, имеет ли место обратная циркуляция. Были проведены успешные исследования с использованием нескольких кюри J^{131} ; в результате этих работ было обнаружено, что меченый подземный резервуар содержит примерно 7,6 млн. м³.

Добавление подходящего носителя J^{131} представляет проблему, так как соединения иода довольно дороги для использования в широком масштабе. Поэтому в качестве носителя мы использовали другое галонидное соединение, хлористый натрий (обычную соль)**. Что Вы скажете об этом методе?

Б. Р. ПЕЙН (МАГАТЭ): При решении вопроса о применении иода я лично считаю необходимым всегда соблюдать некоторую осто-

** См. C. J. Werwey. Proceedings of the National Conference on Nuclear Energy. Pretoria (1933).

рожность из-за возможных потерь вследствие адсорбции или выделения свободного иода. В исследованиях, о которых Вы говорите, имело бы смысл определить, какую информацию можно получить при помощи измерения естественного содержания трития в рассматриваемой воде. Если бы таким путем была обнаружена рециркуляция, то это затем можно было бы подтвердить введением соответствующего носителя.

А. МОРЕНО И МОРЕНО (Мексика): Каковы современные тенденции в развитии методов подсчета количества трития? Используется ли еще методика, первоначально предложенная Лябби, или она заменяется подсчетом при помощи жидких сцинтилляторов?

Б. В. ПЕЙН (МАГАТЭ): Выбор системы счетчиков зависит в большой степени от измеряемого уровня содержания трития. Измерение в жидкостном сцинтилляционном счетчике очень удобно, но в настоящее время наибольшая эффективность счета для проб в виде воды равна примерно 15%. Можно добиться 100%-ной эффективности, используя методику подсчета содержащегося газа. В этом случае нужно превратить пробу воды в подходящий для проведения счета газ в соответствующем аппарате. В общем, оба метода совершенст-

вуются и оба используются в зависимости от уровня содержания трития.

У. П. ПЕРБИНГТОН (США): Мы применили с некоторым успехом в качестве индикатора в гидрологических исследованиях на реке Саванна дейтерий. Дейтерий вводится в виде D_2O и обнаруживается при помощи активационного анализа *in situ* по (n, γ) -реакции на Na^{24} . Метод описан Хаскелом и Хоккинсом*.

А. С. ШТАНЬ (СССР): В Советском Союзе тритий уже более десяти лет используется для изучения движения вод, то есть для определения направления миграции, дебита и движения поверхностных и грунтовых вод (особенно в засушливых областях Центральной Азии), для изучения проблем просачивания через плотины гидроэлектростанций и для исследования движения вод глубокого залегания и фонтанирования скважин. В этой работе использовались как естественный, так и специально введенный тритий. Работы советских ученых в этой области хорошо известны и отражены в научных публикациях как в Советском Союзе, так и в других странах.

« $D_2O - Na$ method for tracing soil moisture movement in the field» готовится к опубликованию в журнале «Proceedings of the Soil Science Society of America»).

Acta de la Sesión F

Aplicaciones de los radioisótopos y de las fuentes de radiación en las ciencias físicas

Presidente: I. I. Rabi (Estados Unidos de América)

Documento P/196 (presentado por E. E. Fowler)

DISCUSIÓN

F. ВЕНОУНЕК (Чехословаquia): Debe señalarse que el empleo de radionúclidos, especialmente plutonio-238, como fuentes de energía en satélites estará limitado por el grado de contaminación que produzcan en la atmósfera. La mayor parte de los satélites finalmente descienden a los niveles inferiores de la atmósfera y arden, y existe el peligro de contaminación radiactiva del aire procedente de los radioisótopos utilizados (la mayor parte de los cuales son emisores alfa). En el caso del plutonio-238, la concentración máxima permisible en el aire es muy baja.

G. I. КИKNADZE (URSS): En las conferencias del OIEA de Varsovia en 1959 y Salzburgo en 1963, se

presentaron varias comunicaciones sobre las posibilidades de utilización de circuitos especiales de irradiación en reactores nucleares para obtener campos de radiación gamma pura*. ¿Se ha llevado a cabo algún trabajo en este sentido en Estados Unidos?

E. E. FOWLER (Estados Unidos de América): Continúa existiendo gran interés en la posibilidad de utilizar reactores para la producción de productos químicos en general. Durante el período que usted menciona no se ha realizado ningún avance sustancial en el sentido de comercializar esta aplicación pero

* Véase, por ejemplo, Breger, A. K., et al., *Circuito de radiaciones de indio-galio del reactor IRT, Large Radiation Sources in Industry*, Vol. I, p. 55, OIEA, Viena (1960); y Ryabukhin, Y. S., et al., *Empleo de circuitos de irradiación de los reactores como fuentes gamma de gran intensidad, Industrial Uses of Large Radiation Sources*, Vol. II, p. 175, OIEA, Viena (1963).

se están llevando a cabo programas de investigación y desarrollo, especialmente en lo que respecta a utilizar la energía de los fragmentos de fisión (como alternativa al empleo de circuitos de irradiación).

N. E. BREZHNEVA (URSS): De hecho, los Estados Unidos han anunciado un amplio programa para la utilización de productos de fisión como fuente de radioisótopos. ¿Estoy en lo cierto al suponer que la realización de este programa exige el tratamiento de un gran volumen de residuos radiactivos?

E. E. FOWLER (Estados Unidos de América): Las actividades a que usted se refiere forman parte de nuestro programa normal de tratamiento de residuos, y además, naturalmente, del problema del almacenamiento a largo plazo de los productos de fisión. No decae nuestro interés en la separación de los principales productos de fisión generadores de calor, con objeto de perfeccionar al máximo el proceso de manipulación de residuos. Pero, como he indicado, también estamos muy interesados en encontrar procedimientos y medios para aprovechar la valiosa fuente de energía presente en los productos de fisión. Por lo tanto, procedemos a la separación y purificación de los productos de fisión.

G. I. KIKNADZE (URSS): Creo que es pertinente mencionar en este momento los resultados de las medidas realizadas en los dos circuitos de irradiación descritos por Ryabukhin *et al.* en Salzburgo en 1963.

Las medidas realizadas en estas instalaciones después de dos años de funcionamiento indican que, en el caso de un reactor IRT de 2 MW(t), utilizando solamente el exceso de neutrones que no se emplean en el funcionamiento propiamente dicho del reactor, se puede obtener una fuente radiactiva equivalente a unos 500 kg de Ra. Probablemente una fuente de este tipo podría ser utilizada para investigaciones en química de la radiación.

H. ALBERT (Francia): En su opinión, Sr. Fowler, ¿cuáles son los factores que tienden a limitar el empleo de los productos de fisión? ¿Es la falta de mercados, el costo del tratamiento o los aspectos psicológicos (por ejemplo, el peligro inherente al empleo de radiaciones)?

E. E. FOWLER (Estados Unidos de América): Yo creo que el uso limitado de los productos de fisión hasta ahora ha sido debido a la combinación de varios factores. La necesidad de disponer de grandes cantidades de estos materiales en forma pura, a un precio de costo económico, ha sido ciertamente una de las razones principales. Un segundo factor es que las aplicaciones a que podían destinarse los productos de fisión, como fuentes de radiación, se encontraban en estado de desarrollo durante los últimos años y sólo ahora hemos llegado a un punto en el que podemos comenzar a ver la forma en que podrían ser

utilizados productivamente. No creo que los problemas psicológicos que usted menciona tengan tanta importancia como estos dos.

M. F. ABDEL-WAHAB (República Árabe Unida): En relación con la declaración que figura en la memoria (bajo el epígrafe *Producción en gran escala de isótopos*) de que en Estados Unidos se está produciendo cobalto-60 en forma de fuentes de alta actividad, ¿podría el Sr. Fowler describir el tipo de instalaciones de radiación gamma que se están desarrollando (interior, al exterior o de ambas clases)?

E. E. FOWLER (Estados Unidos de América): El material de muy alta actividad específica que estamos produciendo en la actualidad se destina a trabajos experimentales. Es posible que pueda ser utilizado en determinados procesos que hacen uso de la radiación y también como fuente de calor o energía en aplicaciones especiales. En su mayor parte, las instalaciones de Estados Unidos son del tipo que usted llama «interior», es decir, son piscinas de agua diseñadas para servir como protección. La fuente se eleva sacándola al aire libre para efectuar la irradiación.

M. DEL VAL COB (España): Dejando a un lado las aplicaciones de los radioisótopos como fuentes intensas de radiación, podría ser útil hacer un estudio general del desarrollo del resto de las aplicaciones de los isótopos, es decir, el uso de los radioisótopos como trazadores y en equipos de medida y control, conociendo las inversiones anuales de los diferentes países en aparatos electrónicos de medida. ¿Podría por favor, el Dr. Fowler comunicarnos la cifra correspondiente a los Estados Unidos?

F. DE LA CRUZ CASTILLO (España)*: Compartimos la opinión del autor de que el progreso en la producción de radioisótopos ha sido muy destacado en los últimos años. Nos gustaría, sin embargo, establecer una distinción entre lo que se puede esperar con los medios puestos en juego por países con amplios recursos y la doctrina que ha de presidir la producción de radioisótopos en países pequeños con recursos económicos limitados y pocas posibilidades de irradiación.

En este sentido, España, que posee un pequeño reactor de investigación de 3 MW(t), en los últimos años ha estado desarrollando nuevos métodos o adaptando otros ya conocidos para la producción de radioisótopos, teniendo en cuenta las posibilidades que ofrece un reactor de este tipo. Se encontrará un resumen de este trabajo en el documento P/492**. En nuestra opinión, los métodos de producción de radioisótopos en condiciones de irradiación limitada

* Esta pregunta no se hizo durante la sesión y se presentó posteriormente.

** Estas Actas, Vol. 7, sesión D.

deben estar orientados hacia la facilidad de separación, permitiendo con ello partir de grandes cantidades de materiales irradiados (véase la descripción de los métodos de producción de ^{35}S , ^{131}I y ^{32}P en el documento P/492)*, y hacia el empleo, en lo posible, de reacciones nucleares distintas de la (n, γ).

Documento P/298 (presentado por P. L. Gruzin)

DISCUSIÓN

P. S. POLLAK (URSS): Me gustaría mencionar algunas notables perspectivas referentes al empleo de fuentes de radiación en relación con ciertos tipos importantes de polimerización que, como acertadamente señaló el autor al presentar su memoria, no pueden llevarse a cabo por métodos químicos, térmicos o de cualquier otro tipo. Entre los proyectos de esta clase en los que estamos activamente empeñados, se encuentra la polimerización por radiación de complejos de inclusión del tipo de canal y de capa (polimerización en matriz) mediante el cual se pueden obtener con altos rendimientos polímeros estéreo-regulares de peso molecular elevado y propiedades físicas y mecánicas previamente establecidas, a partir de monómeros tales como dimetilbutadieno, acrilonitrilo y otros muchos. Otro proyecto se refiere a la producción de polímeros injertados y a la reproducción de estructuras. Esta técnica puede ser utilizada para la preparación de modelos sencillos para ser utilizados en la simulación de ciertos procesos biológicos.

Documento P/875 (presentado por B. R. Payne)

DISCUSIÓN

A. H. W. ATEN (Países Bajos): Me gustaría tener alguna información sobre el marcado de un lago o una cantidad similar de agua con tritio. ¿Qué cantidad de tritio es necesaria para obtener una actividad adecuada para su medida? ¿Es posible medir la actividad del hidrógeno contenido en las muestras como tales o hay que recurrir a procesos de concentración del tritio en el hidrógeno? En otras palabras, ¿tiene que ser enriquecido el tritio en el hidrógeno por separación isotópica antes de poder ser medida su actividad?

B. R. PAYNE (OIEA): El lago Chala, que tiene un volumen de $3 \times 10^8 \text{ m}^3$, fue marcado con tritio de forma que la concentración era de unas 2000 unidades de tritio. En este momento se está midiendo directamente la concentración del tritio en las muestras de agua tomadas del lago con detectores de luminóforo líquido. Las muestras de agua de los manantiales que distan algunos kilómetros del lago

se enriquecen por electrólisis antes de la medida con luminóforo líquido. También será preciso enriquecer antes de su medida las muestras tomadas en el lago posteriormente.

C. A. MAWSON (Canadá): No quisiera que quedara la impresión de que el tritio es el único trazador que puede utilizarse para grandes masas de agua. El río Ottawa tiene una anchura de 1 a 2 km y un caudal de unos $5 \times 10^7 \text{ m}^3$ diarios. Cuando estudiamos el grado de dilución de las aguas residuales del reactor NPD, próximo a Chalk River, añadimos rodamina B en la instalación depuradora de las mismas. Todavía pudimos medir la concentración de colorante en las aguas del río en Ottawa, unos 250 km aguas abajo. Utilizamos un fluorímetro montado en una barca, con registro continuo de la concentración de colorante.

J. P. BAXTER (Australia): En Australia se ha trabajado con bastante éxito en la determinación, por el método del carbono-14, de la edad de las aguas en la gran cuenca artesiana de Queensland. También se han utilizado con éxito los diferentes métodos de adición de radioisótopos para la medida de caudales de ríos. Me gustaría preguntar al Sr. Payne si ha encontrado reacción pública en contra de la adición de isótopos a las aguas naturales, aunque, evidentemente, las operaciones son seguras. Si es así, ¿se ha hecho algo para educar al público en estas cuestiones?

B. R. PAYNE (OIEA): No hemos encontrado ninguna reacción fuerte en contra del empleo de radioisótopos en problemas hidrológicos. En el caso de las investigaciones realizadas en Grecia, por ejemplo, trabajamos en colaboración con la Comisión de Energía Atómica Griega que informó a los habitantes de la zona sobre el objeto de las experiencias propuestas y la forma en que se realizarían.

J. K. BASSON (Sudáfrica): En muchas minas de oro de África del Sur se plantean tremendos problemas a consecuencia de la afluencia de agua subterránea. Determinadas minas pueden bombear hasta 90 millones de litros diarios de una profundidad de 3000 metros. Esta agua se vierte en la superficie y, por consiguiente, es importante saber si se produce recirculación. Se han llevado a cabo fructíferos estudios, utilizando unos pocos curios de yodo-131, con los que se ha determinado que el depósito subterráneo marcado contenía 9000 millones de litros.

La adición de un portador adecuado para el yodo-131 constituye un problema, ya que los compuestos de yodo son bastante caros para aplicaciones en gran escala. Por consiguiente, utilizamos otro haluro, el cloruro sódico (sal común) como portador**. ¿Podría usted hacer algún comentario sobre estas técnicas?

** Véase C. J. Verwey, Actas de la National Conference on Nuclear Energy, Pretoria (1963).

* Estas Actas, Vol. 7, sesión D.

B. R. PAYNE (OIEA): Personalmente, yo siempre trataría la cuestión del yodo con cierta reserva, debido a las posibles pérdidas por absorción o en forma de yodo libre. En la investigación que usted menciona habría sido interesante ver que información se hubiera obtenido midiendo el contenido en tritio natural de las citadas aguas. Si hubiera indicaciones de que se producía recirculación, esto podría haber sido confirmado mediante la introducción de un trazador adecuado.

A. MORENO Y MORENO (Méjico): ¿Cuál es la actual tendencia en los métodos de medida del tritio? ¿Se utiliza todavía el método propuesto inicialmente por Libby o está siendo sustituido por la medida con luminóforo líquido?

B. R. PAYNE (OIEA): La elección del sistema de medida depende en gran parte de las cantidades de tritio a determinar. La medida en un detector de luminóforo líquido es muy cómoda pero, en la actualidad, la máxima eficacia para la medida en forma de agua es del orden del 15%. Sin embargo, se obtiene una eficacia del 100% cuando se utilizan técnicas de medida en fase gaseosa. En este caso se debe convertir la muestra de agua en un gas adecuado para la medida en el equipo apropiado. En resumen, ambos sistemas están siendo perfeccionados y ambos se utilizan, dependiendo de la concentración de tritio.

W. P. BEBBINGTON (Estados Unidos de América): Hemos utilizado con cierto éxito el deuterio como trazador en estudios hidrológicos en el río Savannah. El deuterio se introduce en forma de D_2O y se determina *in situ* por análisis por activación con ^{24}Na por reacción gamma-fotoneutrón. El método es descrito por Hankell y Hawkins*.

A. S. SHTAN (URSS): El tritio se ha utilizado en la Unión Soviética durante más de diez años para estudiar el movimiento de las aguas, es decir, para determinar la dirección de la migración, el flujo y el movimiento de las aguas superficiales y subterráneas (especialmente en las regiones áridas de Asia Central); para estudiar el problema de las filtraciones en las presas de las centrales hidroeléctricas y para estudiar el movimiento de las aguas profundas y la inundación de perforaciones. En estos trabajos se ha hecho uso del tritio natural y de tritio añadido artificialmente. El trabajo de los científicos soviéticos en este campo es bien conocido y ha sido publicado en revistas científicas, tanto en la Unión Soviética como en otros países.

* $D_2O-^{24}Na$ method for tracing soil moisture movement in the field, que se publicará en Proceedings of the Soil Science Society of America.

Session G

APPLICATIONS OF ISOTOPES AND RADIATION SOURCES IN THE LIFE SCIENCES

LIST OF PAPERS

		<i>Page</i>
P/874	Les traceurs en biologie	C. Chagas 253
	<i>Tracers in biology</i>	
P/876	Advances in the use of isotopes and radiation sources in agriculture and food science.....	H. Broeshart <i>et al.</i> 264
P/880	Advances in the use of isotopes and radiation sources in medicine	E. H. Belcher <i>et al.</i> 275

Les traceurs en biologie

par C. Chagas *

La contribution la plus importante que les techniques physiques ont apportée au développement de nos connaissances dans le domaine biologique est sans aucun doute celle de l'utilisation des traceurs et plus particulièrement celle des traceurs radioactifs. On peut la comparer au rôle qu'a eu le microscope pour les sciences morphologiques. Les isotopes sont arrivés à un moment de l'évolution de la science où les connaissances accumulées devaient permettre un développement exponentiel de notre compréhension des phénomènes biologiques.

Bien que l'utilisation des isotopes radioactifs ait été faite dans tous les domaines de la biologie moderne, c'est en biochimie et en physiologie que les progrès les plus notables ont été réalisés: les principaux cycles du métabolisme intermédiaire ont été déchiffrés, et les vitesses de nombreux processus ont été mesurées dans des structures biologiques plus ou moins complexes.

L'importance même qu'ont prise les traceurs dans toutes les recherches biologiques rend impossible une revue complète des résultats obtenus, puisque cela reviendrait à résumer les connaissances acquises en biologie depuis 1946. Il faut donc opérer un choix, qui sera fondé sur la portée des progrès réalisés grâce à l'emploi des traceurs dans les domaines qui, au moment actuel de l'évolution de la pensée biologique, ont le plus d'attraits et qui débouchent sur de vastes perspectives d'avenir. C'est dire que ce mémoire n'aspire pas à être complet: il s'efforcera particulièrement de préciser la partie qui revient aux traceurs radioactifs dans l'avancement de nos connaissances.

L'intérêt de l'utilisation des isotopes radioactifs en biologie a été reconnu à l'époque où l'on ne possédait que des isotopes radioactifs naturels. C'est ainsi que G. Hévesy [1] a utilisé le plomb 210 pour aborder un problème de physiologie végétale. Mais le pas décisif en ce qui concerne l'application des isotopes en biologie a été franchi par la découverte de la radioactivité artificielle par F. Joliot et I. Joliot-Curie [2] puisque les éléments chimiques les plus importants en biologie sont des éléments légers dont les isotopes doivent être préparés artificiellement.

Deux dates importantes sont celle de l'utilisation du phosphore 32 par Hévesy [3] et celle de la prépa-

ration de la thyroxine marquée à l'iode [4]. Ce n'est qu'avec la mise au point des réacteurs nucléaires que la production des radioisotopes devint suffisante pour permettre une généralisation de leur emploi et l'essor de la préparation des molécules marquées soit par voie chimique, soit par biosynthèse. Des perfectionnements techniques importants ont facilité les recherches: compteur à flux gazeux, chambre d'ionisation proportionnelle, compteur à scintillation liquide, émulsions nucléaires.

L'utilisation des traceurs radioactifs repose sur les considérations suivantes:

a) On admet qu'un radioisotope suit dans un système donné les mêmes voies métaboliques que l'élément stable correspondant. Ce postulat est valable pour les traceurs dont la masse atomique est proche de celle de l'élément stable correspondant. Il est discuté pour certains isotopes, en particulier pour le tritium, qui est trois fois plus lourd que l'hydrogène normal;

b) La sensibilité de la méthode, qui permet fréquemment de détecter des masses inférieures au μg sous réserve que la radioactivité spécifique du corps utilisé soit suffisante dans le cas des traceurs radioactifs ou que le flux de neutrons soit assez élevé dans le cas de l'analyse par activation;

c) La facilité avec laquelle un composé marqué peut être suivi grâce à sa radioactivité;

d) La possibilité d'étudier le comportement de systèmes biologiques intacts sans perturber leur fonctionnement.

Il convient d'ajouter que les isotopes radioactifs ou stables peuvent être utilisés conjointement aux diverses techniques physiques ou chimiques, dont ils accroissent considérablement la portée.

Enfin, l'emploi des traceurs a permis d'introduire le paramètre temps dans de nombreuses expériences où il était impossible de l'utiliser auparavant; de nouvelles voies de recherche se sont ainsi ouvertes grâce à l'analyse cinétique.

Compte tenu de ce qui précède, nous pensons que les exemples qui vont suivre sont particulièrement aptes à illustrer les diverses utilisations des traceurs en biologie, de la chimie à la physiologie en passant par la pharmacologie.

* Institut de biophysique de l'Université du Brésil, Rio de Janeiro.

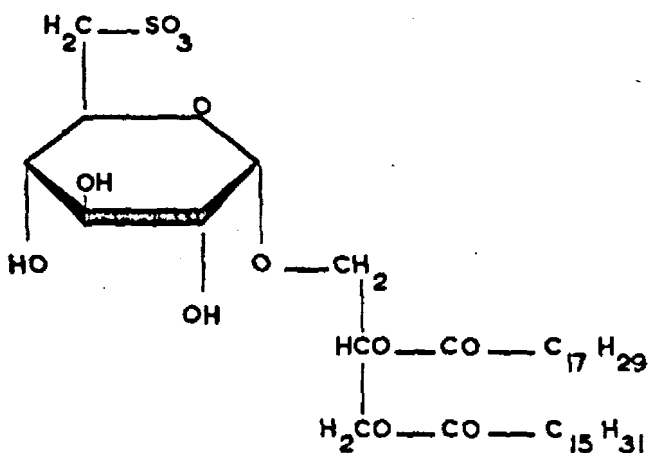


Figure 1. Formule développée du sulfolipide

UN SULFOLIPIDE DES PLANTES VERTES

Le premier exemple concernera la mise en évidence d'un composé naturel inattendu et l'élucidation de sa constitution sans que ce composé ait été isolé sous forme chimiquement pure. A.A. Benson *et al.* [5] cultivèrent des organismes photosynthétiques dans un milieu contenant du $^{35}\text{SO}_4$. Ils réussirent à extraire à la lumière les lipides et les séparèrent par chromatographie sur papier suivie de radioautographie: la radioactivité est concentrée dans une tache qui doit correspondre à un sulfolipide inconnu. Dans un second temps, l'organisme photosynthétique est cultivé à la lumière en atmosphère de $^{14}\text{CO}_2$ et l'extrait lipidique est chromatographié comme précédemment, ce qui permet d'obtenir le sulfolipide uniformément marqué au carbone 14.

L'hydrolyse acide du sulfolipide donna naissance à du glycérol (A), des acides gras (B) et un composé inconnu (C) migrant très peu sur le papier, deux fois plus radioactif que le glycérol et devant donc contenir $2 \times 3\text{C} = 6\text{C}$. Si l'on hydrolyse le sulfolipide marqué au ^{35}S , toute la radioactivité se trouve dans (C), dont l'acidité correspond à celle d'un sulfonate. (C) donne une osazone et une hydrazone et peut être acétylé: il s'agit d'un hexose-sulfonate, plus précisément du glucose-6-sulfonate.

La radioactivité des acides gras marqués au ^{14}C indique la présence de 34 atomes de carbone. Une sulfolipase végétale enlève un seul acide gras (6) qui est identifié à l'acide linoléique (C-18). Le second acide gras est libéré par hydrolyse acide et est identifié à l'acide palmitique (C-16).

Si l'on tient compte de la stabilité du glycéryl-glycoside-6-sulfonate vis-à-vis de la *bêta*-galactosidase et de sa sensibilité vis-à-vis de l'*alpha*-galactosidase, on peut établir la formule complète du sulfolipide inconnu (fig. 1).

Les propriétés du sulfolipide sont celles d'un détergent et son rôle dans les chloroplastes semble

être de stabiliser les couches successives de chlorophylle et de lipoprotéines. Il peut en outre servir de réserve soufrée et de transport pour le sulfite.

ANALYSE PAR ACTIVATION

L'analyse par activation est en plein développement. Conçue initialement pour doser des quantités très faibles d'éléments — notamment des oligoéléments — rendus radioactifs par capture de neutron [7, 8], elle est devenue une technique complémentaire de la chromatographie sur papier [11]. La méthode ne peut être appliquée qu'aux éléments susceptibles d'être rendus radioactifs et présentant une section efficace de capture de neutrons suffisante. La séparation du rayonnement induit d'autres rayonnements parasites se fait soit en opérant la mesure de la radioactivité dans un domaine donné du spectre, soit en laissant décroître les éléments à période plus brève que celle de l'élément intéressant, soit en effectuant une séparation préalable par voie chimique. C'est ainsi que Keynes et Lewis [9] ont mesuré la teneur en sodium et en potassium du nerf en repos et du nerf stimulé, et ils ont constaté que la stimulation s'accompagnait d'une augmentation de la teneur en sodium et d'une diminution de la teneur en potassium. Comar a dosé l'iode thyroïdien total [10].

L'analyse par activation ne peut pas s'appliquer aux molécules organiques, car l'activation libère en général l'élément de ses liaisons chimiques. La difficulté peut être tournée en employant la chromatographie par activation, ainsi que l'a montré A.A. Benson [11]. Les composés organiques non radioactifs sont séparés par chromatographie bidimensionnelle sur papier, puis le chromatogramme est irradié par un flux de neutrons. Les impuretés activables du papier chromatographique ont des périodes brèves et on attend leur décroissance pour mesurer la radioactivité induite dans les composés que l'on désire doser et dont l'identité est établie par l'autoradiographie. Les composés phosphorylés se prêtent très bien à ce genre d'analyse [11]. Beaucoup de composés ne sont pas activables directement; on peut alors les transformer en dérivés contenant un atome activable tel que le brome. C'est ainsi que l'on peut doser les acides organiques sous forme d'esters P-bromo-phénacylés, les oses et acides cétoniques sous forme de P-bromo-phénylhydrazones, et les acides aminés sous forme de P-bromo-benzènesulfonylamides [12].

L'ASSIMILATION DU CARBONE DANS LA PHOTOSYNTHESE ET DANS LA CHIMIO-AUTOTROPHIE

L'assimilation chlorophyllienne comprend deux processus distincts: 1) la conversion de l'énergie solaire en énergie chimique dans les chloroplastes; 2) la for-

mation de glucides et de divers composés organiques à partir du CO_2 de l'atmosphère.

L'étude du premier processus et son expression en termes physicochimiques et biochimiques est difficile, comme toute étude de transformation d'une forme d'énergie en une autre; elle en est à ses débuts et s'oriente vers des voies intéressantes.

L'étude du second processus — celui des voies métaboliques du carbone — peut être considérée comme achevée dans ses grandes lignes. Elle a abouti à l'établissement du cycle photosynthétique [13].

Une nouvelle technique d'application très générale, a permis en quelques années de résoudre le problème posé. Elle consiste à associer la chromatographie bidimensionnelle sur papier à la radioautographie, qui révèle la présence des composés radioactifs formés à partir d'un substrat marqué, et permet ensuite l'étude dynamique des réactions biochimiques d'un organisme intact [14]. Plus précisément, elle comprend: a) l'étude cinétique de l'apparition de la radioactivité dans les métabolites intermédiaires, dont on mesure la radioactivité totale et dont la nature chimique devra être établie; b) la mesure de la radioactivité présente dans tel ou tel atome de divers métabolites; c) la répercussion de modifications brusques des conditions extérieures, telles que la suppression de l'illumination ou la diminution de la concentration en anhydride carbonique, sur le marquage de divers métabolites.

Si l'on expose une plante verte à de l'anhydride carbonique marqué, le premier produit stable formé est l'acide 3-phosphoglycérique [15]. La dégradation chimique de l'acide 3-phosphoglycérique a établi que la radioactivité était incorporée d'abord dans le groupe carboxylique puis ultérieurement dans les atomes de carbone *alpha* et *bêta*. Mais les résultats indiquaient que les atomes de carbone *alpha* et *bêta* ne provenaient pas directement du $^{14}\text{CO}_2$, mais du ribulose diphosphate, dont la présence venait d'être établie dans les plantes vertes [16]. La fixation de CO_2 correspond donc à une carboxylation du ribulose-diphosphate, qui se scinde ultérieurement en deux molécules d'acide phosphoglycérique, dont une seulement contient le carbone 14 nouvellement incorporé.

L'acide 3-phosphoglycérique est ensuite réduit en 3-phosphoglyceraldéhyde et en dihydroxyacétone-phosphate, qui se condensent en fructose-diphosphate [17], selon un processus inverse de celui de la glycolyse. En fait, le marquage des hexoses est plus compliqué, puisque le C_4 est plus marqué que le C_3 , et puisque C_1 et C_2 sont plus marqués que C_5 et C_6 [18]. Ces constatations ne sont pas en désaccord avec le cycle photosynthétique puisque l'asymétrie du marquage C_3 - C_4 peut résulter de la masse variable du pool de la dihydroxyacétone, dans laquelle la dihydroxyacétone marquée se dilue, et

celle des atomes C_1 - C_2 et C_5 - C_6 peut tenir à la réversibilité de l'action de la transcéto-lase. Cinq triosephosphates forment trois pentosephosphates [13].

Deux expériences ont établi l'existence de relations cycliques entre l'acide phosphoglycérique et le ribulose-diphosphate au cours de l'assimilation chlorophyllienne: si l'on éteint la lumière, la concentration en ribulose-diphosphate baisse rapidement [19] du fait que la réaction de carboxylation continue à l'obscurité et que la phosphorylation du ribulose-5-phosphate cesse, faute d'ATP qui est produit à la lumière.

D'autre part, si on fait baisser brusquement la tension de CO_2 au cours de la photosynthèse, on observe une augmentation rapide du marquage du ribulose ^{14}C -diphosphate et une diminution de l'acide phosphoglycérique marqué [20], ce qui s'explique par le fait que le ribulose-diphosphate est le substrat de la réaction de carboxylation aboutissant à la formation de l'acide 3-phosphoglycérique.

Diverses tentatives ont été faites pour identifier le premier produit de fixation de l'anhydride carbonique; elles n'ont pas permis d'isoler avec certitude un composé instable qui soit précurseur de l'acide 3-phosphoglycérique, même en travaillant à très basse température et en utilisant des techniques plus douces que celles de la chromatographie sur papier.

En conclusion, à chaque tour du cycle, une molécule de CO_2 est fixée et une molécule de ribulose-diphosphate est resynthétisée. Il faut six tours pour former un hexose et douze tours pour former un disaccharide comme le saccharose. Il ressort de ce qui précède que la complexité des étapes intermédiaires du cycle photosynthétique — rapporté dans la figure 2 — est telle qu'il eût été pratiquement impossible de les étudier sans l'aide des traceurs radioactifs.

L'assimilation du carbone dans la chimio-autotrophie a longtemps intrigué les bactériologistes. On sait que Winogradski a découvert l'existence de bactéries qui requièrent l'anhydride carbonique comme seul substrat carboné [21]. Dépourvues de chlorophylle, ces bactéries chimio-autotrophes se développent parfaitement

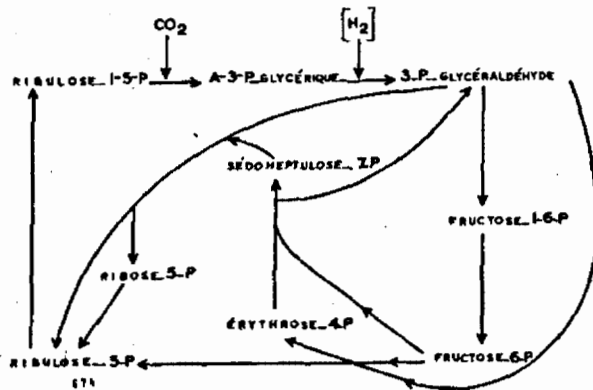


Figure 2. Cycle de l'assimilation de l'anhydride carbonique

à l'obscurité en utilisant l'énergie d'oxydo-réduction provenant de l'oxydation d'un substrat minéral couplée à la réduction d'un autre substrat minéral.

L'étude de l'assimilation du carbone par l'une de ces bactéries, *Thiobacillus Thiooxidans*, a montré que le schéma de fixation d'anhydride carbonique est identique à celui de l'assimilation chlorophyllienne [22, 23] — après une courte exposition au $^{14}\text{CO}_2$, la répartition de la radioactivité dans les atomes de carbone de l'acide 3-phosphoglycérique, du ribulose-diphosphate, du sédoheptulose-diphosphate, est identique à celle que l'on observe dans l'assimilation chlorophyllienne. Le marquage des atomes de carbone est parfaitement symétrique et toute la radioactivité est pratiquement présente en C_3 et C_4 : il faut admettre dans ce cas que le pool en dihydroxyacétone-phosphate est très petit.

La nature cyclique du schéma est établie soit en abaissant brusquement la concentration en composé réducteur (thiosulfate): le ribulose- ^{14}C -diphosphate diminue et l'acide 3-phosphoglycérique- ^{14}C augmente, soit en abaissant la concentration en $^{14}\text{CO}_2$: le ribulose- ^{14}C -diphosphate s'accumule et l'acide 3-phosphoglycérique diminue [23]. Le cycle du carbone décrit à propos de l'assimilation chlorophyllienne est donc général, puisqu'il s'applique également aux micro-organismes autotrophes.

En ce qui concerne l'étude de la conversion de l'énergie d'oxydoréduction en énergie utilisable par la cellule, il a été possible de démontrer que l'ATP est le premier produit riche en énergie formé. Il n'a pas été possible, néanmoins, d'établir les étapes intermédiaires précédant la formation d'ATP [24].

LE CODE GÉNÉTIQUE ET LA SYNTHÈSE DES PROTÉINES

Parmi les travaux qui concernent le contrôle de la synthèse d'une molécule protéique par le code génétique, beaucoup auraient été irréalisables sans l'aide des traceurs lourds et radioactifs. On doit à Crick et Watson [25] le concept du code génétique, qui, pour la biologie moderne, représente l'une des idées les plus stimulantes. Il n'entre pas dans notre intention d'exposer les théories actuelles relatives au code génétique et au mécanisme par lequel l'ordonnance des quatre bases des acides nucléiques conditionne l'incorporation des 20 acides aminés qui entrent, dans un ordre déterminé, dans la composition des protéines. Les figures 3 et 4 résument le rôle du code tel qu'il a été mis en évidence pour des bactéries, en particulier pour *E. coli* et ses phages.

On voit sur le schéma de la figure 4 qu'une molécule d'ADN située dans un gène sert de matrice à l'ARN messenger, auquel elle transmet des informations codées par la séquence de ses propres bases. Les bases complémentaires des nucléotides se conjuguent.

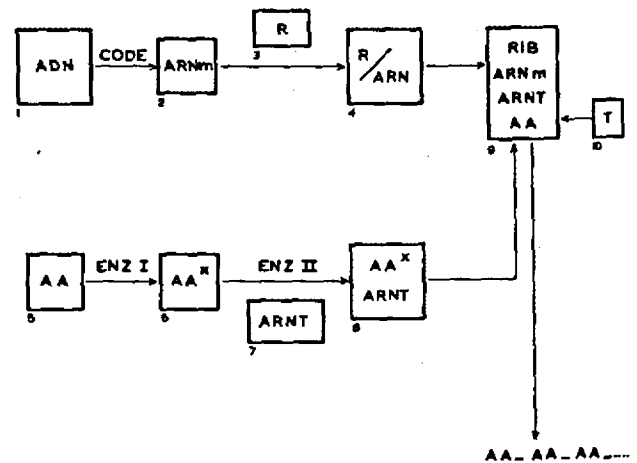


Figure 3. Représentation schématique de la synthèse protéique:

1. Acide désoxyribonucléique; 2. Acide ribonucléique messenger porteur du code; 3. Ribosome; 4. Ribosome et ARN codé; 5. Acide aminé; 6. Acide aminé activé; 7. ARN de transfert (ARN^T); 8. Acide aminé activé lié à l'ARN de transfert; 9. Conjugaison des bases de l'ARN ribosomique avec celles de l'ARN^T spécifique pour un amino-acide donné et formation d'une chaîne polypeptidique; 10. Transférase; 11. Libération de la chaîne peptidique

Le processus est semblable à celui de la réplication de l'ADN, qui assure la permanence d'un caractère et au cours duquel la double hélice de l'ADN se divise et chaque ruban d'ADN se conjugue avec des nucléotides du pool, pour former deux molécules nouvelles.

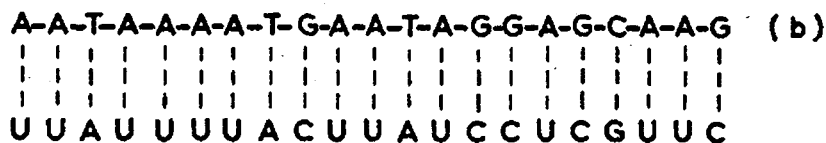
L'ARN messenger porte en soi l'information nécessaire à l'incorporation d'un acide aminé dans une chaîne peptidique. La séquence de trois bases porte le nom de triplet et les triplets seront identifiés au niveau du ribosome par l'ARN de transfert, auquel est attaché un aminoacide activé provenant du pool.

Le rôle de l'ADN dans la transmission de l'information génétique ressortait des expériences d'Avery *et al.* [26] relatives au principe transformant du pneumocoque. La preuve irréfutable fut apportée par Hershey et Chase [27]. Ces auteurs ont marqué le phage T_2 en utilisant le phosphore 32 pour l'ADN et le soufre 35 pour les protéines, puis ils ont infecté des bactéries. Ils ont constaté que la radioactivité du ^{32}P était présente dans le phage nouvellement synthétisé à l'exclusion de la radioactivité du ^{35}S . Cette expérience établit l'importance de l'ADN dans la transmission de l'information génétique et exclut une participation protéique dans ce processus. Puis Meselson et Stahl [28] emploient l'azote lourd pour étudier le mécanisme de réplication de l'ADN; des bactéries sont cultivées dans un milieu contenant $^{15}\text{NH}_4\text{Cl}$ comme unique aliment azoté, puis sont ensuite

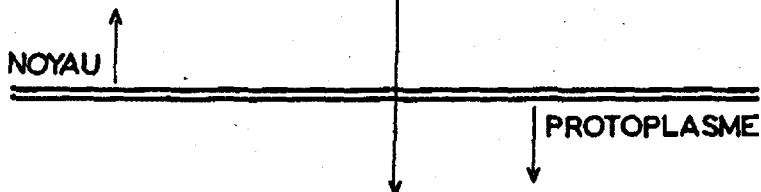
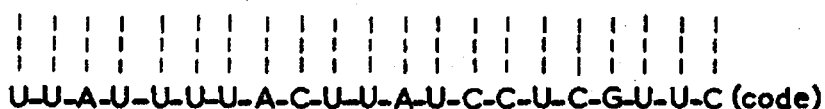
DOUBLE HÉLICE
ADN



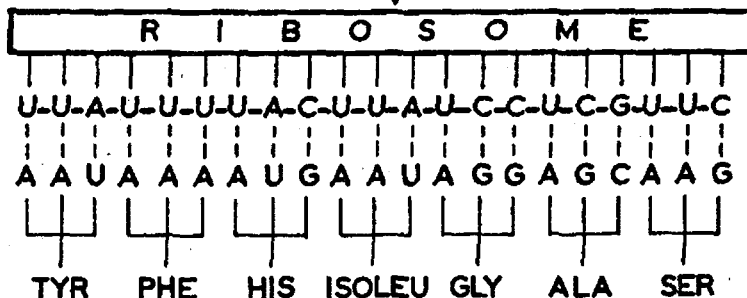
ALIGNEMENT DES
NUCLÉOTIDES SUR
UNE TRANCHE DE
L'HÉLICE



POLYMÉRISATION
DE LA MOLÉCULE
DU ARNm



RIBOSOME / ARN



ARN T

AA*

POLYMERASE
PEPTIDIQUE
TRANSFÉRESE
POLYPEPTIDE



- TYR — TYROSINE
- PHE — PHENILALANINE
- HIS — HISTIDINE
- ISOLEU — ISOLEUCINE
- GLY — GLYCINE
- ALA — ALANINE
- SER — SERINE

- A — ADENINE
- T — THYMINE
- C — CYTOSINE
- U — URACIL
- G — GUANINE

Figure 4. Formation du ARNm et codage d'un polypeptide

transférées dans un milieu neuf contenant du chlorure ammonium ordinaire. Par centrifugation dans un gradient de densité de césium, l'ADN marqué à l'azote 15 est séparé de l'ADN ordinaire.

Il résulte de ces travaux que la molécule d'ADN se reproduit de façon semi-conservative, c'est-à-dire que la double hélice d'ADN se dédouble et se réplique en fixant des nucléotides du pool sur les bases azotées de chaque ruban d'ADN qui sert de moule.

D'autre part, Ochoa *et al.* [29] ont préparé des polyribonucléotides synthétiques, et Kornberg *et al.* [30] ont obtenu des polydésoxyribonucléotides synthétiques par voie enzymatique. Pour déterminer la fréquence avec laquelle un nucléotide donné est lié aux autres nucléotides, Kornberg *et al.* ont mis au point l'analyse séquentielle du voisin immédiat, qui utilise le nucléotide marqué au ^{32}P [30A]. C'est à l'heure actuelle la méthode la plus intéressante pour essayer de déchiffrer l'ordonnance des bases.

L'existence d'un ARN labile au moment de la multiplication virale a été démontrée par Volkin et Astrachan [31] à l'aide du ^{32}P et du système *E. coli* et phage T_2 . En se fondant sur ce travail, sur celui de Brenner *et al.* [32] et sur celui de Gros *et al.* [33], Jacob et Monod [34] ont postulé l'existence d'un ARN messenger servant d'intermédiaire pour l'information génétique. Brenner *et al.* [32] ont associé les isotopes lourds ^{15}N et ^{13}C , destinés à permettre une séparation des acides nucléiques par gradient de densité aux isotopes radioactifs ^{14}C et ^{32}P utilisés pour marquer les acides nucléiques et ^{35}S utilisé pour marquer les protéines. Ils ont démontré qu'après l'infection d'*E. coli* par le phage T_4 , un ARN labile est formé, qui s'attache à l'ARN des ribosomes existant avant l'infection. Gros *et al.* [33] ont pu extraire cette ARN labile et en ont déterminé la constante de sédimentation.

Les polyribonucléotides préparés par Ochoa *et al.* [29] peuvent servir de modèle pour comprendre le rôle de l'ARN messenger. Un messenger synthétique polyuridylique induit la formation de la chaîne de polyphényl-alanine dans un système contenant des ribosomes bactériens (Nirenberg *et al.* [34] et Ochoa *et al.* [35]). D'autre part, Jukes [35A] a essayé de comparer les mutations portant sur un seul acide aminé aux changements d'une base unique dans certains triplets d'ARN messenger.

Enfin, Weiss et Nakamoto [36] ont polymérisé des ribonucléotides en présence d'ADN, et l'ARN obtenu était moulé par le « primer » d'ADN.

Du point de vue morphologique, l'activité de l'ADN et de l'ARN peut être mise en évidence dans les chromosomes polyténiques des glandes salivaires de *Chironomide* et de *Rhynchosciarae*. A l'aide de thymine, de cytidine et d'uridine marquées au tritium, Ficq et Pavan [37] ont montré par l'autoradiographie que l'ADN et l'ARN étaient synthétisés dans les



Figure 5

renflements que présentent ces chromosomes et que l'activité variait d'un point à l'autre des chromosomes en fonction de l'âge de la larve (fig. 5).

L'ANALYSE CINÉTIQUE

Les premières études entreprises à l'aide de traceurs radioactifs se proposaient de résoudre des problèmes simples, et la notion la plus importante qui en découlait fut celle de renouvellement et d'équilibre dynamique [38]. Depuis quelques années, les problèmes ont évolué et sont devenus plus complexes: l'interprétation des résultats fait appel à l'analyse cinétique, c'est-à-dire à l'analyse mathématique et à l'élaboration de modèles.

L'analyse cinétique se propose de déchiffrer, à l'aide de radioisotopes, les données expérimentales telles que la variation de radioactivités spécifiques en fonction du temps, pour les traduire en paramètres physiologiques, dans lesquels la radioactivité n'apparaît pas, telle que, par exemple, les masses composant le pool échangeable ou les vitesses des principaux processus physiologiques (masse par unité de temps).

Les principes de l'analyse cinétique peuvent être résumés de la façon suivante:

a) On introduit rapidement, dans une phase liquide du système étudié, une quantité négligeable en poids de traceur radioactif;

b) Des prélèvements échelonnés dans le temps permettent de déterminer la variation de la radioactivité spécifique en fonction du temps;

c) L'expression mathématique de la variation de la radioactivité spécifique est composée généralement d'une somme de fonctions exponentielles décroissantes, dont le nombre est réduit au minimum compatible avec la précision des mesures;

d) L'expression mathématique qui reflète le fonctionnement du système étudié doit être résolue et traduite en un modèle qui rende compte des données connues de la physicochimie, de la biochimie, de la physiologie et de la pathologie.

L'analyse cinétique a permis de distinguer deux types de mouvements: *mouvement d'échanges entre deux phases*, qui ne s'accompagne pas de variation de masse, et *mouvement irréversible*, qui s'accompagne de variation de masse (les processus d'excrétion, par exemple).

En outre, le fait que l'évolution en fonction du temps de la radioactivité spécifique puisse s'exprimer sous forme d'une somme de fonctions exponentielles suggère l'existence de compartiments dans les modèles. Il convient de remarquer que le système doit comprendre un nombre de compartiments égal au nombre de fonctions exponentielles, sous peine de devenir insoluble. Si le nombre de compartiments est supérieur à deux, plusieurs modèles peuvent être envisagés qui différeront entre eux par la disposition des compartiments et leur liaison par l'intermédiaire de processus d'échanges et par le ou les compartiments sur lesquels porteront les entrées et les sorties irréversibles.

Dans le cas le plus simple, celui de deux compartiments, si les phénomènes d'échanges sont univoques, il existe cependant de nombreuses combinaisons en ce qui concerne la disposition d'une ou de plusieurs entrées et sorties irréversibles. Tous ces modèles sont également vraisemblables du point de vue mathématique, et il faudra choisir celui qui tient le mieux compte de l'ensemble des données connues.

Salomon [39] et Robertson [40] ont montré les possibilités d'étude qu'offre l'analyse cinétique à l'aide de quelques exemples théoriques.

L'analyse cinétique rend de grands services pour l'étude du métabolisme minéral, et le comportement du calcium et du fer a fait l'objet de nombreux travaux qui tenaient compte des considérations précédentes.

Chez le rat, l'association de la méthode des bilans à l'interprétation de la décroissance de la radioactivité spécifique du calcium sérique après injection intraveineuse de $^{45}\text{CaCl}_2$ a permis à Milhaud *et al.* [41] et Aubert et Milhaud [42] d'établir un modèle à deux compartiments et de mesurer les principaux para-

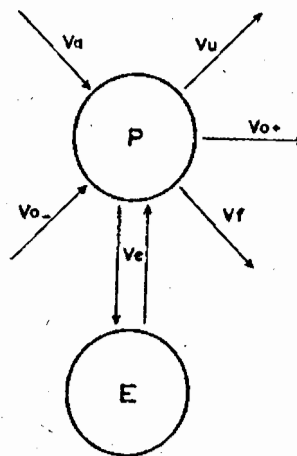


Figure 6. Modèle du métabolisme du calcium chez le rat

Masse du compartiment P contenant le calcium sanguin, le calcium extracellulaire, le calcium échangeable des tissus mous et la fraction rapidement échangeable du calcium de l'os. — Masse du compartiment E, représentant le calcium, plus lentement échangeable de l'os. — Vitesse d'échange entre ces compartiments, V_e . — Anabolisme osseux, V_{o+} . — Catabolisme osseux, V_{o-} . — Excrétion du calcium endogène fécal, V_f . — Quantité de calcium absorbée, au cours de la digestion, V_a .

mètres du métabolisme du calcium, qui sont représentés sur la figure 6.

Ce modèle a été utilisé pour étudier l'effet, sur le métabolisme du calcium et de l'os, du rachitisme expérimental et du traitement par la vitamine D_2 [41], de la cortisone [43], de l'hypophysectomie et du traitement par la somathormone et la thyroxine [44], des glandes thyroïdes et parathyroïdes [45], de l'âge [46], et des relations entre les divers processus chez le rat normal [47].

Dans le cas du métabolisme du fer, qui est particulièrement important pour l'étude de l'érythrocinétique, le modèle initial comportait un seul compartiment [48], puis deux [49]; sa forme simplifiée actuelle en comporte trois [50].

Ces modèles ont rendu de grands services pour élucider les mécanismes physiopathologiques des affections intéressant le métabolisme du calcium, du fer et l'érythropoïèse. Ils présentent un intérêt particulier pour évaluer l'importance de l'incorporation des radioéléments dans la biosphère.

INFLUX NERVEUX ET MOUVEMENTS IONIQUES

Certains aspects de la théorie ionique de Hodgkin et Huxley [51], par laquelle ces auteurs expliquent la formation et la propagation du potentiel d'action des nerfs, ont été confirmés par l'utilisation de sodium et de potassium marqués. Cette théorie admet un changement de perméabilité de la membrane de l'axone produisant un influx de sodium et un efflux de potassium. Les principales caractéristiques de ces flux ont été précisées par Keynes [52] et les valeurs observées

sont en accord avec les résultats obtenus par les méthodes électrophysiologiques.

Enfin, la production d'un potentiel d'action modifie ces flux, ainsi que la théorie le prévoyait.

LE CURARE ET LE PROBLÈME DU RÉCEPTEUR

Dans ses leçons sur les substances toxiques et médicamenteuses, Claude Bernard a démontré que le curare paralysait les muscles en agissant au niveau de la plaque motrice. Puis il fallut attendre une centaine d'années pour que le mode d'action du curare puisse être étudié en termes biochimiques. Dès que des agents curarisants marqués furent préparés — curarisants de synthèse tels que le TRIEG-¹⁴C [53] ou curare naturel tel que le diiodo-méthylate de l'éther diméthyle de la D-isochondodendrine-¹⁴C [53] ou la diméthyl-D-tubocurarine-¹⁴C — les progrès furent très rapides. L'organe électrique d'*Electrophorus electricus* se comporte comme une plaque motrice géante, dont la curarisation abolit le potentiel [54], et dans un premier temps l'agent curarisant marqué fut injecté par Chagas *et al.* [55, 56] dans l'animal vivant pour en suivre la distribution dans l'organisme et l'élimination. Lorsque la réponse électrique est abolie l'organe électrique est extrait et la radioactivité se trouve liée à une fraction de poids moléculaire élevé [57], qui fut identifiée à un mucopolysaccharide acide [58].

Compte tenu du fait que le curare n'est pas métabolisé dans l'organisme, il fut ainsi possible d'étudier *in vitro* la liaison de divers agents curarisants avec le mucopolysaccharide acide purifié et de montrer [59]:

1) Que le même nombre de μM de curare est lié par mg de mucopolysaccharide acide, qu'il s'agisse d'un curarisant naturel possédant deux groupes d'ammonium quaternaire, ou de curarisant synthétique possédant trois groupes d'ammonium quaternaire. La liaison agent curarisant-mucopolysaccharide acide ne correspond donc pas à la neutralisation stoéchiométrique de fonctions acides par des fonctions ammonium quaternaire;

2) Que le déplacement d'un agent curarisant par un autre agent curarisant est du type compétitif;

3) Que l'équilibre atteint est le même quel que soit l'ordre d'addition des agents curarisants.

Si l'on mesure l'affinité du mucopolysaccharide pour divers composés ayant des fonctions ammonium quaternaire par la quantité de composé nécessaire pour déplacer 50% du curare fixé sur le mucopolysaccharide, on voit que les quantités varient de 1 micromole pour 1 micromole à 1 micromole pour 100 micromoles, et on peut ainsi classer les différents agents.

Si l'on compare l'affinité de la liaison des curarisants *in vitro* avec le pouvoir de curarisation *in vivo*, on ne

peut qu'être frappé par le parallélisme entre les deux faits [59].

Le mucopolysaccharide représente un modèle moléculaire permettant d'étudier les interactions existantes entre la partie active d'un récepteur et des agents pharmacologiques renfermant des fonctions ammonium quaternaire.

Si l'on utilise la plus petite unité intacte du tissu électrique, l'électroplaque isolée [60], on peut suivre le processus de fixation du curare marqué et le relier à l'abolition progressive de la transmission de l'influx nerveux. On peut aussi relier la défixation du curare au processus de récupération progressive de la transmission de l'influx [61].

L'autoradiographie a montré que la fixation des curares dans l'organe électrique *in vivo* s'effectue dans les synapses et dans du tissu conjonctif [62]. P. Waser a obtenu des images semi-quantitatives qui illustrent l'inhibition de la transmission cholinergique dans le diaphragme du rat [63].

Ainsi donc l'utilisation d'agents curarisants marqués a permis d'aborder un problème fondamental de la pharmacologie, celui des récepteurs spécifiques des agents pharmacologiques [64].

CONCLUSIONS

Pour terminer, dégageons les perspectives qui se sont ouvertes en biologie grâce aux techniques d'utilisation des traceurs radioactifs.

Nous avons vu comment l'existence de composés chimiques inconnus se révèle par l'intermédiaire de la chromatographie sur papier suivie de radioautographie. Dans un cas privilégié, qui n'a cependant aucune raison de rester unique, la constitution chimique a été établie à l'aide de quelques microgrammes d'une substance qui n'a jamais été isolée à l'état chimiquement pur.

Nous avons vu par quelles étapes métaboliques l'anhydride carbonique était incorporé dans la plante verte intacte ou dans la bactérie chimio-autotrophe, et, si la source d'énergie diffère dans les deux cas, le cycle du carbone est exactement le même dans l'assimilation chlorophyllienne et dans l'autotrophie.

Nous avons vu comment la diversité des espèces vivantes, la variété des structures et des fonctions qui sont parvenues jusqu'à nous, la reproduction d'individus de la même espèce, peuvent être ramenées à l'étude du code génétique, qui contrôle la synthèse des enzymes nécessaires à la différenciation cellulaire et au maintien des processus vitaux.

Nous avons vu comment, à l'aide de l'analyse cinétique, on pouvait mesurer des compartiments et des processus inaccessibles à la mesure directe, sans perturber l'organisme étudié.

Nous avons vu comment l'étude du phénomène de curarisation permettait d'aborder un problème

pharmacologique fondamental, celui du récepteur de l'agent pharmacologique: le groupe actif du récepteur peut être isolé et représente un modèle moléculaire permettant d'étudier les interactions avec divers médiateurs et agents pharmacologiques.

Souvent on évite de perturber le système étudié, pour obtenir une image de son fonctionnement aussi normale que possible. Mais une perturbation judicieuse peut rendre au cours de l'analyse cinétique de grands services, soit en mettant en évidence des relations cycliques entre certains intermédiaires au cours de l'assimilation chlorophyllienne ou de l'autotrophie, soit en précisant le mécanisme des régulations qui assurent l'homéostasie des organismes, puisque le type même de réponse à la perturbation doit renseigner sur le type de régulation.

Il est hasardeux de faire des pronostics concernant les prochaines découvertes qui seront dues à l'utilisation des traceurs. Cependant, il semble logique de prévoir que nos connaissances progresseront dans le domaine reliant les aspects morphologiques des structures et ultrastructures aux données biochimiques.

Grâce à l'utilisation des radioisotopes, nous sommes à même de déchiffrer de nombreux messages — dont le code génétique n'est qu'un exemple — et il y a tout lieu de penser que nous ne sommes qu'à l'étape du balbutiement du langage de la vie.

REMERCIEMENTS

Nous tenons à remercier très vivement M. Gérard Milhaud pour sa collaboration lors de la préparation de ce manuscrit et M. Luiz Renato Caldas pour ses suggestions.

Ce travail a été effectué avec l'aide de la Commission brésilienne d'Énergie nucléaire.

BIBLIOGRAPHIE

1. Hevesy, G., *Biochem. J.*, **17**, 439 (1923).
2. Curie, I., et Joliot, F., *C.R. Acad. Sc.*, **198**, 254 (1934).
3. Chievitz, O., et Hevesy, G., *Nature*, **136**, 754 (1935).
4. Joliot, F., Courrier, R., Horeau, A. et Sue, P., *C.R. Soc. Biol. Paris*, **139**, 657 (1945).
5. Benson, A. A., Daniel, H., et Wiser, R., *Proc. Nat. Acad. Sc.*, **45**, 1582 (1959).
6. Tsubihiko Yagi et Benson, A. A., *Biochim. Biophys. Acta*, **57**, 601 (1962).
7. Tobias, C. A., et Dunn, R. W., *Science*, **109**, 109 (1949).
8. Brown, H., et Goldberg, E., *Science*, **109**, 347 (1949).
9. Keynes, R. D., et Lewis, P. R., *Nature*, **165**, 809 (1950).
10. Comar, D., Le Poec, C., Joly, M., et Kellersohn, C., *Bull. Soc. Chim.*, **56** (1962).
11. Benson, A. A., et Maruo, B., *Radioisotopes in Scientific Research*, Proceedings first UNESCO International Conference, Paris, Vol. IV, 510, Pergamon Press, London (1957).
12. Benson, A. A., Miller, W. W., et Stein, J. M., *Proceedings of the Vth Japan Conference on Radioisotopes*, **2**, 119 (1963).
13. Bassham, J. A., Benson, A. A., Kay, L. D., Harris, A. F., Wilson, A. T., et Calvin, M., *J. Am. Chem. Soc.*, **76**, 1760 (1954).
14. Benson, A. A., Bassham, J. A., Calvin, M., Goodale, T. C., Haas, V. A., et Stepka, W., *J. Amer. Chem. Soc.*, **72**, 1710 (1950).
15. Calvin, M., et Benson, A. A., *Cold Spring Harbor Symp. on Quantitative Biology*, **13**, 6 (1948).
16. Benson, A. A., Bassham, J. A., Calvin, M., Hall, A. G., Hirsch, H. E., Kawaguchi, S., Lynch, V., et Tolbert, N. E., *J. Biol. Chem.*, **196**, 703 (1962).
17. Calvin, M., et Benson, A. A., *Science*, **107**, 476 (1948).
18. Kandler, O., et Gibbs, M., *Plant Physiol.*, **31**, 411 (1956).
19. Calvin, M., et Massini, P., *Experientia*, **8**, 445 (1952).
20. Wilson, A. T., et Calvin, M., *J. Am. Chem. Soc.*, **77**, 5948 (1955).
21. Winogradski, S., *Ann. Inst. Pasteur*, **4**, 213, 1890.
22. Aubert, J. P., Milhaud, G., et Millet, J., *C.R. Acad. Sc.*, **242**, 2059 (1956).
23. Milhaud, G., Aubert, J. P., et Millet, J., *C.R. Acad. Sc.*, **243**, 102 (1956).
24. Milhaud, G., Aubert, J. P., et Millet, J., *C.R. Acad. Sc.*, **244**, 1289 (1957).
25. Watson, J. D., et Crick, F. H. C., *Nature*, **171**, 737 (1953).
26. Avery, O. T., McLeod, C. M., et McCarty, M., *J. Exp. Med.*, **79**, 137 (1944).
27. Hershey, A. D., et Chase, M., *J. Gen. Physiol.*, **36**, 39 (1952).
28. Meselson, M., et Stahl, F. W., *Proc. Nat. Acad. Sc. U.S.*, **44**, 671 (1958).
29. Ochoa, S., et Heppel, L. A., *The Chemical Basis of Heredity*, p. 165, (W. D. McElvey and B. Glass, editors), *John Hopkins Press* (1957).
30. Kornberg, A., Zimmerman, S. B., Kornberg, S. R., et Josse, J., *Proc. Nat. Acad. Sc. U.S.*, **45**, 772 (1959).
- 30-A. Josse, A., Kaiser, A., et Kornberg, A., *J. Biol. Chem.*, **236**, 242 (1961).
31. Volkin, E., et Astrachan, L., *Virology*, **2**, 149 (1956).
32. Brenner, S. F., Jacob, F., et Meselson, M., *Nature*, **190**, 576 (1961).
33. Gros, F., Giber, W., Korkladd, Rieseborough, R. W., et Watson, J. D., *Nature*, **190**, 581 (1961).
34. Jacob, F., et Monod, J., *J. Mol. Biol.*, **3**, 318 (1961).
- 34-A. Nirenberg, M. W., et Matthaei, J. H., *Proc. Nat. Acad. Sc. U.S.*, **47**, 1588 (1961).
35. Ochoa, S., Burma, D. P., Kroeger, H., et Weill, J. D., *Proc. Nat. Acad. Sc. U.S.*, **47**, 670 (1961).
- 35-A. Jukes, T. H., *Biochem. Biophys. Res. Comm.*, **7**, 497 (1962).
36. Weiss, S. B., et Nakamoto, T., *Proc. Nat. Acad. Sc. U.S.*, **47**, 1400 (1961).
37. Pavan, C., et Ficq, A., *Arch. Intern. Physiol. Biochem.*, **66**, 117 (1958).
38. Schoenheimer, R., et Rittenberg, D., *J. Biol. Chem.*, **114**, 381 (1936).
39. Solomon, A. K., *J. Clin. Invest.*, **28**, 1297 (1949).
40. Robertson, J. S., *Physiol. Reviews*, **37**, 133 (1957).

41. Milhaud, G., Remagen, W., Gomes de Matos, A., et Aubert, J. P., *Rev. franç. études clin. et biol.*, 5, 254 (1960).
42. Aubert, J. P., et Milhaud, G., *Bioch. Biophys. Acta*, 39, 122 (1960).
43. Milhaud, G., Remagen, W., Gomes de Matos, A., et Aubert, J. P., *Rev. franç. études clin. et biol.*, 5, 354 (1960).
44. Moukhtar, M. S., Cherian, A. G., Milhaud, G., et Aubert, J. P., *Proceedings First European Bone and Tooth Symposium*, Oxford, Pergamon Press, p. 103 (1963).
45. Aubert, J. P., Cherian, A. G., Moukhtar, L. S., et Milhaud, G., *Biochemical Pharmacology*, 13, p. 31 (1964).
46. Milhaud, G., Cherian, A. G., et Moukhtar, M. S., *Proc. Soc. Exp. Biol. Med.*, 114, 382 (1963).
47. Aubert, J. P., Moukhtar, M. S., et Milhaud, G., *Rev. franç. études clin. et biol.*, 6, 1034 (1961).
48. Huff, R. L., Hennessy, G. T., Austin, R. E., Garcia, J., Roberts, B. M., et Lawrence, J. H., *J. Clin. Invest.*, 29, 1041 (1950).
49. Sharney, L., Schwartz, L., Wasserman, L. R., Port, S., et Leavitt, D., *Proc. Soc. Exp. Biol. Med.*, 87, 489 (1954).
50. Sharney, L., Wasserman, L. R., Schwartz, L., et Tendler, D., *Ann. N.Y. Acad. of Sciences*, 108, 1, 230 (1963).
51. Hodgkin, A., et Huxley, A., *J. of Physiol.*, 117, 500 (1952).
52. Keynes, R. D., *J. of Physiol.*, 114, 119 (1951).
53. Milhaud, G., et Aubert, J. P., *Curare and Curare like Agents*, Bovet, D., Bovet-Nitti, F., Marini-Bettolo, G. B., ed. Elsevier, p. 413 (1959).
54. Chagas, C., *Curare and Curare like Agents*, Bovet, D., Bovet-Nitti, F., et Marini-Bettolo, G. B., ed. Elsevier, p. 327 (1959).
55. Hasson, A. et Chagas, C., *An. XXI Congrès. Int. Ci Physiol.* (1959).
56. Chagas, C., *Actualités Neurophysiologiques*, Masson ed., p. 303 (1959).
57. Hasson, A., et Chagas, C., *Proc. Symp. Comparat. Bioelectrogenesis*, Chagas, C., et Paes de Carvalho, A., ed. Elsevier, p. 362 (1961).
58. Hasson, A., *Bioch. Biophys. Acta.*, 56, 275 (1962).
59. Milhaud, G., Chagas, C., Jacob, J., et Esquibel, M. A., *Bioch. et Biophys. Acta*, 58, 19 (1962).
60. Chagas, C. et Esquibel, M. A., en voie de publication.
61. Chagas, C., Esquibel, M. A., Perault, A. M., et Milhaud, G., *C. R. Acad. Sc.* (sous presse) (1964).
62. Chagas, C., Almeida, D. F. et Ficq, A., *Ann. Histochem. Suppl.*, 2, 105 (1962).
63. Waser, P. G., *Helv. Physiol. Acta*, 16, 171 (1958).
64. Chagas, C., *Perspectives in Biology*, Cori, Foglia, Leloir et Ochoa, ed. Elsevier, p. 448 (1962).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/874 Brazil

Tracers in biology

By C. Chagas

Although Hevesy demonstrated the usefulness of natural radioactive elements in 1923, it was not until the discovery of artificial radio-elements by Joliot-Curie in 1934 and the subsequent developments in the production of radioisotopes by means of cyclotrons and nuclear reactors, that significant progress could be made in biological, biochemical and physiological research.

The examples given in the paper show the importance of the use of the tool of radioactive tracers and radioisotope techniques in solving biological problems or giving a clear picture of biological processes.

Using radioactive sulphur and carbon media for photosynthetic organisms, the presence of sulfolipids can be confirmed and their properties established. The various applications of activation analysis, its advantages, disadvantages and additional variations for analysing organic or biological compounds are discussed. A detailed review is given of the processes involved in the assimilation of carbon dioxide by plants and bacteria through photosynthesis with the use of ^{14}C -labelled carbon dioxide, as well as the kinetic processes involved. The elegant ways in which isotope techniques have contributed to answering the

question of how the genetic code of cells influences and regulates the biosynthesis of proteins are also shown. Finally, some examples are given of kinetic studies, such as the metabolism of calcium and iron, the relation between ion movement and nerve impulse and the problem of receptors of pharmacological agents as curare.

A/874 Бразилия

Радиоактивные индикаторы в биологии

С. Шагас

Хотя Хевеши еще в 1923 г. показал целесообразность использования естественных радиоактивных элементов, но только после открытия искусственных радиоактивных элементов Жоллио-Кюри в 1934 г. и последующих усовершенствований процесса получения радиоактивных изотопов на циклотронах и в ядерных реакторах удалось достигнуть существенных успехов в биологических, биохимических и физиологических исследованиях.

Приведенные в докладе примеры показывают значение применения этого нового средства — радиоактивных индикаторов и радиоизотопных методов при решении биологических проблем или для получения ясной картины биологического процесса.

Путем использования радиоактивной серы и углеродной среды для организмов, осуществляющих фотосинтез, можно показать присутствие сульфоллипидов и определить их свойства. Рассматриваются различные применения активационного анализа, его преимущества, недостатки и специальные изменения этого метода для анализа органических или биологических соединений. Дается подробный обзор процессов, связанных с усвоением растениями и бактериями двуокиси углерода, меченной C^{14} , путем фотосинтеза, а также кинетику этих процессов. Также показали изящные методы изотопной техники, позволившие выяснить каким образом генетический код клеток оказывает влияние и регулирует биосинтез протенинов. И, наконец, даются некоторые примеры кинетических исследований — метаболизм кальция и железа, взаимосвязь между движением ионов и нервным импульсом, и проблема рецепторов таких фармакологических агентов как кураре.

A/874 Brasil

Los trazadores en biología

por C. Chagas

Si bien Hevesy demostró en 1923 la utilidad de los elementos radiactivos naturales, hasta que los físicos Joliot-Curie descubrieron en 1934 los radioelementos artificiales y hasta la subsiguiente evolución

en la producción de radioisótopos mediante ciclotrones y reactores nucleares, no se pudieron realizar progresos importantes en la investigación biológica, bioquímica y fisiológica.

Los ejemplos que se presentan en la memoria ilustran la importancia de la utilización de los trazadores radiactivos y de las técnicas radioisotópicas para resolver problemas biológicos o para formarse una idea cabal de los fenómenos biológicos.

Mediante el uso de azufre radiactivo y medios carbonados en los órganos de la fotosíntesis se ha podido confirmar la presencia de sulfolípidos y establecer sus propiedades. Se discuten las diversas aplicaciones del análisis por activación, sus ventajas, inconvenientes y variaciones adicionales en el análisis de compuestos orgánicos o biológicos. Se examinan detenidamente los procesos que entraña la asimilación de dióxido de carbono por las plantas y bacterias merced a la fotosíntesis utilizando dióxido de carbono marcado con ^{14}C , así como los procesos cinéticos correspondientes. También se muestra de qué manera tan brillante las técnicas isotópicas han contribuido a la resolución del problema de cómo el código genético de las células influye sobre la biosíntesis de las proteínas y la regula. Por último, se presentan algunos ejemplos de estudios cinéticos, como el metabolismo del calcio y el hierro, la relación entre el movimiento iónico y el impulso nervioso, y el problema de los receptores de agentes farmacológicos como el curare.

Advances in the use of isotopes and radiation sources in agriculture and food science

By H. Broeshart,* C. M. Cho,* L. E. Engelbert,* L. E. Ericson,* M. Fried,* H. Goresline **, J. Keller, * K. Mikaelson, ** J. Moustgaard,*** B. Sigurbjörnsson* and P. B. Vose*

Food production is the world problem of our time. About half the total world population is undernourished, and it is predicted that the world population will be doubled by the end of this century. A corresponding increase in food production must be achieved.

Increasing crop yields and animal production requires a varied technology, involving plant breeders, soil scientists, entomologists, plant pathologists, animal physiologists, veterinarians, etc. When the food has been produced there are problems of storage and processing. Losses in storage alone are enormous.

There is not one major field of agriculture or food science where isotopes or radiation cannot be used either to improve production or, more often, to carry out research, treatment or processing hitherto impossible.

Since the Second Geneva Conference there has been steady progress in the application of nuclear techniques in all fields; in some consolidation and refinement, in others the development of new ideas. Thus there has been much work on food irradiation, and the problems of wholesomeness, palatability and economics are steadily being overcome. Radioactivation analysis appears to have considerable potential for the determination of trace elements in soils and biological materials, but many problems of procedure still remain for establishment on a routine basis. Of current interest is the development of reactors for the desalination of water for crop irrigation, but where the economics of the process remain a major problem.

This paper attempts a brief assessment of the present status of nuclear techniques in the most important areas of agriculture and food science.

- * Unit of Agriculture, Division of Isotopes, International Atomic Energy Agency, Vienna.
- ** Atomic Energy Branch, Food and Agriculture Organization of the United Nations, Rome.
- *** Consultant to the International Atomic Energy Agency, Vienna.

TRACERS AND SMALL RADIATION SOURCES

Soils

Soil chemistry

Isotope techniques have opened a wide field in soil chemistry. The availability of plant nutrients is governed by: (a) the chemical potential of the elements in the soil solution; (b) the rate of movement of elements from the solid phase into the soil solution; (c) the magnitude of the nutrient reserves that are able to move into the soil solution during crop development.

The application of the isotope dilution law to equilibrium soil solution has enabled the determination of ion exchange equilibria. Not only is it possible to study systems of very low salt concentration and low moisture content, but also these analyses can be done without extracting the soil with empirical extraction techniques. The use of empirical extraction techniques for the determination of adsorbed elements invariably introduces large errors due to chemical interaction of soil and extractant [1, 2, 3]. By means of radioactivation analysis it is now possible to study equilibrium soil solution of soil under natural moisture conditions, and detect quantities of elements that are far below the sensitivity of ordinary chemical methods.

The introduction of carrier-free radioisotopes or isotopes of high specific activity to equilibrium soil systems has enabled the determination of the rates at which the reserves are able to exchange with elements in the soil solution. The application of isotope techniques to ion exchange kinetics has yielded important information on the nature of the various exchange mechanisms of cations and anions in soil systems [4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12].

The magnitude of nutrient reserve in the soil, the so-called "labile pool" has been determined not only in soil suspensions but also with soils of normal moisture content, using the plant as a means for sampling the soil solution and for the determination of its specific activity [13, 14, 15, 16, 17, 18, 9, 19].

Soil fertility

When a plant is confronted with two sources of an element of different availability, it will take up the element from both sources in proportion to their availability. The application of this concept, using labelled fertilizer material, has resulted in a rapid development of all kinds of techniques with a view to: (a) comparing the availability of elements in different soils; (b) comparing the availability of elements of fertilizers of different chemical nature and particle size; (c) determining appropriate methods of fertilizer application which result in the highest efficiency of the applied fertilizers; (d) determining the best time of application of fertilizer; (e) determining the residual value of fertilizers; (f) determining the interaction between different fertilizers.

In all the above cases, an exact meaning can now be given to the availability of elements in the soil, using the availability of a particular fertilizer as a standard of comparison and the plant as the soil extractant [20, 21, 2, 22, 3, 16, 23, 24, 25, 9].

Soil physics

The measurement of soil moisture by the neutron method is now well established [26, 27, 28].

There are substantial advantages in the neutron determination of soil moisture, including direct and rapid determination in the field, repeated recording at any desired depth without further disturbing the soil, instantaneous equilibration with soil moisture, and its insensitivity to salt concentration in the soil. Problems have centred around calibration of the instrument, and a number of papers have been concerned with the efficiency of the method [29, 30, 31, 32, 33, 34, 35]. Among studies made are: water-air space relations in soils [36], water availability for crops [37], control of moisture in glasshouse studies [38], and the measurement of infiltration characteristics of soils [39]. The initial cost of the equipment is at present a hindrance to wider use.

Soil density may be measured by counting gamma rays emitted from a source and back-scattered by soil atoms to the detector. One study showed that the procedure was as precise as conventional soil core methods and over three times as fast [40]. The use of gamma radiation to measure soil moisture has also been described [41, 42], and has been successfully applied to research on unsaturated water flow in soils [43, 44]. The internal water status of plants in relation to soil moisture supply has similarly been determined by beta-ray gauging [45].

The thermodynamics and kinetics of soil moisture have been investigated using a ^{60}Co EDTA complex and it was possible to follow the change in the relationship between fluxes of moisture through the liquid and gaseous phases under varying conditions [46].

The hydrophysical characteristics of peat have been studied using ^{35}S and ^{131}I as non-sorbable indicators [47].

Plants

Plant physiology

Tracers remain indispensable to progress in plant physiology.

Thus, basic studies have continued on the absorption of nutrient ions by plants, extending our knowledge and theory of the process concerning almost all the major elements [48, 49, 50, 51, 52, 53, 54]. The absorption and loss of nutrients by leaves have also been studied [55, 56, 57].

Substantial work on translocation has been concerned with the movement of assimilates, that is products manufactured by the plant, in tobacco [58], the soybean [59, 60, 61, 62], wheat [63, 64] and sugar cane [65, 66]. Carbon-11 with a half-life of only 20.4 minutes has been used directly following preparation in the cyclotron [61]. After the activity had been allowed to decay, it was possible to use the same plants again under different experimental conditions. An ingenious technique has been used to measure the lateral movement of assimilates in plants, consisting of exposing a leaf to ^{14}C and then measuring the activity of honeydew from an aphid colony feeding on the opposite side of the stem [67, 68, 69]. Other studies have been concerned with the movement of inorganic ions in plants [70, 71, 72, 73, 74].

Instances of the use of isotopes, particularly ^{14}C , in problems of synthesis and metabolism are many, but we may note as representative the investigations of glucose utilization [75, 76], the incorporation of proline into proteins [77], malonic acid biosynthesis [78], acetate utilization [79] and the incorporation of magnesium into chlorophyll [80].

Plant pathology

Losses in world agriculture due to plant diseases are obviously enormous. Tracers have been used for the study of the metabolism and physiology of the diseased or injured plant [81, 82] to study the translocation of fungicides [83] and the fate of fungicides in the plant [84].

The quantitative evaluation of spray deposits, including the pattern of spraying and the losses due to rainfall has been studied using plant protection chemicals made radioactive by neutron irradiation [85]. Distribution patterns were investigated by autoradiography of the leaves.

The uptake of fungicides by fungal spores has been studied [86, 87]. In one investigation [87] using ^{14}C labelled fungicides, it was found that even with dosages as low as 1 ppm the spores removed large quantities of toxicant in a short time, but that the amount required to inhibit 50% of the spores was large.

There appears to be scope for much greater use of radioisotope tracers in plant pathology problems.

Weeds

Radioisotopes have played an important role in investigations on the absorption, translocation and mode of action of herbicides and the persistence of herbicide residues.

Elegant autoradiographic techniques have been developed [88] for the precise study of the comparative mobility of different labelled herbicides [89] and the factors affecting translocation [90, 91]. The effect of herbicides on metabolism has been studied through the use of ^{14}C labelled compounds [92, 93, 94, 95].

Work on 2,2-dichloropropionic acid (DCPA or Dalapon) illustrates the manifold approach that is possible with isotopes, with studies on penetration and translocation [96], distribution and metabolism [97], general physiological action [98] and its absorption from soil [99].

Plant breeding

In striving to increase world food production, there is an increasing demand for better crop plants which yield more, ripen earlier, resist diseases, drought and cold, can utilize heavy fertilizer applications without lodging, and lend themselves to mechanized planting and harvesting. The improvement in the plant's response to the natural environment and to rapidly developing agricultural practices depends on better genetic constitution. The discovery that the natural mutation rate could be multiplied by the use of radiation opened up a vast new potential for the plant breeder [100].

Mutation breeding has become increasingly important in recent years because the plant breeder, through intensified breeding of certain crop plants, is running out of natural variability for further improvement, and the natural rate of mutations cannot keep him adequately supplied with new genetic material. Therefore, there is increased emphasis on breeding with plants which have been exposed to radiations to widen the base of selection. Furthermore, as genes causing desired characteristics are now often found in wild species, distantly related to crop plants, radiation has proved to be an important microsurgical tool for transferring individual characters from one species to another [101, 102, 103].

It has also been shown that even if a desirable character can be found in an unadapted variety of a species, it may be quicker and more economical to irradiate the seeds of an adapted species to induce the particular mutation than to hybridize with the unadapted variety and select by means of conventional breeding methods [104, 105].

Recently a number of gamma fields have been constructed in many countries, the classical gamma source, ^{60}Co , being in many cases replaced with a better suited ^{137}Cs source. Research reactors have been constructed in many countries, giving the advantage of a neutron source for irradiation. Some chemicals have been found to be efficient mutagenic agents [106, 107, 108]. This has resulted in increased research activity and an improved understanding of the nature of induced mutations [109] and methods for their successful induction [110]. In some crop plants a number of induced mutations have been localized on the chromosomes [111]. New methods of screening for mutations have been formulated and tested [110, 112, 113].

Evidence has been found to show that artificial induction of mutations may not merely be the increase in the rate of naturally occurring mutations, but that there may exist differences in the spectra of natural and artificially induced mutations [114, 115].

Studies have shown that by alteration of the environment prior to, during and after irradiation, the induced genetic changes may be modified and directed and the somatic damage reduced [116, 117].

The mutability of the specific gene locus for resistance to *Helminthosporium victoriae* in oats can be fundamentally increased by changes of the water content of the seed prior to treatment with X- or gamma rays [118].

It has been shown that nuclear volume and chromosome number particularly, are good indices for radiosensitivity [119, 120].

Recent developments in the knowledge of mutation spectra of different kinds of radiations and chemical mutagens promise that within the near future it may be possible to use certain combinations of mutagens with appropriate modifications of the pre- and post-treatment conditions of the plant material to induce at will certain specific desirable gene and chromosome changes [100].

Much of the initial scepticism towards the usefulness of induced mutations in plant breeding programs has now disappeared as a result of an improved understanding of the mutation process, improved techniques of screening for mutants and important practical results which have recently been achieved with the use of radiation induced mutants in plant breeding [121, 122].

Examples of these practical results are another new barley variety developed in Sweden [121, 123], a new peanut variety [124], and a crown rust resistant oat variety [104].

A single X-ray treatment of *Hibiscus sabdariffa* resulted in progenies with a changed response to photoperiod, enabling it to grow 1000 miles north of its natural habitat [125].

Animals

Nutrition

Following classical works in the field of mineral metabolism [126, 127, 128], numerous experiments have been carried out to study the relation between apparent and true digestibility of minerals, including trace elements, and their distribution in the body. For example, the true digestibility of magnesium in hay was determined by the use of ^{28}Mg in studies with sheep [129, 130, 131].

Radioisotopes have enabled the location of that part of the intestine where absorption of various nutrients take place. It has been demonstrated with the isotope method that an excess of one mineral can greatly interfere with the digestibility of others [132].

Besides confirming previous knowledge of iron distribution inside the body, tracer studies with pigs have shown that possibly the entire intestinal tract takes part in iron absorption [133].

Metabolism

Isotopes have been found very useful and sometimes indispensable tools in studies of the rate of biochemical reactions, such as the biosynthesis and fate of proteins, carbohydrates and lipids, and product-precursor relationships in these processes. Thus, while conventional analyses of liver biopsies do not throw any light on the rate of synthesis and degradation processes when the liver maintains a nearly constant composition, isotopes make these studies possible. Such studies with labelled materials have shown the role of the liver in phospholipid synthesis and the important role of phospholipids in fat metabolism and in the transport of fat to the mammary tissue [134, 135].

Tracers have been extensively used in studies on the exchange of minerals between body fluid compartments and tissues. For example, with the use of ^{28}Mg it has been possible to establish the total exchangeable and non-exchangeable body magnesium [129].

More recently it has been shown with the use of ^{28}Mg that during magnesium starvation, the soft tissue magnesium is primarily conserved and the bone magnesium is depleted [136].

Milk secretion

The precursors of milk constituents have been extensively studied by the use of isotopes. Early experiments using isotopes had shown that casein is synthesized in the mammary tissue from free amino acids taken up from the plasma [137]. Recent studies, using ^{14}C -glucose and proxiolate, have shown that the mammary tissue also synthesizes amino acids itself from non-protein sources [138]. Other tracer studies on milk fat synthesis have revealed many important facts about the origin of short and long chain fatty acids and glycerol [139, 140, 141].

Reproduction

Isotopes have been used in studies on spermiogenesis. The time interval between the formation of male gamete and its appearance in semen has been studied by injecting soluble phosphates which subsequently become incorporated in DNA- ^{32}P of the sperm [142, 143, 144].

The use of autoradiographic techniques and ^3H thymidine as DNA precursors have made possible a more differentiated interpretation of the age of sperm in the ejaculate [145].

The use of resin spheres impregnated with ^{198}Au has made possible the exact determination of the speed of egg transport in the Fallopian tube [146].

Pathology

Since earlier methods of using radioiodine for studies on the thyroid gland [147, 148, 149, 150] are not fit for clinical investigations, a new, indirect way has been found, whereby a stabilized blood sample is mixed with labelled tri-iodothyronine (T_3). The rate of uptake of this compound by the erythrocyte reflects the functional state of the thyroid gland [151, 152]. This rapid test has been used on a large scale for measuring thyroid states in livestock [153].

In clinical evaluation of liver function the Rose-Bengal ^{131}I test has been useful. In sheep it has shown that the rate of uptake of the labelled compound is depressed in diseased livers [154].

Isotopes are also used in studies of disorders of the digestive system, caused by pancreatitis or biliary obstruction [155, 156, 157].

Evaluation of gastrointestinal bleeding is possible by labelling the circulating erythrocytes with ^{51}Cr [158]. Labelling of erythrocytes with ^{51}Cr has also been used in studies on anaemias caused by acute gastro-enteritis in the ruminant [159] and in studies on blood compatibility in swine [160].

Fish

Tracers have made it possible to tag organic materials and to release radioactive isotopes in water in order to study their uptake through various steps in a food system.

The digestibility of plankton, the acceptance of various size particles by shellfish, the function of the blood in the transportation of various chemicals and other such topics have been studied with greater ease with isotopes.

Tracers have also provided much valuable information concerning the dispersal of fertilizers in natural waters. Phosphorus-32 can be added to waters and identified in quantities below limits detectable by ordinary methods. Field studies using ^{32}P have confirmed the suspected recycling of organic phosphorus through aquatic food organisms. Rates of dispersal

of fertilizers have always been of concern in waters. The use of ^{32}P provides a tool for research on this problem [197].

Insect pests

Ecology

An understanding of the ecology of insect pests is indispensable to the efficient and effective control or eradication of any insect species.

By releasing known numbers of labelled insects and recovering both labelled and normal specimens, the rate of dispersal of an insect species, the maximum distance dispersed in a unit of time, the relative abundance of the insect per unit area and the longevity of the insect under field conditions can be determined [161]. The day-time and night-time resting places of the labelled insects can also be located [162]. By labelling plants, the host preference and nectar requirements of certain nectar feeding insects can be determined [163], and by labelling the food of social insects [164, 165, 166] the food exchange among colony members can be readily studied. Mating behaviour of insects has also been studied by allowing radioactive males to mate with normal wild females; from such matings radioactivity can be measured in the female and single or multiple matings determined [166].

Examples of the use of radioisotopes in studying insect ecology are the studies on the movement of olive flies [167], the dispersal of house flies [168], the migration of mosquitoes [169], and the movement of wire worms in the soil [170].

Physiology

Radioisotopes have greatly influenced progress in the study of the vital processes in insects. They have contributed to a better understanding of the physiology and biochemistry of nutrition [171], circulation [172], respiration [173], locomotion, excretion [174], secretion [175], reproduction [176], and nervous system function.

Tracers have been used in studies [177] on the permeability of ^{14}C labelled glucose and ^{24}Na and ^{42}K , through the continuous cellular and fibrous membrane that sheaths the insect nervous system, the biosynthesis of trehalose from carbon-14 labelled *D*-glucose in the fat body of the locust [178], the amino acid sequence in silk fibers produced by silk worms fed on mulberry leaves, dipped in solutions of carbon-14 or sulfur-35 labelled amino acids [179], and the intermediary metabolism of inorganic sulfur-35 into organic sulfur-35 in insect tissues [180].

Control

Insects compete with man for the agricultural products he produces in almost all stages of production, processing, storage and marketing.

Radioisotopes have provided an excellent tool for research workers to study the mode of action of insecticides on insects [181], the detoxification of insecticides by insects and plants [182], and the persistence of insecticide residues and metabolites in plants and plant products [183], and in animals [184].

An example of the application of radioisotopes in insect control and insecticide residues is the studies on the metabolism of ^{32}P labelled Thimint (phorate) by plants, insects and animals [185].

Eradication

Eradication of a harmful insect species from large tracts of land seems to be the most economical and practical solution to many problems. Insects can be eradicated by chemical, cultural or biological methods. Chemical means are generally undesirable because of insecticide residues and the destruction of useful species, while cultural methods are generally expensive and uncertain. Eradication by biological means offer the best prospect, particularly by the sterile male technique. This technique utilizes the normal inherent mating instinct to bring about the eradication of a species without molesting any other species in the environment. The technique has been found to be more economical than any other technique utilized [186].

Radiation has provided an excellent tool for inducing sterility or lethal dominants in many insect species such as screw worm [187], house fly [188], several species of fruit flies, locusts, mosquitoes, tsetse fly, and several species of beetles [189].

The screw worm was eradicated from the south-eastern United States by releasing 50 million sterilized screw worm flies a week, until no egg masses could be found on wounded animals and no normal flies could be collected in traps. The project required approximately five million dollars and saves livestock producers approximately twenty million dollars a year [190].

REACTORS AND LARGE RADIATION SOURCES

Plant breeding

The use of neutron irradiation for plant breeding purposes has been limited in the past by the relatively small number of reactors and accelerators. As these facilities have become more abundant, there has been an increase in the use of neutron irradiation for plant seeds. Though less is known about the biological effects of neutron than of X- and gamma irradiation, the information about neutron effect which has become available in recent years indicates that worthwhile results can be expected from more extensive exploitation [191].

More densely ionizing, neutrons are in general many times more effective in causing chromosomal

disturbances than the more commonly used sparsely ionizing X- and gamma radiations [192]. Their genetic effect is much less dependent on the physiological conditions of the cell, oxygen pressure, moisture content and temperature, for instance [193]. They affect directly the hereditary substance in the cell nucleus with minimum physiological damage [194].

Neutrons have recently been shown to affect specific genes in barley in different ways to X- or gamma rays. This has resulted for the first time in the induction of specific desired mutations [194, 195, 196].

Food Irradiation

Wholesomeness

The results of extensive testing have shown no untoward effects on animals or man resulting from eating irradiated foods. Accordingly such results led in 1963 to the clearance for human consumption, in the USA, of radiation sterilized bacon and wheat products treated by irradiation for the control of insects during storage.

Canada had previously permitted the use of ionizing radiation for inhibition of sprouting in potatoes, an application that has also been employed on a semi-industrial scale in the USSR. Applications are now being made to public health authorities to obtain clearance for additional irradiated products both in North America and in Europe.

Disinfestation

Control of insects is necessary to prevent losses and to keep grain clean and minimise the spread of insects by grain moving in international trade.

Investigations in the UK and the USA demonstrated that a radiation dose of 16 000 rad is sufficient to sterilize or kill all insect species commonly occurring in stored grain [198]. This dose does not impair the milling and baking properties of the grain nor does it decrease its nutritive value. The radiation treatment is practically instantaneous and disinfestation could thus be carried out during intake or unloading of grain at a terminal, in contrast to fumigation where treatment is carried out in static storage. If radiation were used for grain in bulk, it appears competitive with fumigation.

IAEA has outlined a program for a pilot plant for grain irradiation and is at present investigating the location of a proposed plant. The IAEA program includes a comparison of both isotope and electron radiation at commercial handling rates in order to test efficiency, reliability, economical parameters, and integration problems.

A bulk grain irradiator is being constructed in the USA, and in the USSR grain irradiation on a semi-industrial scale has been tested with encouraging results.

Radiation sanitation

A number of products and commodities are potential hazards to both human and animal health as they are possible sources of *Salmonellae* and other pathogenic organisms.

Frozen meats, egg products and various feeding stuffs like meat, fish, bone and blood meals are among the most likely sources of pathogenic microbes. Destroying the microbes by heat treatment is costly and changes the appearance and texture of the products. Radiation offers a promising alternative. If a radiation plant could be used for treating large quantities of product, radiation control would be cheaper than heat treatment. The cost for gamma irradiation in London of imported frozen horse meat would be about 14 dollars per ton, using a plant treating 13 000 ton per year at 0.65 Mrad [199]. Heat treatment would change the product and would not be practicable for this bulky material. The cost for radiation control of frozen egg would be similar to that for meat, whereas heat treatment would be a very costly procedure.

Radiation for the elimination of pathogenic microbes in dried materials, such as meat or fish meal, is under investigation in several countries. In the virus field mention should be made of the interesting studies on radiation inactivation of foot-and-mouth virus in both moist and dry products [200].

Radlopasteurization

Improving the keeping quality of perishable foods is an age-old problem of world-wide significance. There is need for a treatment technique that leaves the original commodity largely unaltered but prolongs its keeping qualities. Early hopes that ionizing radiation could be used to sterilize fresh foods, such as meats, fish and fruits, without changing taste, colour, texture or other qualities, have not been fulfilled. Nevertheless, treatment of such commodities with lower doses of radiation has in recent years convincingly demonstrated the potentials of radiopasteurization as a complement to refrigeration, curing, etc.

It has been shown that it is possible to increase many-fold the keeping quality at refrigerated temperatures of haddock, sole fillets, clams and crab meat by the use of radiation doses of the order of a few hundred kilorad [201]. Promising results have also been obtained with shrimp and oysters. It has been calculated that in the UK this advantage could be achieved at an increase in the retail price of only 2% [202]. The feasibility of radiation pasteurization of marine products will be further tested on an industrial scale at a 300 000 curie ^{60}Co radiation facility now under construction in the USA. Rapidly growing commercial interest in the radiation preservation of marine foods is predicted.

A major problem associated with any preservation process for fish, that does not lead to a sterile product, is the potential hazard caused by *Clostridium botulinum*. This dangerous spore-forming organism is exceptionally radioresistant and will survive the doses visualized for the radiation preservation of marine products. The various factors which influence the radiosensitivity and toxin production of this organism have been studied [203, 204]. It has been concluded that although *Cl. botulinum* undoubtedly constitutes a potential hazard, this hazard is no greater than with some other accepted commercial products and could be adequately controlled by keeping the irradiated pre-packed fish at temperatures near the freezing point and by indicating a maximum storage life for the various products [202].

During recent years interesting observations have accumulated in a number of countries on the potential usefulness of radiation treatment of fruits. There is considerable agreement as to the effectiveness of radiopasteurization of strawberries, whilst sweet cherries, figs, and oranges also show promise. The most promising results so far come from treatments for the reduction of microbiological damage which require doses of the order of only a few hundred kilorad.

Large-scale storage and shipping studies of irradiated fruits and vegetables have been initiated by the USDA.

Activation analysis

Activation analysis has been found to be a most highly sensitive and versatile method of elemental analysis for many elements [205].

The recognition of the importance of trace elements in agriculture aroused much interest in activation analysis and research on its applicability and versatility [206, 207, 208, 209, 210, 211].

A complete radioactivation analytical chart for common trace elements in biological materials has recently been compiled [212, 213].

Recent improvements in the accuracy and versatility of activation analysis have greatly increased its application in agricultural research. By its use, for example, it has been possible to correlate minute quantities of manganese in flooded rice paddy soils with the degree of reduction and the productivity of such soils [214].

Activation analysis has been used to study minerals in biological material [209, 215]. Antagonism between two ionic species of the same periodic groups with regard to their absorption by plant roots may be conveniently studied with activation analysis. Classical chemical methods and double labelling techniques are far inferior for this purpose.

Activation analysis of trace elements in insects has made it possible to determine their origin, as the trace

element composition of an insect varies with its habitat [216].

Neutron activation analysis is not generally applicable, but other charged particles, such as alpha, deuteron and proton have been successfully used to determine aluminium, beryllium, sodium and phosphorus. The use of these charged particles is, however, rather limited by their comparatively small cross section and the considerable dissipation of heat from the target during analysis.

Desalination of water for irrigation

There has been considerable interest in the utilization of heat generated in reactors for the desalination of water for agricultural purposes. While the potential uses for providing drinking water are very attractive, the cost of reactor-desalinated water makes its general use for irrigation uneconomic at present. However, for off-season production of high priced vegetable and fruit crops this may be feasible in the future. For detailed information on desalination in reactors, refer to other papers at this conference.

IMPLICATIONS FOR THE FUTURE

Some applications of radiation and traces have greater potentialities for development than others. Thus, the application of food irradiation has not started commercially, while in soil, plant and animal science we can expect few applications that are fundamentally new.

Several applications of food irradiation have reached a stage where they can be commercially exploited when cleared for human consumption. We may, therefore, expect substantial contributions to food supplies through the extension of storage life.

In entomology the use of radioisotopes should lead to much improved mass-rearing techniques, which with improved radiation sterilization, should lead to an increase in the number of insects which can be controlled by induced male sterility.

Radiation induced mutations are likely to become increasingly important to plant breeders. The use of neutrons has so far been limited, but their increased efficiency in causing chromosomal disturbances with minimum physiological damage suggests that their use may increase.

The desalination of water by heat from nuclear reactors has the widest implications for areas where crop production is limited by lack of water.

There are few scientific areas where radiation or tracers cannot play a part, either in extending basic knowledge of crop growth, or in increasing production through improved yielding varieties, pest control or food preservation.

REFERENCES

1. Sumner, M. E., and Bolt, G. H., *Soil Sci. Am. Proc.*, **26**, 541 (1962).
2. Ulrich, B., *Die Wechselbeziehungen von Boden und Pflanzen*, Ferd. Ente Verlag, Stuttgart (1961).
3. Talibudeen, O., *Soils and Fertilizers*, **XX**, (4) (1957).
4. De Haan, F. A. M., and Bolt, G. H., *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, **27**, 636-640 (1963).
5. Reiniger, P. *et al.*, Report IAEA Research Contract No. 123/RB, May 1964.
6. Lahav, N., and Bolt, G. H., *Nature*, **200**, 1343-1344 (1963).
7. Borland, J. W., and Reitemeier, R. F., *Soil Sci.*, **69**, 251-259 (1950).
8. Smith, D. H. *et al.*, *Agr. and Food Chem.*, **1**, 67-70 (1953).
9. Mattingly, G. E. G., and Talibudeen, O., Rep. Rothamsted Expt. Sta., 246-624 (1960).
10. Rennie, D. A., and Mc Kercher, R. B., *Canad. J. Soil Sci.*, **39**, 64-75 (1959).
11. Scheffer, F. *et al.*, *Zeitschr. f. Pflanz. Düng. Bodenkn.*, **91**, 224-232 (1960).
12. Wiklander, L., *Ann. Royal Agr. Coll. Sweden*, **17** (1950).
13. Szabolcs, J. *et al.*, *Agroh. es Talatjan*, **9**, 19-32 (1960).
14. Mehlich, A., *Soil Sci.*, **60**, 289-304 (1945).
15. Abdel Salam, M. A., and Hashish, S., *The use of ⁴⁵Ca for the determination of exchangeable calcium in soils containing appreciable amounts of calcium carbonate and gypsum*, Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, P/1497, Vol. 27, p. 172, United Nations (1958).
16. Newbold, P., *J. Sci. Food and Agric.*, Symposium, p. 128 (1963).
17. Larsen, S., *Plant and Soil*, **4**, 1 (1952).
18. Blume, J. M., and Smith, D., *Soil Sci.*, **77**, 9-17 (1954).
19. Olsen, S. R., *J. Phys. Chem.*, **56**, 630 (1952).
20. Fried, M., and Dean, L. A., *Soil Sci.*, **73**, 263-271 (1952).
21. Fried, M., *Amer. Ass. Advancement of Sci.*, **49** (1957).
22. Deo, G., *Agrochimica*, **VIII**, 64-67 (1963).
23. Harris, H. C. *et al.*, *Science*, **113**, 328-329 (1951).
24. Harris, H. C. *et al.*, *Soil Sci.*, **73**, 289-297 (1952).
25. Davide, J. G., *Phil. Agriculturist*, **XLV**, 48-56 (1961).
26. Gardner, W., and Kirkham, D., *Soil Sci.*, **73**, 391-401 (1952).
27. Van Bavel, C. H. M., *Publ. USDA No. ARS 41-24* (1958).
28. Kirkham, D., and Kunze, R. J., *Advances in Agronomy*, **14**, 321-358 (1962).
29. Marais, P. G., and Smit, W. B. de V., *S. African J. Agric. Sci.*, **3**, 581-601 (1960).
30. Stone, J. F. *et al.*, *Soil Sci. Amer. Proc.*, **24**, 435-438 (1960).
31. Andrieux, C. *et al.*, *Radioisotopes in Soil-Plant Nutrition Studies*, pp. 187-219, IAEA, Vienna (1962).
32. Perrier, E. R., and Johnston, W. R., *Soil Sci.*, **93**, 104-112 (1962).
33. McHenry, J. R., *Soil Sci.*, **95**, 294-307 (1963).
34. Merriam, R. A., and Copeland, O. L., *Soil Sci. Soc. Amer. Proc.*, **27**, 106-107 (1963).
35. Hewlett, J. D. *et al.*, *Soil Sci.*, **97**, 19-24 (1964).
36. Nielsen, D. R. *et al.*, *Iowa State Coll. J. Sci.*, **33**, 111-116 (1958).
37. Shaw, R. H., *Agron. J.*, **51**, 172-173 (1959).
38. Iwersky, M., and Hillsman, G., *Soil Sci. Amer. Proc.*, **25**, 13-14 (1961).
39. Letey, J. *et al.*, *Soil Sci.*, **91**, 77-83 (1961).
40. Phillips, R. E. *et al.*, *Soil Sci.*, **89**, 2-7 (1960).
41. Preobraznenskaya, M. V., *Soviet Soil Science (transl. Pochvovedeniye)*, pp. 1223-1227 (1959).
42. Chabart, Y., *ibid.*, pp. 662-664 (1960).
43. Gurr, C. G., *Soil Sci.*, **94**, 224-229 (1962).
44. Ferguson, H., and Gardner, W. H., *Soil Sci. Amer. Proc.*, **26**, 11-14 (1962).
45. Mederski, H. J., *Soil Sci.*, **92**, 143-146 (1961).
46. Nerpin, S. V. *et al.*, *Radioisotopes in Soil-Plant Nutrition Studies*, pp. 135-158, IAEA, Vienna (1962).
47. Volarovich, M. P. *et al.*, *ibid.*, pp. 171-185.
48. Fried, M. *et al.*, *Plant Physiol.*, **36**, 183-191 (1961).
49. Cohen, D., *Gen. Physiol.*, **45**, 959-967 (1962).
50. Koontz, H. V., and Barber, D. A., *Plant Physiol.*, **38**, 60-65 (1963).
51. Lingle, J. C. *et al.*, *Plant Physiol.*, **38**, 71-76 (1963).
52. Janada, T., *ibid.*, **38**, 422-425 (1963).
53. Handley, R., and Overstreet, R., *ibid.*, **38**, 180-184 (1963).
54. Rains, D. W. *et al.*, *Plant Physiol.*, **39**, 274-278 (1964).
55. Boroughs, H. *et al.*, *Plant and Soil*, **19**, 241-248 (1963).
56. Tukey, H. B. Jr., and Tukey, H. B. Sr., in *Radioisotopes in Soil-Plant Nutr. Stud.*, pp. 289-302, IAEA, Vienna (1962).
57. Tukey, H. B., and Morgan, J. V., *Physiol. Plant.*, **16**, 557-564 (1963).
58. Jones, H. *et al.*, *Ann. Bot. (Lond.)*, **23**, 493 (1959).
59. Thaine, R. *et al.*, *Australian J. Biol. Sci.*, **12**, 349 (1959).
60. Thrower, S. L., *ibid.*, **15**, 629 (1962).
61. Moorby, J. *et al.*, *J. Exptl. Bot.*, **14**, 210-220 (1963).
62. Clauss, H. *et al.*, *Plant Physiol.*, **39**, 269-273 (1964).
63. Stoy, V., *ibid.*, **16**, 851-866 (1963).
64. Doodson, J. K. *et al.*, *J. Exptl. Bot.*, **15**, 96-103 (1964).
65. Hartt, Constance E. *et al.*, *Plant Physiol.*, **38**, 305-318 (1963).
66. Hatch, M. D., and Glasziou, K. T., *ibid.*, **39**, 180-184 (1964).
67. Canny, M. J., *Ann. Bot. N. S.*, **25**, 152-167 (1961).
68. Peel, A. J., and Weatherley, P. E., *ibid.*, **26**, 633-646 (1952).
69. Peel, A. J., *J. Exptl. Bot.*, **15**, 104-113 (1964).
70. Emmert, F. H., *Plant Physiol.*, **34**, 449-454 (1959).
71. Biddulph, O. *et al.*, *ibid.*, **34**, 512-519 (1959).
72. Rinnie, R. W., and Langston, R., *ibid.*, 210-215 (1960).
73. Wilson, A. M., and McKell, C. M., *ibid.*, **36**, 762-765 (1961).
74. Vose, P. B., *J. Exptl. Bot.*, **14**, 448-457 (1963).
75. Katz, J., and Wood, H. G., *J. Biol. Chem.*, **235**, 2165 (1960).
76. Wager, H. R., *J. Exptl. Bot.*, **14**, 63-81 (1963).
77. Lyndon, R. F., and Steward, F. C., *ibid.*, **14**, 42-55 and 379-386 (1963).
78. De Vellis, J. *et al.*, *Plant Physiol.*, **38**, 686-690 (1963).
79. Syrett, P. J. *et al.*, *J. Exptl. Bot.*, **15**, 35-47 (1964).

80. Aronoff, S., *Plant Physiol.*, **38**, 628-631 (1963).
81. Baldacci, E., and Betto, E., *Atti Congr. Scient. (Sez. Nucl.) V. Rass. internaz. elettr. nucl.*, Rome 1958, pp. 393-406 (1959).
82. Ferrell, W. K. *et al.*, *Plant Physiol.*, **35**, 413-417 (1960).
83. Somers, E., and Richmond, D. W., *Nature*, **149**, 1194-1195 (1962).
84. Sato, T., and Tornizawa, C., *Bull. Nat. Inst. Agric. Sci. Tokyo, Ser., C 12*, 181-187 (1960).
85. Nordby, A., and Steenberg, K., *J. Agr. Engng. Res.*, **4**, 174-180 (1959).
86. Tornizawa, C. *et al.*, *Bull. Nat. Inst. Agr. Sci. Tokyo, Ser., C 12*, 171-180 (1960).
87. Miller, L. P., *Rep. Panel on Isotopes and Radiation in Plant Pathology*, IAEA, Vienna, to be published.
88. Yamaguchi, S., and Crafts, A. S., *Hilgardia*, **28**, 161-191 (1958).
89. Crafts, A. S., *Plant Physiol.*, **34**, 613-620 (1959).
90. Clor, M. A. *et al.*, *ibid.*, **37** and **38**, 609-617 (1962), 501-507 (1963).
91. Basler, E. *et al.*, *ibid.*, **36**, 573-576 (1961).
92. Humphreys, T. E., and Dugger, W. M., *ibid.*, **34**, 112-116 (1959).
93. Fang, S. C. *et al.*, *ibid.*, **36**, 192-196 (1961).
94. Bourke, J. B. *et al.*, *ibid.*, **37**, 233-237 (1962).
95. Stevens, V. L. *et al.*, *ibid.*, **37**, 215-222 (1962).
96. Foy, C. L., *ibid.*, **36**, 688 (1961).
97. Foy, C. L., *ibid.*, **36**, 698 (1961).
98. Prasad, R., and Blackman, G. E., *J. Exptl. Bot.*, **15**, 48-66 (1964).
99. Smith, G. W., and Dyer, D. L., *J. Agr. Food Chem.*, **9**, 155-162 (1961).
100. Gustafsson, Å., *Mutations and the concept of viability*, *Recent Plant Breeding Res.*, pp. 89-104 (1963).
101. Elliott, F. C., *Subcomm. on Res. and Dev. of Joint Comm. on Atomic Energy, USA*, pp. 230-232 (1961).
102. Swaminathan, M. S., and Natarajan, A. T., *J. Heredity*, **50**, 177-187 (1959).
103. Driscoll, C. J., *FAO/IAEA Techn. Meeting on Use at Induced Mutations in Plant Breeding*, Rome, 1964.
104. Wallace, A. T., *Subcommittee on Research and Development of Joint Comm. on Atomic Energy, USA*, p. 230 (1961).
105. Hagberg, A., *Recent Plant Breeding Res.*, Uppsala, pp. 105-124 (1963).
106. Ehrenberg, L., *Chem. Mutagenesis*, *Abh. Deut. Akad. Wiss. Berlin* (1960) and *Chem. Mutagenesis*, *Erwin-Baur-Gedächtnisvorlesungen I*, pp. 124-136 (1959).
107. Gustafsson, Å., *ibid.*, 16-29 (1960).
108. Eslot, H. *et al.*, *Compt. Rend.*, **248**, 729-732 (1959).
109. Auerbach, C., *Mutation*, Oliver and Boyd, 176 pp. (1962).
110. Hagberg, A., *Kromosomer och genkartor hos korn; meeting "Gruppen för teoretisk och tillämpad mutationsforskning"*, Stockholm, 27-28 January 1964.
111. Hagberg, A., and Åkerberg, E., *Mutations and polyploidy in plant breeding*, Heinemann, 150 pp. (1962).
112. Gaul, H. Z. *Pflanzenzücht.*, **50**, 194-307 (1963).
113. Scholz, F., *ibid.*, **44**, 105-128 (1960).
114. Bianchi, A., *Progress Rep. of res. carried out under IAEA Res. Contr. No. 64/US* (1963).
115. Von Wettstein, D. *et al.*, *Arbeitsgemeinschaft. Forsch. Landes Nordrhein-Westf.*, **73**, 7-48 and 59-60 (1959).
116. Konzak, C. F. *et al.*, *Proc. Symp. Karlsruhe*, pp. 155-169 (1960).
117. Nilan, R. A., *Monogr. suppl. No. 3. Res. Stud. Washington State Univ.*, **32**, 278 pp. (1964).
118. Wallace, A. T., *FAO/IAEA Techn. Meet. Induced Mutations in Plant Breeding*, Rome, May/June 1964.
119. Sparrow, A. H. *et al.*, *Science*, **141**, 163-166 (1963).
120. Sparrow, A. H. *et al.*, *FAO/IAEA Techn. Meet. Induced Mutations on Plant Breeding*, Rome, May/June 1964.
121. Gustafsson, Å., *Hereditas*, **50**, 211-263 (1963).
122. Favret, E. A., *FAO/IAEA Techn. Meet. Induced Mutations in Plant Breeding*, Rome, May/June 1964.
123. Hagberg, A., *Aktuellt från Svalö*, *Allm. Svenska Utsädesaktiebol.*, pp. 13-16 (1960).
124. Gregory, W. C., *Crops and Soils*, **12**, p. 8 (1960).
125. Gregory, M. P., and Gregory, W. C., *Subcomm. Res. and Dev. Joint Comm. Atomic Energy, USA*, p. 233 (1961).
126. Kleiber, M. *et al.*, *J. Nutrition*, **45**, 253 (1951).
127. Comar, C. L. *et al.*, *ibid.*, **50**, 459 (1953).
128. Care, A. D., *Res. Vet. Sci.*, **1**, 338 (1960).
129. Field, A. C., *Brit. J. Nutr.*, **15**, 349 (1961).
130. Simesen, M. G. *et al.*, *Acta Vet. Scand.*, **3**, 175 (1962).
131. Thompson, A. *et al.*, *J. Animal Sci.*, **18**, 187 (1959).
132. Braude, R. *et al.*, *Brit. J. Nutr.*, **16**, 427 (1962).
133. Zilversmit, D. B. *et al.*, *J. Gen. Physiol.*, **26**, 333 (1942-43).
134. Riis, P. M., and Moustgaard, J., *Conf. Mexico City*, **2**, p. 167 (1961), *Acad. Press*.
135. Barnes, B. A., and Mendelson, J., *Metabolism*, **12**, 184 (1963).
136. Barry, J. M., *J. Biol. Chem.*, **195**, 795 (1952).
137. Black, A. L., and Kleiber, M., *Conf. Mexico City*, **2**, 137 (1961), *Acad. Press*.
138. Hansard, S. L. *et al.*, *J. Animal Sci.*, **11**, 612 (1952).
139. Popjak, G. *et al.*, *Biochem. J.*, **48**, 612 (1951).
140. Wood, H. G. *et al.*, *J. Biol. Chem.*, **233**, 1271 (1958).
141. Luick, J. R., *Dairy Sci.*, **43**, 1344 (1960).
142. Ortavant, R., *Thesis, Inst. de la Recherche Agron., Paris* (1958).
143. Ortavant, R. *et al.*, *Conf. Mexico City*, **1**, 321 (1961), *Acad. Press*.
144. Koefoed Johnsen, H. H., *Nature*, **185**, 49 (1960).
145. Amann, R. P., and Koefoed Johnsen, H. H., *J. Reprod. and Fert.*, (1964), in press.
146. Harper, J. K. *et al.*, *ibid.*, **1**, 249 (1960).
147. Oddie, T. H., *Brit. J. Radiol.*, **22**, 261 (1949).
148. Blincoe, C., and Brody, S., *Univ. Mo. Agr. Exp. Sta. Res. Bull.*, **576** (1955).
149. Sørensen, P. H., *Jodstofs-kifte og thyreoideafunktion hos kvaeg og svin*, 302. *Ber. Forsøgs-lab. Copenhagen* (1958).
150. Sørensen, P. H., and Moustgaard, J., *Roy. Vet. Agr. Coll., Yearbook*, p. 83 (1957).
151. Hamolsky, M. W. *et al.*, *J. Clin. Endocrinol., Metab.*, **17** (1), 33 (1957).

152. Hansard, S. L., *J. Animal Sci.*, *21*, 387 (1962).
153. Sterling, K., and Tabachnik, M., *J. Clin. Endocrinol. Metab.*, *21*, 456 (1962).
154. Holmes, J. R., *Can. Vet. J.*, *1*, 348 (1960).
155. Michaelson, S. M. et al., *Am. J. Vet. Res.*, *21*, 364 (1960).
156. Clark, C. H., *J. Am. Vet. Med. Ass.*, *136*, 174 (1960).
157. Vernon, D. F., *J. Am. Vet. Med. Ass.*, *140*, 1062 (1962).
158. Owen, C. A. et al., *J. Lab. Clin. Med.*, *44*, 238 (1954).
159. Baker, N. F. et al., *J. Parasitol.*, *45*, 643 (1959).
160. Drury, A. N., and Tucker, E. M., *Immunology*, *1*, 204 (1958).
161. Lindquist, A. W., *Radiation Biology and Med.*, 688-710 (1958).
162. Huque, H., *Pakistan J. Sci.*, *12*, 135-136 (1960).
163. Abdel-Malek, A. A., Personal communication (1963).
164. Pardi, L., Personal communication (1963).
165. Gösswald, K., *Math. Naturwiss. Unterricht*, *12*, 208-223 (1959).
166. Keller, J. C., *Ann. Ent. Soc. Amer.* (1964), in press.
167. Pelekassis, C. E. D. et al., *Proc. Symp. Athens, IAEA/FAO*, pp. 105-113 (1963).
168. Shoof, H. F., *Pest Control*, *27*, 16-24 (1959).
169. Provost, M. W., *Mosq. News*, *20*, 148-161 (1960).
170. Cherepanov, A. I., and Volgina, K. P., *Dokl. Akad. Nauk SSR*, *98*, 301-302 (1954).
171. Silva, G. M. et al., *Nature*, *182*, 102-104 (1958).
172. Gano, T. et al., *Dai-z-kai Genshiryoku Shimpojiumu Hobushu* *4*, 206-212 (1958).
173. Sasaki, R., *Some observations on the biological influences of radioactive isotopes upon the physiological functions*, Proceedings of the First International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, P/1067, Vol. 12, p. 330, United Nations (1956).
174. Crossley, D. A., and Prior, E. M., *Health Phys.*, *4*, 16-20 (1960).
175. Suzuka, I., and Shimura, K., *J. Biochem. (Tokyo)*, *47*, 551-554 (1960).
176. Barbers, F. H., and Mitlin, N., *J. Econ. Entomol.*, *49*, 820-822 (1956).
177. Trehern, J. E., *Proc. Bombay Symp. IAEA*, 137-143, 5-9 Dec. (1960).
178. Candy, D. S., and Kilby, V. A., *Nature*, *183*, 1594-1595 (1959).
179. Ocatz, M., *Dissertation Abstr.*, *21*, 41-43 (1960).
180. Henry, S. M., *Boyce Thompson Inst.*, *20*, 317-329 (1960).
181. Blum, M. S., and Kearm, C. W., *J. Econ. Entomol.*, *49*, 862-865 (1956).
182. Perry, A. S., *J. Ag. Food Chem.*, *8*, 266-272 (1960).
183. Metcalf, R. L. et al., *J. Econ. Entomol.*, *50*, 338-345 (1957).
184. Clayborn, H. V. et al., *J. Ag. Food Chem.*, *8*, 439-442 (1960).
185. Bowman, J. S., and Casida, J. E., *J. Econ. Entomol.*, *51*, 838-843 (1959).
186. Christenson, D. L. (1964), personal communication.
187. Baumhover, A. H., *Bull. Entomol. Soc. Amer.*, *5*, 129 (1959).
188. Keller, J. C. (1960), personal communication.
189. Lindquist, A. W., Editor, *Insect Population Control by the Sterile Male Techn.*, Report on IAEA Panel, Vienna (1963).
190. Knipling, E. F., *Sci. Amer.*, *4*, 54-61 (1960).
191. Smith, H. H., Paper presented at IAEA Study Group Meeting on Utilization of Res. Reactors, Nov. 1963, São Paulo, Brazil.
192. Zacharias, M., and Ehrenberg, L., *Hereditas*, *48*, 284-306 (1962).
193. Hagberg, A., and Åkerberg, E., *Mutations and polyploidy in plant breeding*, Heinemann, 150 pp. (1962).
194. Gustafsson, Å., *The Swedish Cancer Soc. Yearbook 3, VII Radiobiology*, *78*, 358-359 (1963).
195. Lindquist, U., and Wettstein, D. von, *Hereditas*, *48*, 342-362 (1962).
196. Gustafsson, Å., *ibid.*, *50*, 211-263 (1963).
197. *Fundamental Nuclear Energy Research, Special Report, USAEC, Washington, D.C.* (December 1962).
198. Cornwell, P. B. et al., *UKAEA Report No. AERE - R3892* (1962).
199. Ley, F. J., *Sanitarian (London)*, *71*, 185 (1962).
200. Galdelli, B. et al., *Proc. 12th National Meeting, Società Ital. di Microbiol., Perugia*, *2*, 179-189 (1963).
201. Shea, K. G., Rep. to Study Group Food Irrad., European Nuclear Energy Agency, Paris (December 1963).
202. Rhodes, D. N., *ibid.*
203. Schmidt, C. F., and Nank, W. K., *Food Res.*, *25*, 321-327 (1960).
204. Schmidt, C. F. et al., *J. Food Sci.*, *26*, 626-630 (1961).
205. Bowen, H. J. M., *J. Nuclear Energy*, *3*, 18 (1956).
206. *Intern. J. Appl. Radiation Isotopes*, *4*, 214 (1959).
207. *Ibid.*, *5*, 227 (1959).
208. —, *Biochem. J.*, *77*, 79 (1960).
209. Bowen, H. J. M., and Dymond, J. A., *J. Exptl. Bot.*, *7*, 264 (1956).
210. Horber, E., IAEA Lab. (1964), private communication.
211. Koch, R. C., and Roesmer, J., *J. Food Sci.*, *27*, 309 (1962).
212. Lee, C. Y. et al., *Seoul Univ. J. (Korea)*, *12 D.*, 47 (1962).
213. Meinke, W. W., *Science*, *121*, 177 (1955).
214. Samsahl, K., *AB. Atomenergi Report No. A.E.-54, Stockholm* (1961).
215. —, *AB. Atomenergi Report No. A.E.-56, Stockholm* (1961).
216. Smith, H., *Anal. Chem.*, *31*, 1361 (1959).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/876 AIEA et FAO

**Progrès dans l'emploi des radioisotopes
et des sources de rayonnements
dans l'agriculture
et la science de l'alimentation**

par H. Broeshart et al.

Les auteurs évoquent quelques problèmes d'agriculture que l'emploi des indicateurs et des rayonnements permet de résoudre très facilement. Il passent en revue quelques-uns des principaux faits survenus dans ce domaine depuis la deuxième Conférence de Genève, en 1958, et donnent des exemples typiques d'applications modernes de ces techniques dans la recherche et la production agricoles.

Le mémoire a également trait à quelques-uns des résultats les plus remarquables obtenus grâce à l'emploi des indicateurs et des rayonnements. Les auteurs y font une place importante au rôle des réacteurs de recherche dans la recherche agricole.

A/876 МАГАТЭ и ВОЗ

**Успехи в использовании изотопов и
источников излучения в сельском хо-
зяйстве**

Х. Брехарт

Рассматриваются отдельные проблемы сельского хозяйства, которые могут быть легко решены с помощью методов изотопных индикаторов и излучений. Рассматриваются основ-

ные успехи в этой области, достигнутые после Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1958 год). На конкретных примерах показаны типичные случаи применения этих методов в сельскохозяйственных исследованиях и на производстве.

Рассматриваются также некоторые из наиболее важных результатов, полученных благодаря использованию изотопных индикаторов и излучений. Особое внимание уделяется роли исследовательских реакторов в сельскохозяйственных исследованиях.

A/876 OIEA y FAO

**Progresos realizados en la utilización
de isótopos y de fuentes de radiación
en la agricultura y en la técnica alimentaria**
por H. Broeshart et al.

En la memoria se esbozan algunos problemas agrícolas que se resuelven con facilidad aplicando técnicas basadas en el empleo de indicadores y de radiaciones. Se examinan algunos de los adelantos más notables registrados en esta esfera desde la celebración de la Segunda Conferencia de Ginebra, en 1958. Se dan ejemplos de aplicaciones recientes y características de estas técnicas en los estudios y en la producción agrícola.

Asimismo, se exponen algunos de los resultados más importantes obtenidos gracias a los indicadores y a la irradiación. Se destaca particularmente el papel de los reactores de investigación en los estudios agrícolas.

Advances in the use of isotopes and radiation sources in medicine

By E. H. Belcher, * M. Cohen, * R. A. Dudley, * H. G. Parker, ** K. C. Tsien * and H. Vetter *

This paper reviews the current status of the use of isotopes and radiation sources in medicine. At present, between 80 and 90% of all isotopes which are produced in the world are used for medical work. The current rate of scientific publications on this subject is about 1 500 per year if only diagnostic and therapeutic applications are considered, and some 4 000 per year if fundamental medical research is included. Hence, the task which the authors have been given is a most difficult one. Fortunately, a number of excellent survey papers as well as reports on new findings were given at the Second Geneva Conference. The present paper is therefore confined to a review of developments that have occurred since then. But even so, the review must necessarily be a superficial one.

The discussions at the isotope conferences in Oxford in 1951 and 1954, at the UNESCO conference in Paris in 1957 and the two previous Geneva conferences made it clear that the most widespread and intensive use of isotopes in the 1950s was in the medical field. Since then, further advances in the availability of isotopes and labelled compounds and improvements in equipment and instrumentation have brought about further increases in the scope and intensity of medical radioisotope work. This, in turn, has provided stimuli to isotope producers and equipment manufacturers to increase their range of products. However, two significant developments have been apparent during the period under consideration.

During the fifties, isotopes and radiation sources were almost exclusively used in the technologically advanced countries. Nowadays, there are only a few countries, certainly not more than 20, where isotopes have not yet been introduced. Fig. 1 is a good illustration, compiled from figures provided by a Latin American country, of how rapid an increase has occurred in the number of medical isotope licences granted during the last six years. It was found impos-

sible to obtain reliable figures on isotope production for medical purposes in the whole world but Fig. 2 is thought to be representative of recent trends. The data by a European producer show a steady increase in annual shipments of medical isotopes, whilst figures supplied by a firm in an Asian country show a much more rapid and nearly exponential rise. Also during this period, a number of countries outside America and Europe have acquired research reactors which are now producing isotopes on a modest scale. In some of them, sufficient quantities of medically important isotopes such as ^{131}I , ^{32}P and ^{198}Au are produced not only to satisfy the country's own needs but to permit export of appreciable quantities to neighbouring countries. In certain parts of the world the use of some short-lived isotopes such as ^{24}Na and ^{42}K has become an economic proposition for the first time since it is no longer necessary to pay for the long-distance air transport of heavy containers.

The other significant development is that nuclear medicine is beginning to be recognized as a medical speciality of its own. The number of those who still hold the view that isotopes are a tool that can be used by any medical doctor as can a microscope, is rapidly diminishing. Chairs of nuclear medicine have been established in a number of medical faculties. National and multi-national societies of nuclear medicine have been organized not only in Europe and the United States but also in Asia and in Latin America. Together they have several thousand members and publish their own specialized journals of nuclear medicine. Looking back at the way in which the medical applications of X-rays grew to proportions that required the establishment of radiology as a medical discipline in its own right, there can be little doubt that nuclear medicine will take the same course.

DIAGNOSTIC APPLICATIONS

Isotopes and labelled compounds

Some idea of how greatly the availability of radioisotopes and labelled compounds has increased further in the last five years may be gained from the issues of

* Medical Section, International Atomic Energy Agency, Vienna.

** Radiation and Isotopes Unit, World Health Organization, Geneva.

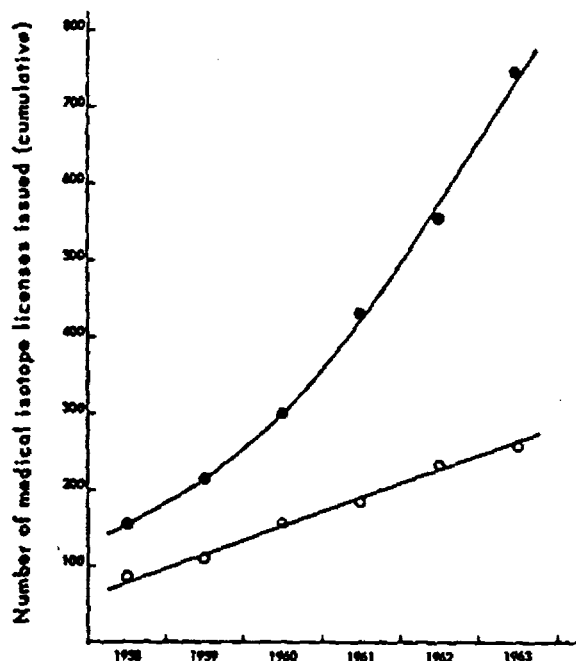


Figure 1. Number of licenses granted in a Latin American country to physicians to use radioactive isotopes (closed circles). Open circles indicate licenses for therapy only

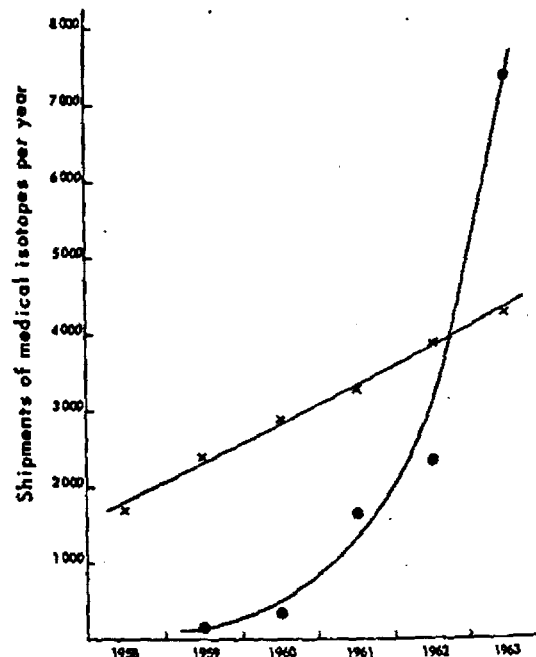


Figure 2. Number of annual shipments of radioisotopes and labelled compounds for medical use by a European (crosses) and an Asian (closed circles) producer

the International Directory of Isotopes published by the IAEA in 1959, 1962 and 1964, respectively (Table 1). While not all of the items listed in this Directory are used in medical work, the availability of radioisotopes and compounds for medical use has certainly increased in a parallel fashion. The past six years have seen numerous further improvements in shipment by producers of radioisotopes in reliable and standardized form, sterile and ready for human use.

Table 1. Statistics on availability of radioisotopes and labelled compounds

(From IAEA International Directory of Isotopes and Labelled Compounds)

	Edition		
	First (1959)	Second (1962)	Third (1964)
Number of suppliers listed . .	44	64	83
Number of isotopes and labelled compounds listed (excluding stable isotopes):			
Different items	1 400	1 950	2 950
Number of entries ^a	5 600	7 500	12 300

^a In most cases, a particular item is marketed by more than one producer.

There have been certain developments in this area which deserve special comment. The use of certain radioisotopes in medical work is limited by their short

physical half-lives which make transport over long distances uneconomical. In the last decade, methods have been developed that permit the milking-off of certain short-lived isotopes from a longer-lived parent isotope. The principle of this method is not new for it has long been employed to obtain short-lived radon from long-lived radium for the preparation of seeds used in interstitial radiotherapy. In a similar way, the 78-hour half-life of ^{132}Te is now being shipped in a so-called "cow" to the consumer who, by simple manipulation, can milk off the 2.3-hour ^{132}I . This isotope has found many applications in tests of thyroid function, blood volume measurements and circulation studies. ^{132}I is formed continuously from the parent isotope so that the "cow" continues as a source of ^{132}I over several weeks. Other short-lived isotopes now obtainable in this ingenious way are ^{28}Al , ^{137}Ba , ^{68}Ga , ^{140}La and $^{99}\text{Tc}^m$.

There are other short-lived isotopes which cannot be so produced and therefore have to be used quite near the place of production. An extreme example is the 2.1-min ^{15}O , the use of which in cardiac and pulmonary function studies is a technical and organizational *tour de force*. However, with the prospect of small cyclotrons being established at an increasing number of universities and medical research institutions, we may look forward to an increasing use of cyclotron-produced neutron-deficient radioisotopes in medical work.

Great interest has recently been shown in the use of isotopes that emit gamma-rays of low energy.

The particular advantage of such isotopes is found in *in vivo* uptake and localization studies, since the lower gamma-ray energy makes possible the use of lighter and more efficient collimated scintillation counters. Typical examples of such isotopes are $^{99}\text{Tc}^m$ and ^{197}Hg . ^{125}I is also now widely used and is replacing ^{131}I in many applications. In these it is favoured not so much because of its low photon energy, although it is used with advantage in certain scintigraphic studies, but because the absence of particulate radiation lowers radiation dose to the patient and the longer half-life permits longer storage of compounds labelled with this isotope. Low-energy gamma-ray emitters such as ^{125}I or ^{147}Pm also hold some promise for a quite different diagnostic application, namely their use as radiation sources in portable radiographic equipment.

Much progress has also been made in the production of new labelled compounds, particularly those labelled with tritium and ^{14}C . Improved methods of production are also giving labelled compounds of higher specific activity a notable advantage in many medical tracer studies. This is particularly true with tritium-labelled compounds, where the use of the Witzbach technique often results in specific activities of the order of curies per millimol. The latest edition of the IAEA Directory lists no less than 600 tritium-labelled compounds as commercially available.

Equipment and techniques

The most significant general advance in this field has been the introduction of fully transistorized electronic equipment into everyday medical isotope work. The availability of such equipment is of particular importance in the developing countries for it is likely to stand up to rough conditions better than equipment with thermionic tubes and, furthermore, printed circuits incorporating transistors are readily replaced in the event of break-down. Moreover, equipment manufacturers are making determined efforts to set up efficient maintenance and repair services throughout the world, so that the task of keeping scalars, pulse height analysers, ratemeters, etc., in good working order is considerably less formidable nowadays than it was five years ago.

For *in vitro* measurement of low-energy beta-emitters such as tritium, ^{14}C , ^{35}S and ^{45}Ca , liquid scintillation counting has become a routine method. Available equipment is highly automated, counting efficiency has greatly increased and self-quenching of coloured samples such as urine and plasma has largely ceased to be a problem. Both in liquid scintillation counters for low-energy beta-emitters and in solid well-type scintillation counters for gamma-emitters, automatic sample changers with data print-out have become available, allowing measurements of large

numbers of samples to be done overnight and freeing valuable technician time for other work.

Considerable effort has been made to improve the sensitivity and versatility of scanning equipment designed to record automatically the distribution of gamma-emitting isotopes in the body or its organs. Conventional scanning machines with moving detectors now on the market embody a scintillation counter with a 5 inch sodium iodide crystal and large multi-hole focussing collimators giving greatly improved depth resolution. Magnetic tape may be used to store the information recorded and methods of background suppression and contrast enhancement using photo-recording or closed-circuit television techniques are used to discard unwanted information and to emphasize information of potential diagnostic significance. Parallel to these improvements of scintigraphic techniques employing moving detectors, the recording of isotope distribution with stationary detectors has also made considerable progress with the development of so-called scintillation cameras. The particular advantage of these instruments over conventional scanning machines lies in their ability to record changes of isotope distribution within periods of minutes so that quite rapid changes in distribution of radioactive materials in the body or one of its organs can be followed on a two-dimensional display.

The development of whole-body counters for radiation protection work has offered clinicians the possibility of using these instruments for measuring the absorption and retention of small doses of radioisotopes in diagnostic studies. According to a recent IAEA survey, more than 60% of the whole body counters now in operation are also used for clinical research work. Many of the counting systems developed for radiation protection work are in fact too sensitive for diagnostic isotope applications and counters are now being developed that will be simpler and cheaper but still adequate for clinical work. The use of whole-body counters not only allows a reduction of radiation dose to the patient but also eliminates the troublesome and often incomplete collection of human excreta; however, whether these instruments will become established in routine medical isotope work remains to be seen.

Many of these advances in *in vivo* measurement techniques are due to the progress that has been made in the production of large scintillation detectors. Sodium iodide crystals, the most useful general purpose scintillators, are now available in diameters up to 11 inches and thicknesses up to at least 5 inches. Caesium iodide crystals, offering a somewhat greater sensitivity per unit volume, have become available in somewhat smaller dimensions. Calcium iodide crystals have very recently shown promise of detecting lower energy radiation with higher resolution, but they are still in the experimental stage. The most exciting

development of recent years in the area of radiation detection is, no doubt, the possibility of using solid state radiation detectors. At present, they are too insensitive and too difficult to use for widespread application in medical work, but their excellent energy resolution holds great promise for the future.

The last six years have also seen the beginning of a more intensive use of electronic computers in medical isotope work. Analogue computers can usefully be employed to analyse turnover data in radioactive tracer studies and to determine such parameters as pool sizes and rates of synthesis and degradation. Digital computers, on the other hand, appear to be particularly suited to the analysis of complex gamma-ray spectra recorded in whole-body counting studies or in neutron activation analysis.

Neutron activation analysis, although not strictly a medical application of isotopes, should be briefly mentioned here. This is in a very early stage of its development but there is no doubt it will find many applications in medicine, particularly for the determination of trace elements in human tissues or body fluids. Certain elements such as arsenic, iodine or sodium can already be determined without too much difficulty. The measurement of others, such as manganese or zinc requires more elaborate procedures and it will probably be several years before it becomes clear whether this method has a lasting place in clinical research work.

Advances in applications

Improvements in diagnostic applications of radioisotopes in clinical medicine have proceeded along the expected lines outlined at previous conferences: simplification of technique, reduction of radiation dose, choice of the most reproducible tests, increased reliability of isotopically labelled materials and counting equipment, and subjection of a wider variety of organs and conditions to scrutiny by isotopic methods, particularly by gamma-ray scintillation scanning and scintillation camera techniques. The time since the second Geneva Conference has been a period of further refinement of applications without the development of startlingly new ones. There has been a clarification of the real clinical usefulness of many diagnostic radioisotope procedures. Some simple, dependable ones are in the ascendancy, finding their way into ever increasing numbers of general hospitals throughout the world. Others, once appearing equally promising, have not progressed beyond the research stage. Some examples of procedures that are widely used, or show promise of wide usefulness, will be presented here.

^{131}I is still the isotope used in by far the greatest quantity and the 24-hour thyroid uptake test with

^{131}I still the most common isotopic test of thyroid function. The use of ^{132}I , although a well developed procedure which reduces radiation dose to the patient strikingly, has not displaced ^{131}I for this purpose in more than a few centres. ^{125}I has recently become available at competitive prices and will undoubtedly be increasingly used for clinical thyroid tests in the next few years.

Widespread exchanges of standards and of information on methods of measurement *in vivo* have increased the accuracy of radioiodine uptake measurements, but have also disclosed rather wide variations in the results reported by various clinical isotope laboratories (Fig. 3). Recent improvements in commercial equipment for measurements *in vivo* will make it easier to achieve more uniform results in the future.

The radioactive triiodothyronine test of thyroid function, which requires no administration of radioactivity to the patient, and which was rather new at the time of the last Geneva Conference, is now quite widely used, especially as a screening procedure. Substitution of a resin for the red cells originally used in this procedure has further simplified it.

The radioisotope renogram, a test of kidney function that involves the administration of a labelled substance selectively excreted into the urine and the recording of its passage through the kidneys by detectors placed over these organs, has become a well established procedure. Numerous refinements in technique have been suggested. Ortho-iodo-hippurate labelled with ^{131}I , and more recently with ^{125}I , has become generally available for isotope renography.

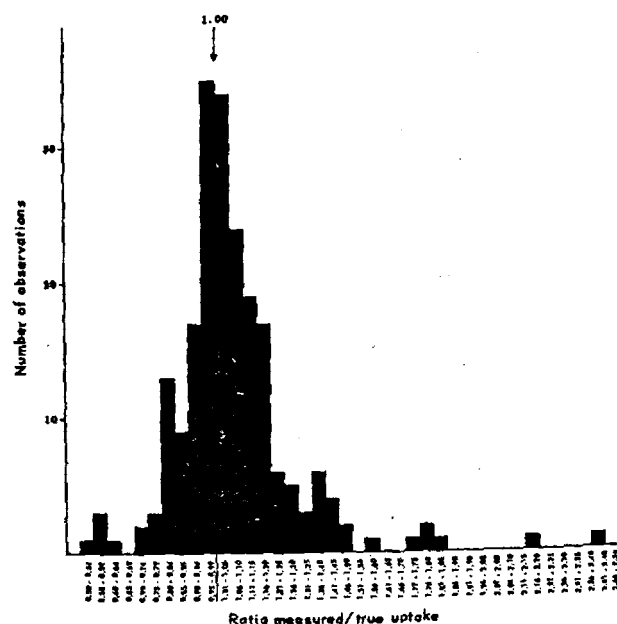


Figure 3. Results of 219 calibrations of thyroid radioiodine uptake measurements performed in 36 medical isotope laboratories by an IAEA expert, expressed as the ratio of observed to true uptake. About a third of all observed values were more than 10% in error

This material is more selectively excreted by the kidney and has a lower uptake in the liver than the labelled diodrast first available for the purpose. Radioisotope renography is still semi-empirical, as reflected by the wide variety of methods of data analysis in the literature. However, this situation is improving and in the next few years more quantitative radioisotope tests of kidney function will probably be developed.

Renograms used together with intravenous pyelograms (the standard contrast X-ray examination of the kidneys) have proved very helpful in selecting hypertensive patients for study by aortography and divided renal function tests. This is an excellent example of a radioisotope test fulfilling its promise as a simple screening test, often eliminating the necessity for more extensive procedures that carry much greater risk to the patient.

Gamma-ray scintillation scanning procedures for discerning the distribution of radioactive material in the body or one of its organs have made considerable progress. Scintillation scanning of such organs as thyroid, liver and brain has spread, with the development of good commercial equipment, into a great many of the large general hospitals.

In liver scanning, it has been found that valuable information can be obtained by performing a number of scans in different planes. Use of gamma-camera techniques, in which the time required for a single scan is much reduced, permit such studies to be carried out on a routine basis.

Theoretically, the best resolution for brain tumour detection is probably provided by positron scanning and positron camera techniques. Although these methods have been well established in a few centres for some time, they are not yet widely used because of the complexity of the equipment and the fact that the cost of the appropriate positron-emitting isotopes remains high. The steady improvement in equipment and reduction in cost of isotopes may soon make widespread application of positron scanning a reality. At present, however, other gamma-emitting isotopes appear equally useful and brain scanning is being done with a variety of gamma-emitting isotopes and recording techniques. A vast number of labelled materials have been tested for better tumour localization, but ^{203}Hg -labelled neohydrin and ^{125}I -labelled serum albumin are still the most widely used compounds. Many studies have been done with these materials and the role of these techniques in diagnosis of brain disorders is more clearly defined. Sometimes, brain scanning provides information that can be obtained in no other way (Fig. 4). Moreover, in view of its freedom from risk, it is now being used as a screening test for more extensive diagnostic procedures even where there are relatively few clinical indications. Brain scanning involves even less radiation dose to

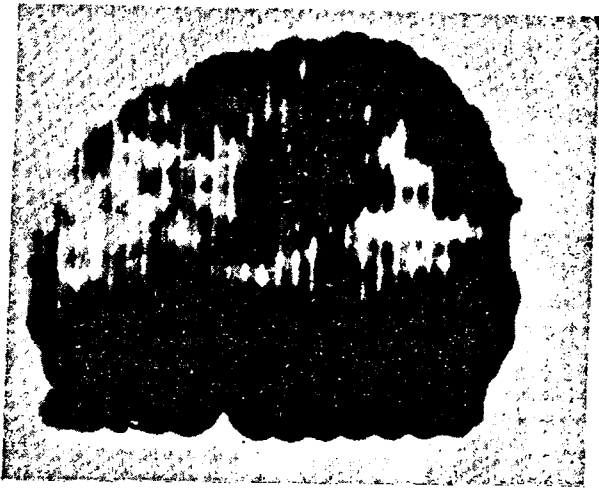


Figure 4. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ lateral photoscan of the head. Increased uptake of material in a superficially located brain tumour [1]

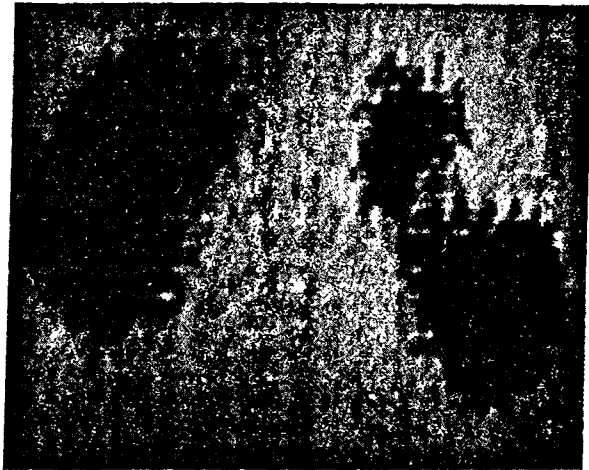


Figure 5. ^{203}Hg -neohydrin photoscan of the kidneys. The uptake defect in the left kidney corresponds to a tuberculous lesion [2]

the brain than the common radiographic procedures for the examination of this organ.

In the past few years, techniques for scanning of kidney, bone, spleen and pancreas have also proved clinically valuable. Figure 5 illustrates the use of scanning procedures to study the topography and anatomy of the kidneys; however, scanning is beginning to be used also to investigate renal function. The use of the gamma-ray scintillation camera promises to give a continuous visual presentation of the passage of radioisotopic materials through the kidneys with reasonably small doses and in the next few years may well replace the renogram as the standard test.

Scanning of the lung, bone marrow and lymph nodes has shown to be useful clinically and is also moving into the general armamentarium of nuclear medicine. Scanning procedures of the heart and the stomach are examples of new achievements in the visualization of individual organs, but have yet to prove their ability to compete with standard X-ray procedures.

In clinical haematology, there is a widening use throughout the world of ^{59}Fe and ^{51}Cr for studies of red cell production, red cell life span, blood loss, gastro-intestinal iron absorption, etc. For measurement of vitamin B_{12} absorption in pernicious anaemia and related conditions, ^{57}Co - or ^{58}Co -labelled vitamin B_{12} is now commonly used in place of the ^{60}Co -labelled vitamin. ^{57}Co is especially useful in view of its long shelf-life, good gamma counting efficiency and very low radiation dose to the patient due to the absence of particle radiations. Since the last Geneva Conference, the newer technology has allowed quantity production of this particular isotope for medical users.

A variety of other procedures have proved themselves in clinical work, for example the use of ^{24}Na or ^{132}I -labelled albumin for the localization of the placenta, the use of ^{131}I -labelled triolein and oleic acid tests for gastro-intestinal fat absorption, and the measurement of cardiac output by isotopic techniques. The employment of radioactive gases such as ^{85}Kr or ^{133}Xe for studies of muscle blood flow, cerebral blood flow and lung function are evoking interest among clinicians and are emerging from clinical research laboratories into regular use in the larger medical centres.

Tritium and ^{14}C incorporated into an ever-increasing number of organic molecules find useful applications in biological and medical research. Clinical diagnostic uses of these materials, however, are as yet few. Concern about the administration to humans of compounds containing these long-lived radioactive atoms appears to have diminished somewhat, and many new research applications for them may soon be ready for wider use.

Methods of analysis of breath and excreta after administration of ^{14}C -labelled molecules have been further improved and experience has been gained with a few more ^{14}C -labelled materials. In the next few years, the application of these techniques to studies with various labelled compounds, for example amino-acids, will permit much more detailed study of intermediary metabolism in the intact patient. In pernicious anaemia and sprue, such studies have already shown their usefulness as simple diagnostic tests.

THERAPEUTIC USES

Systemic administration

The majority of therapeutic procedures relying on systemic administration of the radioisotope make use of its selective metabolic localization in the organ to be irradiated. No new developments in this area have occurred since 1958. Oral or intravenous ^{32}P -therapy is still the method of choice for the treatment of polycythaemia vera. ^{32}P is also very frequently used in the treatment of chronic leukaemias. However, some haematologists prefer to use colloidal ^{198}Au , mainly

because this material is not excreted and problems of radioactive waste disposal do not arise. ^{131}I continues to be widely used in the therapy of thyroid cancer and thyrotoxicosis. However, in the last two years careful analysis of long-term observations on patients treated for thyrotoxicosis have revealed the disquieting fact that permanent hypofunction of the thyroid gland may develop many years after ^{131}I therapy. In some centres, as many as 50% of the patients appear to be so affected 10 years after successful therapy of thyrotoxicosis. Although other centres report figures very much less dramatic and, in any case, the condition can be controlled relatively easily by replacement therapy, it is clear that the whole situation requires thorough reassessment.

A number of new methods of non-metabolic localization of radioactive material in tissue to be irradiated have been attempted with varying success. If tissue is injured, for example, by invasive growth of a malignant tumour, the coagulation system that converts fibrinogen to fibrin will be activated so that the protein is deposited in that area. Intravenous injection of ^{131}I -labelled fibrinogen or antibody to fibrin results in a selective concentration of radioactivity in tumour tissue to an extent that suggests that this method might be used successfully in the treatment of certain types of human cancer.

Lipiodol is an iodine-containing radiological contrast medium which can be labelled with ^{131}I to a high specific activity. If given intralymphatically it is removed by the lymph nodes along the lymphatic vessels so that substantial radiation doses can be delivered to the lymph nodes in this way. This form of therapy promises to be effective in the treatment of metastatic involvement of lymph nodes in patients with cancer, particularly in the pelvic region.

If compounds of a certain particle size are injected into the circulation, their removal is a simple mechanical process. Particulate matter having a diameter of the order of 50 microns will not pass the small capillaries when injected intra-arterially so that doses as high as 100 000 rad may be delivered to a malignant tumour, particularly if it is highly vascularized. Ceramic microspheres labelled with ^{90}Y or resin particles labelled with ^{32}P are used for this purpose.

Interstitial, Intracavity and surface therapy

Considerable progress has been made since 1958 in further developing the use of artificial radioisotopes in place of radium and radon seeds for interstitial, intracavitary and surface therapy. As is well known, radium has a number of disadvantages as a therapeutic agent. It is expensive, it cannot be used as a permanent implant, it emanates a radioactive gas which has to be contained; its use requires elaborate safety precautions. The stock of radium sources in many hospitals,



Figure 6. Implantation of ^{182}Ta wires for radiotherapy of a mesenchymal tumour in the region of the kidney [3]

particularly in the developing countries, comprises a rather limited number of tubes and needles which are more often than not of inconvenient size and/or strength. Frequently, the specific activities of the different sources are so variable that the combination of sources in a rational arrangement is impossible.

In many therapy procedures radium can, however, be replaced by ^{137}Cs and a set of tubes and needles containing this isotope is now produced commercially and is likely to be increasingly used. When an institute owns a stock of radium sources which is adequate for its work, it will probably continue to use this material; but a recent IAEA panel of experts has recommended that newly established institutes or institutes with inadequate or insuitable radium stocks should use ^{137}Cs sources instead. ^{137}Cs rods for intracavitary application can be purchased in five different strengths (from 13 to 65 mc) and ^{137}Cs needles for interstitial therapy are also available in standardized dimensions and activity. The initial cost of these sources is much less than that of comparable radium sources so that a larger stock can be maintained to suit individual needs. There is no possibility of gas leakage and, even if leakage of solid material occurred, the isotope is much less toxic than radium. On the other hand, its half-life is short compared with that of radium so that sources have to be replaced perhaps every 10 years.

In interstitial therapy it is sometimes necessary to adjust the dimensions and the shape of the source to

the particular anatomical characteristics of the tumour to be irradiated. In such cases, it is preferable to use radioactive wires such as those made of ^{60}Co , ^{182}Ta or ^{192}Ir . Figure 6 shows a typical arrangement of tantalum wire for therapy of a large cancerous area in the region of the kidney. Of the three isotopes mentioned, ^{192}Ir is probably the isotope of choice. The material can be drawn to tough wire with a high degree of flexibility and its lower gamma energy reduces protection problems.

Decisive progress in application techniques has been made by the introduction of so-called after-loading methods. Their principle is to divide the placing of the radioactive sources into two stages: (a) the insertion of unloaded tubes and applicators, and (b) their after-loading with radioactive sources (Fig. 7). Thus

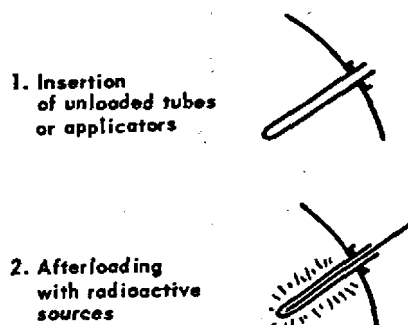


Figure 7. Principle of after-loading techniques for interstitial and intracavitary radioisotope therapy [4]

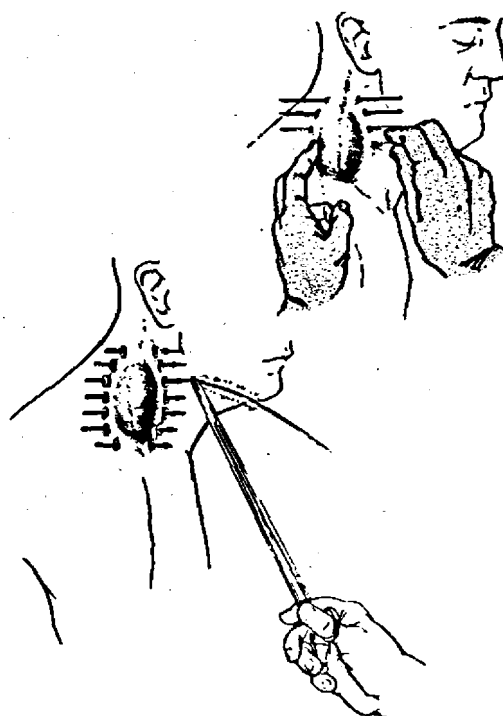


Figure 8. Example of the use of after-loading in interstitial radiotherapy. Nylon tubes are first inserted in and around the tumour. They are subsequently loaded with ^{192}Ir -seeds in nylon ribbons [4]

time, unlimited by safety considerations, is available to insert nylon or plastic tubes or hollow stainless steel needles into the tumour in an optimal pattern with a maximum of accuracy. At any time thereafter and, if necessary, even at another hospital, radioactive sources of exactly the right number, strength and shape can be loaded (and unloaded) in a few minutes, thereby reducing the radiation exposure of personnel to a minimum. Figure 8 shows one example of the technique as used in the treatment of a tumour of the neck. A similar procedure is used in the intracavitary treatment of, for example, cancer of the uterus. This technique combined with the use of ^{137}Cs instead of radium would be particularly effective in some developing countries where the incidence of cancer of the *cervix uteri* is approaching 30% of all cancers seen and the five-year cure rates are likely to be higher than 50% for the early stages.

For permanent interstitial implants, radon seeds have been used for decades but ^{198}Au seeds are now preferred since their uniform size makes for easier implantation by mechanical devices. For irradiation of small volumes of tissue, such as the pituitary gland, pellets made of the pure beta-emitter ^{90}Y are advantageous because they can deliver a very high but localized dose. For surface therapy, the use of ^{60}Co instead of radium in the form of moulages is being advocated while beta-emitting surface applicators made of ^{32}P or ^{90}Sr have gained an established place in the treatment of very superficial lesions such as those affecting the eye.

Radioisotope teletherapy

The high energy of ^{60}Co gamma rays offers advantages over the medium (180-250 keV) energy of the radiation produced by conventional X-ray machines. ^{60}Co gamma rays penetrate deeper into tissue, they spare the skin and their differential absorption in bone is small. Consequently, deep-seated tumours can be treated more effectively and with less discomfort to the patient than with medium energy X-rays. ^{60}Co units are also more dependable. The rapid increase in the number of radiocobalt units in operation which was already apparent in 1958, has therefore continued in the past six years. Although the increase on the North American continent has not been quite as rapid as was predicted in 1958, a great number of units has been installed in Europe, Japan and the USSR and, more recently, also in the developing countries. The present situation in the world as a whole can be seen in Fig. 9 which was compiled from estimates made by the IAEA every second year.

The trend towards larger units that was recognizable in 1958 has also continued. Units embodying 5000 c of ^{60}Co are now in use, allowing longer treatment distances as well as shorter irradiation times with

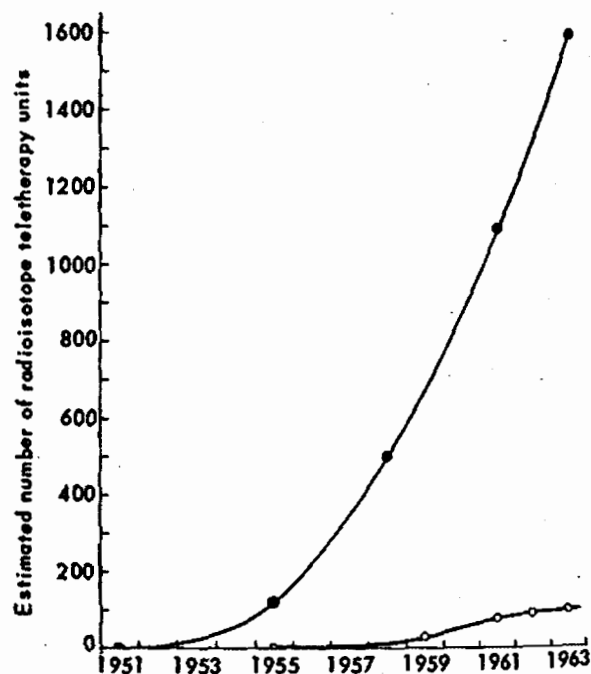


Figure 9. Estimated number of radioisotope teletherapy units in operation throughout the world (closed circles). Open circles indicate number of ^{137}Cs units only

a larger number of patients to be treated per day. Progress in producing ^{60}Co with higher specific activity has enabled this increase in source strength to be achieved without increasing the dimensions of the source, and new methods of producing ^{60}Co now under development promise to yield sources of still higher specific activity.

On the other hand, the increase in the number of ^{137}Cs teletherapy units has been much slower. In order to avoid too large a penumbra, the source should be small but, to keep the dimensions of a ^{137}Cs source within the range of the present ^{60}Co sources, the specific activity of the ^{137}Cs would need to be much higher than is at present available. Present ^{137}Cs source strength is therefore lower than one would wish. In any case, because of the difference in gamma energy, the two radiation sources are not really comparable. It might well be that ^{137}Cs units will ultimately replace conventional X-ray therapy machines in the treatment of those lesions which do not require the use of super-voltage radiation.

The increased use of high-energy radiation for teletherapy has accentuated the need for more accurate determinations of the absorbed dose delivered to the patient. While the physical characteristics of ^{60}Co units are now well understood and such data as isodose curves and depth dose tables are readily available, interest is now shifting towards achieving a better understanding of the effects of the individual anatomy of the patient on dose distribution. In calculations of the radiation dose, the patient is no longer considered simply as a rectangular tank of water but allowance

is beginning to be made for the shape and the composition of the body. Transverse tomography is increasingly used to determine the exact topography of the region of interest in its relation to surrounding tissue and measurements of transit doses and doses within the body cavities are made in order to account for differences in absorption of radiation when it passes through air spaces or such tissues as lung. Furthermore, beam-modifying devices are increasingly used to achieve the desired dose distribution. This type of work requires a great deal of mathematical calculation, particularly for complex radiation field arrangements, and it is therefore not surprising that digital computers are playing an increasing role in accurate treatment planning.

Reactors

At the Second Geneva Conference, considerable time was devoted to a discussion of the use of reactors for neutron-capture therapy. In theory, this type of therapy is particularly promising in the treatment of brain tumours. Of the nuclides that produce alpha radiation following neutron-capture, ^{10}B has the highest cross section. A large series of boron-containing compounds have been tested for their selective concentration in brain tumours and, following administration of such compounds, several series of patients were subjected to irradiation with thermal neutrons at the Brookhaven medical research reactor and the MIT research reactor. The clinical results obtained so far are rather disappointing and it is apparent that many years of further intensive research will be required before the use of reactors for radiotherapy will become a practical proposition.

REFERENCES

1. Harper, P. V., Lathrop, K. A., McCardle, R. J. and Andros, G., IAEA Symposium on Medical Radioisotope Scanning, Athens, April 1964.
2. Bollini, V., and Tori, G., *ibid.*
3. Ellis, F., Working paper prepared for an IAEA Panel on Physical Aspects of Interstitial, Intracavitary and Surface Therapy using Sealed Radioisotopes, Vienna, November 1963.
4. Henschke, U. K., Hilaris, B. S., and Mahan, G. D., *Amer. J. Roentgenol.*, **90**, 386 (1963).

BIBLIOGRAPHY

The following is a list (incomplete) of books and review articles which have appeared since 1958 and deal in more detail than the present survey with some or all aspects of the use of isotopes and radiation sources in medicine. A list of journals specializing in nuclear medicine is also given.

Books

Amalric, R., and Vigne, J. P., *Le Cesium 137 en Téléthérapie*, Gauthier-Villars, Paris (1962).

Bastai, P., Antognetti, L., Dogliotti, G. C., Monasterio, G., and Bellion, B. (eds.), *Diagnostica e Terapia con i Radioisotopi*, Minerva Medica, Torino (1962).

Becker, J., and Schubert, G. (eds.), *Die Supervolt-Therapie: Grundlagen, Methoden und Ergebnisse der Therapie mit energiereichen Partikeln und ultraharten Strahlen*, G. Thieme, Stuttgart (1961).

Blahd, W. H., Bauer, F. K., and Cassen, B., *The Practice of Nuclear Medicine*, C. C. Thomas, Springfield, Ill. (1958).

Bowen, H. J. M., and Gibbons, D., *Radioactivation Analysis*, Clarendon Press, Oxford (1963).

Buzzi, G., Cortisone, C., Franco, L., and Miano, L., *Dosimetria Gamma in Teleisototerapia*, Ed. Minerva Medica, Torino (1962).

Dienstbier, Z., and Andrysek, O., *Základy Nukleární Medicíny, Státní Zdravotnické Nakladatelství*, Prague (1963).

Farr, L. E., Knipping, H. W., and Lewis, W. H. (eds.), *Nuklearmedizin in der Klinik*, Symp. Proc., Westdeutscher Verlag, Köln (1961).

Fateeva, M. N., *Radioaktivnye Isotopy v Diagnostike Serdečno-soskdistykh Zabolevanij*, Medgiz, Moskva (1963).

Fellinger, K., and Höfer, R. (eds.), *Radioaktive Isotope in Klinik und Forschung*, Symp. Proc., Vol. IV, V and VI, Urban & Schwarzenberg, Munich, Berlin (1960, 1963 and 1964).

Fields, Th., and Seed, L., *Clinical Use of Radioisotopes: A Manual of Technique*, Second Ed., Year Book Publ., Chicago, Ill. (1961).

Friedberg, C. K., and Silver, S. (eds.), *Radioisotopes in Cardiovascular Disease*, Grune & Stratton, New York (1962).

Glasser, O., Quimby, E. H., Taylor, L. S., Weatherwax, J. L., and Morgan, R. H., *Physical Foundations of Radiology*, Third Ed., P. B. Hoeber, New York (1961).

Grodzenskij, D. E., *Izotopy v Medicine*, Gosatomizdat, Moskva (1962).

Heim, W., Schumacher, W., and Frost, D., *Radioaktive Isotope in der Chirurgie*, W. de Gruyter, Berlin (1961).

IAEA, *Whole-Body Counting*, Symp. Proc., IAEA, Vienna (1962).

IAEA, *Medical Uses of Ca-47*, Technical Reports, IAEA, Vienna (1962 and 1964).

IAEA, *Production and Use of Short-Lived Radioisotopes from Reactors*, Symp. Proc., IAEA, Vienna (1963).

IAEA/WHO, *Medical Radioisotope Scanning*, Symp. Proc., IAEA, Vienna (1959 and 1964).

IAEA/WHO, *Use of Radioisotopes and Supervoltage Radiation in Radioteletherapy*, Techn. Rep., IAEA, Vienna (1960).

IAEA/WHO, *Radioisotopes in Tropical Medicine*, Symp. Proc., IAEA, Vienna (1961).

ICRU, Reports 10a-10f, NBS Handbooks 84-88, U.S. Dept. of Commerce, Washington D.C. (1963 and 1964).

Johns, H. E., *The Physics of Radiology*, Second Ed. C. C. Thomas, Springfield, Ill. (1961).

Keiderling, W., and Hoffmann, G. (eds.), *Radio-Isotope in der Hämatologie*, Symp. Proc., Schattauer, Stuttgart (1962).

King, E. R., and Mitchell, T. G., *A Manual for Nuclear Medicine*, C. C. Thomas, Springfield, Ill. (1961).

Kniseley, R. M., Andrews, G. A., and Harris, C. C. (eds.), *Progress in Medical Radioisotope Scanning*, Symp. Proc., USAEC, report TID No. 7673 (1964).

- Lacroix, P., and Budy, A. M. (eds.) *Radioisotopes and Bone*, Symp. Proc., Blackwell, Oxford (1962).
- Lajtha, L.G., *The Use of Isotopes in Haematology*, Blackwell, Oxford (1961).
- Meneely, G. R. (ed.), *Radioactivity in Man*, Symp. Proc., C. C. Thomas, Springfield, Ill. (1961).
- Micelli, R., Corinaldesi, A., and Rimondy, C., *Il Cesio 137 in Radioterapia*, Ed. Minerva Medica, Torino (1963).
- Monasterio, G., and Donato, L., *I Radioisotopi nell'Indagine Medica*, Ed. Minerva Medica, Torino (1960).
- Owen, C. A. Jr., *Diagnostic Radioisotopes*, C. C. Thomas, Springfield, Ill. (1959).
- Pourquier, H., *La Télécobaltthérapie en Cancérologie*, Masson, Paris (1962).
- Quimby, E. H., and Feitelberg, S., *Radioactive Isotopes in Medicine and Biology*, Volume I, *Basic Physics and Instrumentation*, Second Ed. Lea & Febiger, Philadelphia (1963).
- Roncoroni, L., *Telecobaltoterapie dei Tumori Maligni*, Ed. Casa Ambrosiana, Milano (1959).
- Schwiegk, H., and Turba, F. (eds.), *Künstliche radioaktive Isotope in Physiologie, Diagnostik und Therapie*, Second Ed., Springer, Berlin, Göttingen, Heidelberg (1961).
- Selman, J., *The Basic Physics of Radiation Therapy*, C. C. Thomas, Springfield, Ill. (1960).
- Silver, S., *Radioactive Isotopes in Medicine and Biology*, Vol. II, *Medicine*. Second Ed., Lea & Febiger, Philadelphia (1962).
- Tubiana, M., Dutreix, J., Dutrix, A., and Jockey, P., *Bases Physiques de la Radiothérapie et de la Radiologie*, Masson, Paris (1963).
- Ueda, H. (ed.) *Japanese Nuclear Medicine*, Symp. Proc., Vols. 1 and 2, The Japan Radioisotope Association, Tokyo (1962 and 1963).
- Vanotti, A. (ed.) *Szintigraphie und Radiokardiographie*, Symp. Proc., Schwabe, Basel (1963).
- Veall, N., and Vetter, H., *Radioisotope Techniques in Clinical Research and Diagnosis*, Butterworths, London (1958).
- Visscher, M. de, and Beckers, C., *Les Isotopes Radioactifs en Médecine*, Gauthier-Villars, Paris (1961).
- Winter, C. C., *Radioisotope Renography*, Williams & Wilkins Comp., Baltimore (1963).
- Zum Winkel, K., *Nierendiagnostik mit Radioisotopen*, G. Thieme, Stuttgart (1964).
- Brownell, G. L., and Ellett, W. H., *Medical use of reactors*, *Phys. Med. Biol.*, 8, 125 (1962).
- Farmer, F. T., *Supervoltage therapy: a review of present-day facilities and techniques*, *Phys. Med. Biol.*, 6, 505 (1962).
- Fateeva, M. N., *Nekotorye dannye o primeneni novykh radioaktivnykh isotopov v klinicheskikh diagnosticheskikh issledovaniakh*, *Med. Radiol. (Moscow)*, 8, (7) 3 (1963).
- Fauvert, R., *Moderne Verfahren der Stoffwechselfunktionsprüfung mittels Radioisotopen*, *Münchn. Med. Wschr.*, 104, 8 (1962).
- Halman, K. E., *Radioactive isotopes in radiotherapy*, *Clin. Radiol. (Edinburgh)*, 12, 232, 311 (1961).
- Lawrence, J. H., and Parker, H. G., *Use of radioisotopes in hematology*, *J. Amer. Med. Ass.*, 184, 136 (1963).
- Loh, W.-P., *Present status of radioisotopes in clinical medicine*, *J. Indiana Med. Ass.*, 54, 618 (1961).
- Marinoni, U., *Il trattamento delle emopatie con radioisotopi*, *Minerva Nucleare*, 6, 101 (1962).
- Mehl, H. G., *Grundlagen und Ergebnisse der in-vivo-Messung radioaktiver Substanzen im menschlichen Organismus*, *Medizinische Grundlagenforschung* (ed. K. Fr. Bauer), Vol. III, p. 97. Thieme, Stuttgart (1960).
- Neufeld, A. H., *Recent advances in the uses of radioactive isotopes in diagnosis*, *Canad. Med. Ass. J.*, 83, 807 (1960).
- Deff, K., *Die Anwendung von radioaktiven Isotopen in der Hämatologie*, *Internist (Berlin)*, 3, 104 (1962).
- Pavoni, P., *Le applicazioni dei radioisotopi nella diagnostica*, *Policlinico, Sez. Prat.*, 68, 1461 (1961).
- Pierquin, B., *Curiothérapie interstitielle par radio-isotopes*, *Table ronde. Ann. radiol.*, 5, 395 (1962).
- Planiol, T., *Radioisotopes in neurology*, *Wld. Neurol.*, 2, 153 (1961).
- Rapkin, E., *Liquid scintillation counting 1957-1963. A review*, *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes*, 15, 69 (1964).
- Reilly, W. A., *Advances in application of radioisotopes in pediatrics*, *Amer. J. Roentgenol.*, 85, 748 (1961).
- Ruffin, J. M., and Tylor, M. P., *Radioisotopes as diagnostic aids in gastroenterology: an evaluation*, *J. Amer. Med. Ass.*, 175, 685 (1961).
- Shalek, R. J., *Computers in docimetry* (Editorial), *Amer. J. Roentgenol.*, 90, 1088 (1963).
- Somogyi, G., *A keringés vizsgálata radioaktiv isotópokkal*, *Orvosképzés*, 1, 24 (1963).
- Stohlmán, F., Jr., *The use Fe-59 and Cr-51 for estimating red cell production: An interpretative review*, *Blood*, 18, 236 (1961).
- Tsien, K. C., *World survey of radioisotope teletherapy units*, *Amer. J. Roentgenol.*, 87, 593 (1962).
- Tubiana, M., *Nouvelles méthodes de traitement en radiothérapie*, *Ann. Radiol.*, 6, 221 (1963).
- Wilson, G. M., *Radioactive isotopes in diagnosis*, *Proc. Roy. Soc. Med.*, 54, 789 (1961).

Review articles

- Ariel, I. M., *The use of radioactive isotopes in the treatment of lymphomas*, *Amer. J. Roentgenol.*, 90, 311 (1963).
- Bedoya, J., Domke, G., Ducach, G., and Mena, I., *Aplicaciones medicas de las isotopes radioactivos*, *Rev. Méd. Chile*, 90, 127 (1962).
- Belcher, E. H., *New radioactive tracer methods in clinical medicine*, in: *The Scientific Basis of Medicine*, p. 250, Athlone Press, London (1964).
- Berrocal, J. O., *Aplicaciones de los isotopos radioactivos al diagnóstico de las afecciones del aparato digestivo*, *Rev. Clin. Esp.*, 83, 87 (1961).
- Bloedorn, F. G., Cuccia, C. A., and Mercado, R., *The place of interstitial gamma-ray emitters in radiation therapy. Indications — technique — examples*, *Amer. J. Roentgenol.*, 85, 407 (1961).

Journals specializing in nuclear medicine

- Acta Isotopica (quarterly), Cedam, Padova.
- Journal of Nuclear Medicine (monthly), Turiel, Chicago.
- Minerva Nucleare (bi-monthly), Ed. Minerva Medica, Torino.
- Nuclear-Medizin (quarterly), Schattauer, Stuttgart.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/880 AIEA/OMS

Progrès accomplis dans l'emploi des radioisotopes et des sources de rayonnements en médecinepar E. H. Belcher *et al.*

Les auteurs exposent les faits nouveaux survenus dans le domaine de l'emploi des radioisotopes et des sources de rayonnements pour le diagnostic et le traitement depuis 1958, année où ce sujet a fait l'objet d'une étude générale à la deuxième Conférence de Genève. Ils font état de l'apparition sur le marché de nouveaux radioisotopes et composés marqués, indiquent les perfectionnements apportés aux appareils et signalent les derniers résultats de l'application de ces produits et appareils en vue de résoudre des problèmes particuliers de recherche diagnostique et clinique. Ils examinent enfin les progrès accomplis dans l'emploi thérapeutique des radioisotopes et du matériel de téléthérapie utilisant des radioisotopes comme source de rayonnements.

A/880 Магатэ, ВОЗ

Успехи в области использования изотопов и источников излучений в медицине

Е. Г. Белчер

Рассматриваются успехи в области использования радиоактивных изотопов и источников

излучений для диагностики и терапии, достигнутые после Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии. Сообщается о последних достижениях в производстве изотопов и меченых соединений, в разработке приборов, а также последние результаты их использования для решения конкретных проблем диагностических и клинических исследований. Рассматриваются успехи использования радиоактивных изотопов и радиотелетерапевтического оборудования.

A/880 OIEA/OMS

Adelantos en el empleo de isótopos y fuentes de radiaciones en medicinapor E. H. Belcher *et al.*

La memoria pasa revista a los adelantos en el empleo de isótopos y fuentes de radiaciones en el diagnóstico y en la terapia registrados desde 1958, año en que se examinó el asunto en la Segunda Conferencia de Ginebra. Se informa sobre los nuevos isótopos y compuestos marcados de que se dispone en la actualidad, sobre los perfeccionamientos introducidos en los instrumentos y sobre los recientes resultados de su aplicación a determinados problemas de diagnóstico y de investigación clínica. Se examinan los adelantos en las aplicaciones de los radioisótopos y del equipo radioteleterapéutico que emplea radioisótopos como fuente de radiaciones.

Application of isotopes and radiation sources in the life sciences

Chairman: L. Cintra do Prado (Brazil)

Paper P/874

DISCUSSION

R. E. KAVETSKY (Ukrainian SSR): We can fully agree with Professor Chagas that the use of labelled compounds has enabled us to study the mechanism of the pharmacological action of various substances. However, this action is not always related to the primary accumulation of the agent in the reacting tissue, as he himself observed in his very interesting experiments on curarization. For example, in our research on the injection of rats with labelled 7,12-dimethylbenzanthracene, we did not observe primary accumulation of a cancerogenic agent in the mammary gland and milk of the animals, yet cancer of the mammary gland developed in 70% of the rats. In this case, therefore, localization of the process was due not to a primary accumulation of the agent but, as proved by special experiments, to the genetic predisposition of the cells (strain of the animals) and the functional condition of the organ (influence of pituitary and ovarian hormones). At the same time, our investigations confirm the basic conclusion of Professor Chagas as to the value of the labelled compound method in biological research.

C. CHAGAS FILHO (Brazil): One of the surprising pharmacological facts revealed by the use of isotopes is, as Mr. Kavetsky points out, that the distribution of a labelled compound in the body bears very little relation to its biological or pharmacological action. This was originally demonstrated for cardiac glycoside. Even for radioactive curare, the agent with which I am working, the drug can be found in situations where it has no part to play. For example, a good deal of curare is to be found in the aqueous humour, where it is perfectly well known that there is no synapse. All these findings, and there are a large number of them, show once more that great caution must be exercised in drawing conclusions.

M. ABDEL-WAHAB (United Arab Republic): The author refers to the use of labelled CO_2 in studies of the photosynthesis process. Are his conclusions based on the findings of Calvin, which were obtained in work on lower, monocellular plants, or does he know of any $^{14}\text{CO}_2$ studies done on higher plants? If he does, I should be interested in hearing about the mechanisms of respiration and photosynthesis involved.

C. CHAGAS FILHO (Brazil): I myself have not done any work on photosynthesis. The material which I presented was based mainly on the work of Calvin and the types of plants he studied. I cited it as an example, not for the purpose of drawing any general conclusions.

Paper P/876 (presented by M. Fried)

DISCUSSION

M. A. ARSENYEVA (USSR): I should like to supplement this interesting report with a very brief account of the research which is being done along these lines in the Soviet Union.

Various research centres in the Soviet Union are now doing a great deal of work on plant breeding with the help of various types of radiation (gamma-rays, fast neutrons) and of certain chemical compounds. Some of this work is concerned with a study of the sensitivity of plants to various types of radiation. It has been proved, for example, that certain varieties of peas are outstandingly sensitive to gamma-rays and yet are equally sensitive to fast neutrons.

Research is being conducted on the breeding of diploid and tetraploid forms of buckwheat for resistance to radiation and to certain chemical mutagenic agents.

Extensive studies are also being made of the efficacy and specificity of ionizing radiation and ethylenimine in inducing mutations in winter wheat. Ethylenimine has proved to have the greatest mutagenic effects; next in order come fast neutrons and then gamma-rays, which are the least effective.

The range of mutations also varies according to exposure to different types of radiation. Many mutant forms are now undergoing strain testing. Some of the plants obtained have such valuable agricultural characteristics as resistance to a variety of diseases, sturdiness and high productivity (winter wheat). Mutations have also been obtained in low-growing tomatoes and a number of other important agricultural plants.

Radiation is also being used to stimulate the germination and ripening of various crops. Data obtained on radiation breeding confirm once again that radiation can be used successfully in the breeding of agricultural plants.

Successful work is being done on the use of radiation for prolonging the storage period of vegetables (potatoes, onions, etc.). This work has now assumed industrial significance. Large-scale research is being conducted on the sterilization of foodstuffs and their preservation by radiation. Great scientific progress has been made in research into the sterilization of certain male insects. Professor Astaurov's work on the silkworm is well known and has considerable industrial significance.

It is quite impossible for me in this statement to refer to all the research that is being done in the Soviet Union in these fields, but most of it has been reported in scientific publications.

F. MORGAN (United Kingdom): In connection with the section of this paper dealing with fish, it may be of interest to mention some experiments carried out by the United Kingdom Ministry of Agriculture and Fisheries in the Irish Sea. Before any discharges were made from Windscale, a programme of fish marking was carried out around the proposed site of discharge, and from the recaptures an estimate was made of the time that plaice, the most important species, normally spend each year near the outlet. The fish were kept in aquaria containing radioactivity for that length of time and in this way the annual uptake by plaice was obtained, and a limit was derived for the concentration permissible in the water.

One of the by-products of the marking experiment was that we were able to derive an exponential function describing the distribution of the plaice population in relation to distance from the point of discharge. This was possible because a feeding ground was found fairly near the outlet, and the comings and goings of the fish were reflected in this regularity. After the discharges had been running for some years, and the ecological system had reached equilibrium, further work could be done on the relationship between water and the plaice population. Seawater surveys over several years have enabled us to describe the standing concentrations of several radionuclides as functions of distance from the outlet and rate of discharge. By using such a function, instead of the one obtained from the original fluorescein dye release experiments, and combining it with (a) the probability relation applying to the position of a fish and its distance from the outlet, and (b) the laboratory-determined concentration factor between fish and water, we obtained fresh estimates of the mean concentration levels to be expected in plaice. These estimates were in agreement with those found by fishing the area and carrying out direct measurements on the fish.

Thus, one of the ancillary results of the Windscale monitoring programme has been to provide a check on the behaviour of a population of fish.

K. KAINDL (Austria): I should like to comment briefly on a few of the points mentioned in this very interesting paper.

First, as the authors point out, determination by neutron activation analysis of the trace element content of the whole cell or the tissue in living matter gives only a rough picture of the role played by these elements. On the other hand, the content of trace elements in nucleic acid shows that they are an important factor in the stability of the genetic material. In this way, it has been possible to demonstrate that the radiosensitivity of yeast, for example, is dependent on trace elements in the nucleic acid, which is an important consideration in regard to food irradiation.

There is also some evidence that the extent of infection depends on the ratio of the metal ion content of the virus to that of the host, a fact which might have certain implications for agriculture.

It is our opinion that the trace element content of nucleic acids and their fractions is of major importance in the relationship between living matter and such environmental factors as disease and irradiation. To some extent it is also responsible for the information content of the genetic material.

As far as food irradiation is concerned, I would just like to mention that the results of our own work show that the radiopasteurization of fruit juice is apparently a very promising approach.

The determination of insect distribution, which is a prerequisite for insect control, can easily be carried out by labelling the insects with rare elements (e.g. europium) (0.1-1.0 ppm) and carrying out neutron activation analysis.

As regards the stimulation of certain plant processes, mentioned by Mrs. Arsenyeva, I should like to draw attention to the work done by Süß in the Federal Republic of Germany. He has demonstrated the possibility of raising crop yields by the irradiation of seeds.

T. A. MARULANDA (Colombia): Is there any country where irradiated food is sold at present?

M. FRIED (IAEA): It is my understanding that irradiated potatoes go into the Canadian commercial market and that the same is true in the Soviet Union. I do not know of any country where irradiated bacon and wheat are on the market as yet, but I have no doubt that they will be very soon.

A. VAN DEN HENDE (Belgium): Plant absorption of nutrients via the roots is sometimes impeded by factors dependent upon the nature of the soil: fixation (blocking), difficulties of absorption (insolubility), etc. In Belgium, the problem has frequently been solved by spraying the leaves with solutions of the elements that are lacking. Tests with radio-isotopes of phosphorus, sodium, manganese and iron show that labelled salts are absorbed very rapidly by the leaves. Thanks to this, a deficiency can be corrected very

rapidly, during the process of growth, in cases where it would not have been possible to prevent a decrease in yield by relying solely on nutrition through the soil.

M. FRIED (IAEA): The phenomenon to which you refer is commonly observed in many, but certainly not all, nutrient elements. One of the questions that arise is whether enough of the ion can be obtained for nutrition. A further question is whether the technique is economic.

A. SZILVINYI (Austria): The radiosensitivity of yeast has a bearing on a number of subjects. In contract work for the International Atomic Energy Agency, we have found that the most important factor in the radiosensitivity of various yeasts, and probably of bacteria as well, is the particular stage of the cell life cycle at which they are irradiated. In synchronized cultures, there is distinct evidence that the most sensitive phase is the one before the synthesis of DNA.

A. N. SEVCHENKO (Byelorussian SSR): One of the major factors in life growth is photosynthesis. Yet the luminous radiation which is involved in this process and which promotes plant growth is identical in nature with gamma radiation, which inhibits or destroys life processes. Both types of radiation are electromagnetic waves and differ only in energy, that of luminous radiation being lower. Could Mr. Fried comment on these two types of radiation in relation to life processes?

M. FRIED (IAEA): The life factors are very complicated and in the evolutionary development certain radiations are obviously absorbed by the pigments that are present in the plant. With these specialized wave-lengths that are absorbed by the pigment the plant continues with its useful process of photosynthesis. X-irradiation and gamma-irradiation have a large amount of energy and if there is no mechanism for taking this energy away, it is likely to be destructive to the plant tissues at high levels.

A. R. GOPAL-AYENGAR (India): I should like to make two brief comments and to ask one question to Dr. Fried. The first comment concerns various economically advantageous mutations that we have succeeded in inducing in the Atomic Energy Establishment at Trombay, India. More particularly, the work relates to the quantitative measurement of higher-yielding varieties of mutations of rice and peanuts. What I would like to stress is that it is definitely possible to produce higher-yielding varieties of rice, with a yield up to 55 per cent higher than the original control, and a giant variety of peanut, double the size of the original from which we started.

The second comment concerns the possibilities of irradiating and pasteurizing food and of extending the shelf life of food products. It is now possible, by a combination of heat treatment and lower radiation levels, to minimize toxic effects and preserve organoleptic properties.

The question that I should like to ask Dr. Fried is as follows: a fairly large number of toxicological studies have been made on animals with irradiated food, but have any genetic experiments been carried out over successive generations in order to eliminate or rule out the possibility of deleterious effects?

M. FRIED (IAEA): Dr. Gopal-Ayengar has asked a very comprehensive question. The problem of the wholesomeness of irradiated food has been the subject of a great deal of discussion. It was also the theme of a recent joint meeting convened by the Food and Agriculture Organization of the United Nations, the World Health Organization and the International Atomic Energy Agency, where an attempt was made to isolate the factors that should be considered in order to determine wholesomeness.* Results have been recorded for over 100 000 animals, and various generations of these animals have definitely been followed. From the results obtained over a period of about six years, it was concluded that feeding irradiated food caused no abnormality in any generation. I have not heard of anyone getting contrary results. Dr. Gopal-Ayengar is fully acquainted with the literature and I do not think I can add anything to it.

Paper P/880 (presented by H. Vetter)

DISCUSSION

G. A. ZEDGENIDZE (USSR): I should like to supplement Dr. Vetter's very informative report with a few additional data.

The use of tracers and radiation sources in medicine and biology in the USSR has expanded considerably since the Second Geneva Conference. The guiding principle in the development of a network of medical facilities and scientific research institutions using atomic energy is the establishment, at oncological clinics, large hospitals and scientific research institutes, of radiological centres fitted out with modern radiological equipment. As a result, there has been an appreciable increase in the number of Soviet medical establishments which use radioactive preparations on a regular basis. Whereas there were 213 such establishments in 1957, over 500 now use radioactive preparations and radiation.

The use of various labelled compounds has made it possible to obtain certain new data in biological and medical research, in studies on the functional condition of the cardiovascular system, the liver, the gastrointestinal tract, the kidneys and the endocrine glands, and also in the recognition of tumours of various organs and systems.

Improved and more powerful installations for

* FAO/WHO/IAEA Expert Committee on the Technical Basis for Legislation on the Wholesomeness and Microbiological Safety of Irradiated Foods, Rome, 21-28 April 1964.

stationary, rotational and convergent irradiation with cobalt-60 sources and such high energy radiation sources as betatrons and linear accelerators have been introduced in the USSR on the basis of new techniques and have considerably improved the results of radiation treatment of tumours in different parts of the body.

The use of different types of radioactive needles and preparations and of colloid solutions of radioactive gold, silver, phosphorus and other elements has contributed significantly to the improvement of radiation treatment.

P. J. DUNCTON (United Kingdom): My question relates to radioisotope teletherapy. There have been suggestions that the effectiveness of cobalt-60 units in the treatment of deep-seated tumours would be enhanced by increasing the supply of oxygen to the patient during treatment by using hyperbaric chambers or otherwise. Have the authors any experience of this proposal?

H. VETTER (IAEA): The authors have no personal experience of this proposal but such work is being conducted, primarily in the United Kingdom, and also in the United States. It is still very much in the experimental stage, although there is a sound radiobiological basis for the method. The preliminary results are encouraging, but I think that we shall have to wait perhaps another five years before a solid estimate can be made of the effects of this particular form of therapy.

R. OGBORN (United States of America): I should like to ask Dr. Vetter to comment on certain labelled compounds which are not referred to in his paper. I have in mind, for example, the recent work of S. Benson and R. Yalow on insulin-binding antibodies, which has opened up a new field of diagnosis and prognosis in hormone disease states. Mention should also be made of radiopharmaceuticals, now undergoing field trials in human subjects, which localize in tumour tissue in concentrations of up to 100:1 as compared with normal surrounding tissue. As examples I would refer to the work of S. J. Mitchell in Cambridge, England, and that of C. Eskelson and J. MacLeary in the United States, involving the use of radioactive Synkavit and radioactive tetracycline.

H. VETTER (IAEA): I agree that labelled insulin is an extremely useful compound that is now employed

in many medical research institutions for estimating the concentrations of insulin in body fluids. Mitchell's work on labelled vitamin K is at present perhaps in a somewhat earlier stage of its development, but there is reason to hope that substantial radiation doses could be delivered to certain types of human cancer in the near future.

G. MILHAUD (France): I should like to make three brief comments on the very interesting report of Dr. Vetter and associates. First, as regards equipment, the introduction of low-background counters for use with soft beta-emitting isotopes (other than tritium) represents a considerable advance and permits a greater reduction in the dose administered than when liquid scintillation counters are used. Secondly, the very difficult diagnosis of hyperthyroidism has become a relatively easy matter, thanks to the use of calcium-45. With this procedure, unnecessary surgery can be avoided. Lastly, it is very probable that increasing use will be made of ^{14}C -labelled compounds, which can be used for diagnosing hereditary metabolic diseases (*galactosuria*, hereditary intolerance of fructose, maple syrup disease) by incubating blood or a fragment of an organ outside the body.

Z. DIENSTBIER (Czechoslovakia): May I ask the authors what they understand by the term "nuclear medicine"?

H. VETTER (IAEA): The use of this term is a matter of definition and every worker in this field is likely to have his own definition. There are people, for example, who feel that nuclear medicine means the medicine of nuclear warfare. This is a definition with which I personally would not agree. I would understand nuclear medicine to mean the use of radioisotopes and radiation sources in medicine. Even within this area there can still be some dispute, for example, as to whether the use of radiocobalt sources in teletherapy should be properly classified as nuclear medicine or as radiology. Some consider that the use of cobalt units has simply replaced X-ray therapy and that it is therefore merely a new tool for radiology; others feel that since this method involves the use of atomic energy in medicine, it is only proper to charge it to nuclear medicine, so to speak. This is simply a matter of interpretation and I am sure it will take another ten or fifteen years before these jurisdictional problems have been clarified.

Compte rendu de la séance G

Applications des radioéléments et des sources de rayonnements en biologie et dans les sciences connexes

Président: L. Cintra do Prado (Brésil)

Mémoire P/874

DISCUSSION

R. E. KAVETSKY (RSS d'Ukraine): Nous sommes entièrement d'accord avec ce que dit le professeur Chagas dans son mémoire: l'utilisation de composés marqués a permis d'étudier l'action pharmacologique de diverses substances. Mais cette action n'est pas toujours liée à l'accumulation initiale de l'agent dans le tissu qui réagit, comme il l'a observé lui-même dans ses très intéressantes expériences sur la curarisation. Par exemple, au cours de notre étude sur l'injection à des rats de diméthylbenzantracène-7,12 marqué, nous n'avons pas observé d'accumulation primaire d'un agent cancérigène dans la glande mammaire et le lait des animaux, mais 70% des rats ont présenté des cancers de la glande mammaire. Dans ce cas, la localisation du processus n'était donc pas due à une accumulation primaire de l'agent mais, comme des expériences spéciales l'ont prouvé, à une prédisposition génétique des cellules (souche d'animaux) et à la condition fonctionnelle de l'organe (influence des hormones pituitaires et ovariennes). En même temps, nos recherches confirment les conclusions générales du professeur Chagas sur l'intérêt de l'utilisation des composés marqués en recherche biologique.

C. CHAGAS FILHO (Brésil): Un fait surprenant en pharmacologie, révélé par l'utilisation des isotopes, est que, comme M. Kavetsky l'a signalé, la distribution d'un composé marqué dans le corps n'est que très peu liée à son action biologique ou pharmacologique. Ceci a été démontré pour la première fois dans le cas de glucosides (action cardiotonique). Même dans le cas du curare radioactif, l'agent avec lequel je travaille, on trouve cette drogue dans des situations où elle n'a aucun rôle à jouer. Par exemple, on trouve beaucoup de curare dans l'humeur aqueuse, où on sait parfaitement qu'il n'y a pas de synapse. Tous ces résultats, et il y a une masse de résultats expérimentaux, confirment qu'il faut être très prudent dans les conclusions.

M. F. ABDEL-WAHAB (République arabe unie): L'auteur a parlé de l'utilisation de CO_2 marqué dans l'étude de la photosynthèse. Ses conclusions sont-elles basées sur les résultats de Calvin, qui a travaillé sur des plantes monocellulaires inférieures,

ou bien est-il au courant d'études au $^{14}CO_2$ sur des plantes supérieures? Si oui, j'aimerais entendre quelques détails sur les mécanismes de respiration et de photosynthèse.

C. CHAGAS FILHO (Brésil): Je n'ai pas travaillé personnellement sur la photosynthèse. Les résultats que j'ai présentés sont principalement basés sur les travaux de Calvin et les types de plantes qu'il a étudiés. J'ai cité ces résultats à titre d'exemple, sans vouloir en tirer de conclusions générales.

Mémoire P/876 (présenté par M. Fried)

DISCUSSION

M. A. ARSENYEVA (URSS): J'aimerais compléter cet intéressant rapport par un très bref exposé des recherches entreprises dans ce domaine en Union soviétique.

Divers centres de recherche d'Union soviétique étudient la croissance des plantes à l'aide de divers types de rayonnements (gamma, neutrons rapides) et de certains composés chimiques. Une partie de ce travail est consacrée à l'étude de la sensibilité des plantes aux divers rayonnements. On a prouvé, par exemple, que certaines variétés de pois sont extrêmement sensibles aux gammas tout en étant également sensibles aux neutrons rapides.

On étudie des formes diploïdes et tétraploïdes de sarrasin pour leur résistance aux rayonnements et à certains agents chimiques mutagènes.

De nombreuses études sont aussi consacrées à l'efficacité et à la spécificité des rayonnements ionisants et de l'éthylènimine en ce qui concerne l'induction de mutations dans le blé d'hiver. C'est l'éthylènimine qui donne les effets mutagènes les plus grands; puis viennent, dans l'ordre, les neutrons rapides et ensuite seulement les gammas, qui sont les moins efficaces.

Le domaine des mutations varie aussi avec l'exposition aux divers types de radiations. On étudie actuellement les souches de nombreuses formes de mutants. Certaines des plantes obtenues ont des caractéristiques agricoles précieuses, comme la résistances à diverses maladies, la robustesse et une productivité élevée (blé d'hiver). On a également obtenu

des mutations dans le cas de la tomate de faible hauteur et de nombreuses autres plantes agricoles importantes.

On utilise également les rayonnements pour stimuler la germination et la maturation de diverses plantes. Les résultats obtenus en cultures sous irradiation confirment les succès que l'on peut obtenir en utilisant les rayonnements dans la culture des plantes agricoles.

On étudie avec succès l'utilisation de l'irradiation en vue de prolonger le temps de stockage des légumes (pommes de terre, oignons, etc.). Ce travail a maintenant une importance industrielle. La stérilisation des produits alimentaires et leur conservation par l'irradiation sont l'objet de recherches importantes. Les recherches sur la stérilisation de certains insectes mâles ont fait de grands progrès scientifiques. Les travaux du professeur Astaurov sur le ver à soie sont bien connus et présentent une importance industrielle considérable.

Il m'est impossible dans ce commentaire d'indiquer toutes les études conduites en Union soviétique dans ces domaines, mais la plupart ont été décrites dans des publications scientifiques.

F. MORGAN (Royaume-Uni): A propos de la partie de ce mémoire relative aux poissons, il peut être intéressant de mentionner certaines expériences faites en mer d'Irlande par le Ministère de l'agriculture et des pêcheries du Royaume-Uni. Avant tout rejet de Windscale, on a entrepris un travail de marquage du poisson au voisinage du site envisagé pour les rejets et les poissons capturés à nouveau ont permis d'estimer le temps que le carrelet, espèce la plus importante, passe normalement chaque année au voisinage de la sortie des déchets. Les poissons ont été conservés pendant cette durée dans des aquariums contenant de la radioactivité et on a ainsi obtenu l'absorption annuelle par le carrelet, d'où on a déduit la limite de concentration admissible dans l'eau.

Un résultat annexe de l'expérience de marquage a été de permettre l'établissement d'une fonction exponentielle qui décrit la distribution de la population de carrelets en fonction de la distance au point de rejet. Ceci a été possible parce que l'on a trouvé une zone où les poissons venaient s'alimenter au voisinage du point de rejet, expliquant la régularité des allées et venues des poissons. Après quelques années de rejet, le système écologique ayant atteint son équilibre, on a pu poursuivre l'étude de la relation entre l'eau et la population de carrelets. L'étude de l'eau de mer pendant plusieurs années a permis de décrire les concentrations stationnaires de plusieurs radionucléides en fonction de la distance au point de rejet et du taux de rejet. En utilisant cette fonction et en la combinant a) à la relation de probabilité définissant la position d'un poisson et sa distance du point de rejet et b) au facteur de concentration

entre le poisson et l'eau, déterminé en laboratoire, nous avons obtenu de nouvelles valeurs des niveaux de concentration que l'on devait trouver dans le carrelet. Ces estimations étaient en bon accord avec les valeurs obtenues en faisant des mesures directes sur le poisson pêché dans cette zone.

Ainsi, l'un des résultats annexes du programme de contrôle de Windscale a été de fournir une vérification du comportement d'une population de poissons.

K. KAINDL (Autriche): Je voudrais faire quelques brefs commentaires sur certains points de ce très intéressant mémoire.

En premier lieu, comme les auteurs l'ont signalé, la détermination au moyen de l'analyse par activation aux neutrons de la teneur en éléments-traces de la cellule complète ou de tissus vivants ne donne qu'une vague idée du rôle joué par ces éléments. D'autre part, la teneur en éléments-traces des acides nucléiques montre que ces éléments sont un facteur important de la stabilité du matériel génétique. On a ainsi pu démontrer que la radiosensibilité de la levure par exemple dépend des éléments-traces de l'acide nucléique, et c'est un facteur important en ce qui concerne l'irradiation des aliments.

Quelques résultats indiquent aussi que l'importance de l'infection dépend du rapport entre la teneur en ion métal du virus et celle de l'hôte, fait qui peut avoir certaines implications en agriculture.

Nous pensons que la teneur en traces des acides nucléiques et de leurs fractions a une importance considérable pour les rapports entre la matière vivante et certains facteurs d'environnement comme la maladie et l'irradiation. Dans une certaine mesure elle est aussi responsable du contenu en informations du matériel génétique.

En ce qui concerne l'irradiation des aliments, je voudrais mentionner que les résultats de nos études montrent que la radiopasteurisation des jus de fruits représente une méthode des plus prometteuse.

La détermination de la distribution des insectes, indispensable à la lutte contre les insectes, peut se faire facilement en marquant ceux-ci avec des éléments rares (par exemple l'euporium) (0,1-1,0 ppm) et en faisant l'analyse par activation aux neutrons.

En ce qui concerne la stimulation de certains processus végétaux, mentionnée par M^{me} Arsenyeva, je voudrais signaler les travaux de Süß en République fédérale d'Allemagne. Ils ont montré qu'il était possible d'augmenter les rendements des cultures par irradiation des graines.

T. A. MARULANDA (Colombie): Y a-t-il des pays où des aliments irradiés sont actuellement en vente?

M. FRIED (AIEA): Je crois savoir que des pommes de terre irradiées sont dans le commerce au Canada, et qu'il en est de même en Union soviétique. Je ne connais aucun pays où l'on vende actuellement du

bacon ou du blé irradiés, mais je suis certain que ces produits seront très prochainement en vente.

A. VAN DEN HENDE (Belgique): L'absorption par les plantes d'agents nutritifs par l'intermédiaire des racines est parfois gênée par des facteurs dépendant de la nature du sol: fixation (blockage), difficultés d'absorption (insolubilité), etc. En Belgique, le problème a souvent été résolu en pulvérisant sur les feuilles des solutions des éléments manquants. Les expériences avec des radioisotopes du phosphore, du sodium, du manganèse et du fer montrent que les sels marqués sont absorbés très rapidement par les feuilles. Grâce à ce fait, on peut corriger très rapidement une déficience donnée, pendant la période de croissance, dans des cas où l'on n'aurait pas pu éviter une baisse du rendement en comptant seulement sur la nutrition par le sol.

M. FRIED (AIEA): Le phénomène que vous signalez est observé de façon courante dans le cas de nombreux éléments nutritifs, mais certainement pas pour tous. Une des questions qui se posent est de savoir si une quantité suffisante de l'ion peut être obtenue pour la nutrition. Une seconde question est de savoir si cette technique est économique.

A. SZILVINYI (Autriche): La radiosensibilité de la levure intervient dans un grand nombre de sujets. Dans le cadre d'un contrat de recherche pour l'Agence internationale de l'énergie atomique, nous avons trouvé que le facteur le plus important pour la radiosensibilité de diverses levures, et probablement des bactéries aussi, est le moment particulier du cycle de vie de la cellule où l'irradiation a eu lieu. Pour des cultures synchronisées, certaines preuves indiquent que la phase la plus sensible est celle qui précède la synthèse de l'ADN.

A. N. SEVCHENKO (RSS de Biélorussie): L'un des principaux facteurs de la croissance est la photosynthèse. Et pourtant le rayonnement lumineux qui participe à ce processus et qui favorise la croissance des plantes est de nature identique à celle du rayonnement gamma qui inhibe ou détruit les processus vitaux. Les deux types de rayonnement sont de nature électromagnétique et ne diffèrent que par l'énergie, celle des rayonnements lumineux étant la plus faible. M. Fried pourrait-il faire quelques commentaires sur ces deux types de rayonnement en liaison avec les processus vitaux?

M. FRIED (AIEA): Les facteurs vitaux sont très compliqués et dans les processus d'évolution certains rayonnements sont évidemment absorbés par les pigments présents dans la plante. Grâce à ces longueurs d'onde particulières qui sont absorbées par le pigment, la plante continue le processus utile de photosynthèse. L'irradiation X et l'irradiation gamma apportent une quantité importante d'énergie et, s'il n'y a pas de mécanisme qui élimine cette énergie,

il est probable qu'elle aura un effet destructeur sur les tissus végétaux aux niveaux élevés.

A. R. GOPAL-AYENGAR (Inde): Je voudrais faire deux brèves remarques et poser une question au Dr Fried. La première remarque concerne diverses mutations économiquement avantageuses que nous avons réussi à induire à l'Etablissement de l'énergie atomique de Trombay. En particulier, ce travail se rapporte à la mesure quantitative de variétés à rendement plus élevé de mutations du riz et de l'arachide. Ce que je veux souligner, c'est qu'il est tout à fait possible de produire des variétés de riz à plus haut rendement, pouvant dépasser de 55% celui du témoin, et une variété géante d'arachide, d'une dimension double de celle de la forme de départ.

Ma seconde remarque concerne les possibilités d'irradier et de pasteuriser les aliments et d'augmenter les durées de conservation des produits alimentaires. On peut maintenant, en combinant des traitements thermiques et de faibles doses d'irradiation, minimiser les effets toxiques et conserver les propriétés organoleptiques.

La question que je désire poser au Dr Fried est la suivante: on a fait un nombre important d'études toxicologiques sur des animaux avec des aliments irradiés, mais a-t-on fait des expériences génétiques sur des générations successives afin d'éliminer ou d'exclure la possibilité d'effets nuisibles?

M. FRIED (AIEA): Le Dr Gopal-Ayengar a posé une question très vaste. Le problème de l'absence de nocivité des aliments irradiés a fait l'objet de nombreuses discussions. Il a aussi constitué le thème d'une récente réunion organisée conjointement par l'Organisation des Nations Unies pour l'alimentation et l'agriculture, l'Organisation mondiale de la santé et l'Agence internationale de l'énergie atomique en vue d'essayer d'isoler les facteurs qui doivent être considérés pour définir l'absence de nocivité*. On dispose de résultats sur plus de 100 000 animaux, et plusieurs générations de ces animaux ont certainement été suivies. Les résultats obtenus sur une période de six ans environ ont permis de conclure qu'une alimentation à base de produits irradiés n'avait produit de caractères anormaux dans aucune génération. Je ne connais aucun résultat contraire. Le Dr Gopal-Ayengar connaît parfaitement la littérature, et je ne pense pas pouvoir y ajouter quoi que ce soit.

Mémoire P/880 (présenté par H. Vetter)

DISCUSSION

G. A. ZEDGENIDZE (URSS): Je voudrais ajouter quelques données supplémentaires au rapport très documenté du Dr Vetter.

* Comité d'experts FAO/OMS/AIEA sur les bases techniques d'une législation sur l'absence de nocivité et la sécurité microbiologique des aliments irradiés, Rome, 21-28 avril 1964.

L'utilisation des traceurs et des sources de rayonnement en médecine et en biologie s'est considérablement développée en URSS depuis la deuxième Conférence de Genève. Le principe de base dans le développement d'un réseau d'installations médicales et d'institutions de recherche scientifique utilisant l'énergie atomique est l'établissement — dans les cliniques de traitement du cancer, les grands hôpitaux et les instituts de recherche scientifique — de centres radiologiques équipés de matériel radiologique moderne. Ceci a eu pour résultat une augmentation sensible du nombre d'établissements médicaux soviétiques qui utilisent de façon régulière des préparations radioactives. Alors qu'il y avait 213 établissements de ce type en 1957, plus de 500 utilisent maintenant des préparations radioactives et des rayonnements.

L'utilisation de divers composés marqués a permis d'obtenir certaines données nouvelles en recherche biologique et médicale, dans l'étude des conditions fonctionnelles du système cardiovasculaire, du foie, du tube digestif, des reins et des glandes endocrines, et aussi dans le diagnostic des tumeurs de divers organes ou systèmes.

Des installations améliorées et plus puissantes pour l'irradiation stationnaire, rotationnelle ou convergente par des sources de cobalt 60, et des sources de rayonnements de haute énergie comme les béta-trons et les accélérateurs linéaires ont été introduites en URSS sur la base de nouvelles techniques et ont considérablement amélioré les résultats obtenus dans le traitement par irradiation des tumeurs dans différentes parties du corps.

L'utilisation de différents types d'aiguilles et de préparations radioactives, de solutions colloïdales d'or, d'argent, de phosphore et d'autres éléments radioactifs a contribué de façon marquée à l'amélioration des traitements par irradiation.

P. J. DUNTON (Royaume-Uni): Ma question concerne la téléthérapie aux radioisotopes. On a suggéré que l'efficacité des unités de cobalt 60 dans le traitement des tumeurs profondes serait augmentée si on fournissait plus d'oxygène au malade pendant le traitement, à l'aide de chambres hyperbariques ou par d'autres moyens. Que pensent les auteurs de cette suggestion?

H. VETTER (AIEA): Les auteurs n'ont pas d'expérience personnelle en ce qui concerne cette suggestion, mais des travaux de ce genre sont en cours, principalement au Royaume-Uni, et aussi aux Etats-Unis. Cette méthode en est encore au stade expérimental, bien qu'elle s'appuie sur des bases radiologiques solides. Les résultats préliminaires sont encourageants, mais je pense qu'il faut attendre encore quelque cinq années avant de pouvoir évaluer sérieusement les effets de cette forme particulière de thérapie.

R. OGBORN (Etats-Unis d'Amérique): Je voudrais demander au Dr Vetter de faire quelques commentaires sur certains composés marqués qui ne sont pas mentionnés dans sa communication. Je pense par exemple au travail récent de S. Benson et R. Yalow sur les anticorps qui bloquent l'insuline, travail qui a ouvert un nouveau domaine pour le diagnostic et le pronostic des états de désordre hormonal. Il faudrait aussi mentionner les produits pharmaceutiques radioactifs, actuellement en cours d'essai sur des sujets humains, qui se localisent dans les tissus de tumeurs en concentrations allant jusqu'à 100 fois la concentration dans les tissus normaux voisins. Je peux citer comme exemples le travail de S. J. Mitchell à Cambridge et celui de C. Eskelson et J. MacLeary aux Etats-Unis, qui utilisent le Synkavit radioactif et la tétracycline radioactive.

H. VETTER (AIEA): Je conviens que l'insuline marquée est un composé très utile, que l'on utilise maintenant dans un grand nombre d'établissements de recherche médicale pour estimer les concentrations de l'insuline dans les divers fluides du corps. Le travail de Mitchell sur la vitamine K marquée en est peut-être à un stade moins avancé, mais il y a des raisons d'espérer que l'on pourra dans un proche avenir administrer des doses de rayonnement importantes à certains types de cancer humain.

G. MILHAUD (France): Je voudrais faire trois brèves remarques sur le très intéressant mémoire du Dr Vetter et de ses collègues. D'abord, en ce qui concerne l'instrumentation, l'introduction des compteurs à bas bruit de fond pour la mesure des isotopes émettant des bêtas mous (à l'exception du tritium) représente un progrès considérable et permet une réduction plus importante de la dose administrée par rapport à la dose nécessaire que lorsqu'on utilisait des compteurs à scintillateur liquide. Ensuite, le diagnostic très difficile de l'hyperthyroïdie est devenu relativement aisé grâce à l'utilisation du calcium 45. On peut, avec cette procédure, éviter les interventions chirurgicales inutiles. Enfin, il est probable qu'on utilisera de plus en plus les composés marqués au ^{14}C , qui peuvent être utilisés pour le diagnostic des maladies héréditaires du métabolisme (galactosurie, intolérance héréditaire du fructose, maladie du sirop d'érable), en faisant incuber du sang ou un fragment d'organe en dehors de l'organisme.

Z. DIENSTBIER (Tchécoslovaquie): Puis-je demander aux auteurs comment ils comprennent le terme « médecine nucléaire »?

H. VETTER (AIEA): L'utilisation de cette expression est une question de définition et chaque chercheur dans ce domaine a probablement sa définition personnelle. Certains, par exemple, estiment que médecine nucléaire veut dire la médecine de la guerre nucléaire. C'est une définition avec laquelle je ne suis personnellement pas d'accord. Je comprends la méde-

сине nucléaire comme l'utilisation des radioéléments et des sources de rayonnements en médecine. Même dans ce domaine il peut y avoir quelque désaccord — par exemple, pour décider si l'utilisation des sources de cobalt radioactif en téléthérapie doit être considérée comme relevant de la médecine nucléaire ou de la radiologie. Certains estiment que l'utilisation des unités à cobalt a simplement remplacé le traite-

ment aux rayons X et qu'il ne s'agit donc que d'un nouvel appareil de radiologie; d'autres pensent que puisque cette méthode implique l'utilisation de l'énergie atomique en médecine, il n'est que normal de l'incorporer à la médecine nucléaire. Ce n'est qu'une question d'interprétation et je suis sûr qu'il faudra encore de dix à quinze ans pour éclaircir ces problèmes de juridiction.

Протокол заседания G

Применение изотопов и источников излучений в биологических науках

Председатель: Л. Синтра до Прадо (Бразилия)

Доклад P/874

ДИСКУССИЯ

Р. Э. КАВЕЦКИЙ (СССР): Мы можем полностью согласиться с профессором Чагас, что использование меченых соединений дало возможность изучить механизм фармакологического действия различных веществ. Однако это действие не всегда связано с первичным накоплением агента в реагирующей ткани, как он сам наблюдал в своих очень интересных экспериментах по излучению. Например, в наших исследованиях после инъекции крысам меченого 7,12 диметилбензантрацена мы не наблюдали первичного накопления канцерогенного агента в грудной железе и молоке животных, тем не менее рак грудной железы развивался у 70% крыс. Следовательно, в этом случае локализация процесса была вызвана не первичным накоплением агента, а, как это было доказано специальными экспериментами, генетическим предрасположением клеток (линией животных) и функциональным состоянием органа (влияние гипофизарного и яичникового гормонов). Одновременно наши исследования подтверждают основной вывод профессора Чагас относительно значения метода меченых соединений в биологических исследованиях.

К. ЧАГАС, сын (Бразилия): Как указал г-н Кавецкий, одно из удивительных фармакологических явлений, открытое в результате использования изотопов, состоит в том, что распределение меченого соединения в организме очень мало связано с его биологическим или фармакологическим действием. Это было первоначально продемонстрировано в случае сердечного гликозида. Даже в случае радиоактивно-

го кураре (агент, с которым я работаю) это вещество можно обнаружить в местах, где оно не играет никакой роли. Например, большое количество кураре можно найти в водных жидкостях тела животного, где, как это совершенно точно известно, нет синапса. Все эти результаты, а их имеется большое количество, показывают еще раз, что нужно осторожно делать какие-либо заключения.

М. АБДЕЛЬ-ВАХАБ (ОАР): Автор упоминает об использовании меченого углекислого газа при изучении процесса фотосинтеза. Основываются ли его заключения на результатах Кэлвина, которые были получены при работе с низшими одноклеточными растениями, или ему известны какие-либо другие исследования с использованием $C^{14}O_2$, проведенные с высшими растениями? Если это так, то мне было бы интересно услышать о соответствующих механизмах дыхания и фотосинтеза.

К. ЧАГАС (Бразилия): Я лично не проводил никаких работ по фотосинтезу. Представленный мною материал основывался главным образом на работах Кэлвина и на типах растений, которые он изучал. Я привел это как пример, а не для того, чтобы делать какие-либо общие выводы.

Доклад P/876 (представил М. Фрид)

ДИСКУССИЯ

М. А. АРСЕНЬЕВА (СССР): Я хотела бы дополнить этот интересный доклад очень кратким отчетом об исследованиях, которые проводятся в этом направлении в Советском Союзе.

В настоящее время различные исследовательские центры в Советском Союзе ведут большие

работы по селекции растений с помощью излучений различного вида (гамма-излучение, быстрые нейтроны) и некоторых химических соединений. Часть этих работ связана с изучением чувствительности растений к различным видам радиации. Например, было доказано, что некоторые виды бобов исключительно чувствительны к гамма-излучению и тем не менее одинаково чувствительны к быстрым нейтронам.

Проводятся исследования по селекции диплоидных и тетраплоидных форм гречихи на сопротивляемость радиации и некоторым химическим мутагенным агентам.

Проводятся также широкие исследования эффективности и специфичности ионизирующего излучения и этиленмина в индуцировании мутаций в озимой пшенице. Этиленмин показал довольно большой мутагенный эффект; следующими по порядку являющиеся быстрые нейтроны и затем гамма-излучение, которое обладает наименьшей эффективностью.

Диапазон мутаций также изменяется в соответствии с облучением различными видами радиации. Многие мутантные формы в настоящее время подвергаются испытаниям в линии. Некоторые из полученных растений имеют такие ценные сельскохозяйственные характеристики как сопротивляемость ряду заболеваний, стойкость и высокая продуктивность (озимая пшеница). Мутации также были получены в случае низкорастущих томатов и ряда других важных сельскохозяйственных растений.

Радиация также используется для стимулирования прорастания и созревания различных культур. Данные, полученные по радиационной селекции, еще раз подтверждают, что радиация может успешно использоваться в селекции сельскохозяйственных растений.

Успешные работы проводятся по использованию радиации для увеличения периода хранения овощей (картофель, лук и т. д.). Эти работы приобрели в настоящее время промышленное значение. Крупные исследования ведутся по стерилизации кормов и их консервированию при помощи радиации. Большой научный прогресс был достигнут в исследованиях по стерилизации мужских особей некоторых насекомых. Работа профессора Астаурова по тутовому шелкопряду хорошо известна и имеет значительное промышленное значение.

Совершенно невозможно в этом выступлении упомянуть о всех исследованиях, которые ведутся в Советском Союзе в этих областях, но о большинстве этих работ сообщалось в научных публикациях.

М. МОРГАН* (Соединенное Королевство): В связи с разделом этого доклада, который посвящен рыбе, может быть, будет интересным упомянуть о некоторых экспериментах, прове-

денных Министерством сельского хозяйства и рыбного промысла Соединенного Королевства в Ирландском море. Еще до начала сброса в море радиоактивных отходов из Виндскейла была проведена программа окольцовывания рыбы вокруг участка, в который предполагалось сбрасывать отходы, и на основе результатов повторной ловли окольцованной рыбы была сделана оценка времени, которое камбала (наиболее важный вид рыбы) нормально проводит каждый год около места сброса. Рыба содержалась в аквариумах, в которых в течение этого времени поддерживалась радиоактивность; таким образом была получена величина годового поглощения радиоактивности камбалой в год, и был определен предел допустимой концентрации радиоактивности в воде.

Одним из побочных результатов эксперимента по окольцовыванию было то, что мы смогли получить экспоненциальную функцию, описывающую распределение популяции камбалы в зависимости от расстояния от пункта сброса. Тот факт, что это оказалось возможным, объяснялся тем, что близко от места сброса находилось место кормежки и поэтому проходы и уходы рыбы отражались в этой равномерности. После того как эти сбросы проводились уже в течение нескольких лет и экологическая система достигла равновесия, можно было провести следующую работу по установлению связи между водой и популяцией камбалы. Результаты обследования морской воды за несколько лет позволили нам описать постоянные концентрации нескольких радиоактивных изотопов как функции расстояния от места сброса и скорости сброса. Используя такую функцию (вместо функции, полученной в результате первоначальных экспериментов по сбрасыванию флуоресцирующей краски) и сочетания ее с вероятностным отношением, примененным к положению рыбы и ее расстоянием от места сброса и с определенным в лаборатории коэффициентом концентрации между рыбой и водой, мы получили последние оценки средних уровней концентрации, которые следует ожидать у камбалы. Эти оценки находились в согласии с величинами, которые были получены путем ловли рыбы в этом районе и проведения непосредственных измерений на рыбе.

Таким образом, один из вспомогательных результатов программы дозиметрического контроля сбрасываемых из Виндскейла отходов заключался в обеспечении контроля поведения популяции рыбы.

К. КАЙНДЛ (Австрия): Я хотел бы сделать несколько кратких замечаний по нескольким вопросам, затронутым в этом очень интересном докладе.

Во-первых, как указывают авторы, определение следов элемента в целой клетке или ткани в живом веществе дает только грубую картину роли, которую играют эти элементы. Во-вто-

* Редактор: наблюдатель (?) на Соединенного Королевства.

рых, содержание следов элементов в нуклеиновой кислоте показывает, что они являются важным фактором стабильности генетического материала. Таким путем, например, оказалось возможным показать, что чувствительность дрожжей к облучению зависит от следов элементов в нуклеиновой кислоте, а это соображение имеет некоторое значение при облучении пищевых продуктов.

Имеются также некоторые указания на то, что степень инфекции зависит от отношения содержания ионов металла в вирусе и в хозяине; это имеет определенное влияние на сельское хозяйство.

По нашему мнению, содержание следов элемента в нуклеиновых кислотах и их фракциях имеет важнейшее значение для связи между живым веществом и такими факторами окружающей среды, как болезни и облучение. До некоторой степени оно также обуславливает содержание информации в генетическом материале.

Что касается облучения пищевых продуктов, я хотел бы отметить, что результаты нашей собственной работы показывают, что радиопастеризация фруктового сока, по-видимому, является очень перспективным подходом.

Определение распространения насекомых, которое является необходимым предварительным условием для борьбы с вредными насекомыми, можно легко проводить путем метки насекомых редкими элементами (например, европием в количестве $0,1-1,0 \cdot 10^{-4}\%$) и проведения нейтронного активационного анализа.

Что касается стимулирования некоторых процессов в растении, упомянутых г-жой Арсеневой, то я хотел бы привлечь внимание к работе Зюсса в ФРГ. Он показал возможность повышения урожая культур путем облучения семян.

Т. А. МАРУЛАНДА (Колумбия): Есть ли страны, в которых в настоящее время продаются облученные пищевые продукты?

М. ФРИД (МАГАТЭ): Насколько мне известно, облученный картофель продается на коммерческом рынке в Канаде и то же самое можно сказать и о Советском Союзе. Я не знаю ни одной страны, где бы продавались облученный бэкон и пшеница, но у меня нет никаких сомнений в том, что очень скоро и эти продукты появятся на рынке.

А. ВАН-ДЕН-ХЭНДЕ (Бельгия): Поглощению растением питательных веществ через корневую систему иногда препятствуют факторы, связанные с характером почвы: фиксация (блокирование), трудности поглощения (нерастворимость) и т. д. В Бельгии эта проблема часто разрешалась путем опрыскивания листьев растворами недостающих элементов. Испытания, проведенные с радиоактивными изотопами фосфора, натрия, марганца и железа показывают, что меченые соли очень быстро поглощаются

листьями. Благодаря этому дефицит может быть очень быстро восполнен в течение процесса роста, в тех случаях, где невозможно предотвратить снижение урожая только путем питания через почву.

М. ФРИД (МАГАТЭ): Явление, на которое Вы ссылаетесь, обычно наблюдается в случае многих, но, конечно, не всех питательных элементов. Один из возникающих вопросов состоит в том, можно ли получить достаточное для питания количество ионов. Другой вопрос — является ли этот метод экономически выгодным.

А. СЦИЛВИНИЙ (Австрия): Чувствительность дрожжей к облучению оказывает влияние на ряд проблем. При выполнении работы по контракту, заключенному с Международным агентством по атомной энергии, мы нашли, что самым важным фактором в чувствительности различных дрожжей к облучению и, вероятно, также бактерий, является именно стадия жизненного цикла клетки, на которой они подвергаются облучению. У синхронизированных культур имеются определенные доказательства, что наиболее чувствительной фазой является фаза, предшествующая синтезу ДНК.

А. Н. ШЕВЧЕНКО (СССР): Одним из основных факторов в росте живых организмов является фотосинтез. Тем не менее, световое излучение, которое лежит в основе этого процесса и которое стимулирует рост растения, идентично по своей природе с гамма-излучением, которое тормозит или нарушает жизненные процессы. Оба типа радиации представляют собой электромагнитные волны и отличаются только энергией; энергия светового излучения ниже. Не может ли г-н Фрид высказать свои замечания по этим двум видам радиации в их связи с жизненными процессами?

М. ФРИД (МАГАТЭ): Жизненные факторы очень сложны и в процессе эволюционного развития некоторые излучения, очевидно, поглощаются растениями, присутствующими в растении. После поглощения пигментом лучей с этими определенными длинами волны растение продолжает свой полезный процесс фотосинтеза. В случае облучения рентгеновским и гамма-излучением, обладающими большой энергией, и при отсутствии механизма, который бы удалял эту энергию, вероятно, что при высоких уровнях такого излучения оно будет оказывать разрушительное действие на ткани растения.

А. Р. ГОПАЛ-АЙЕНГАР (Индия): Я хотел бы сделать два кратких замечания и задать один вопрос д-ру Фриду. Первое из этих двух замечаний связано с различными экономически выгодными мутациями, которые мы успешно индуцировали в Центре по атомной энергии в Тромбее, Индия. Более точно, работа относится к количественному измерению высокоурожайных видов мутаций риса и земляного ореха. Мне хотелось бы подчеркнуть, что совершенно определенно возможно получить высокоурожай-

ные виды риса, урожайность которых будет выше до 55% по сравнению с первоначальными контрольными сортами, с которыми начинали работать.

Второе замечание связано с возможностью облучения и пастеризации пищевых продуктов и продления срока их хранения. В настоящее время путем сочетания термообработки и облучения малыми уровнями радиации можно свести до минимума токсические эффекты и сохранить органолептические свойства.

Я хотел бы задать д-ру Фриду следующий вопрос: довольно большое количество токсикологических исследований было проведено на животных с облученными пищевыми продуктами, но проводились ли какие-либо генетические эксперименты с последующими поколениями этих животных для того, чтобы устранить или исключить возможность вредных воздействий?

М. ФРИД (МАГАТЭ): Д-р Гопалиенгар задал очень обширный вопрос. Проблема доброкачественности облученных пищевых продуктов была предметом многих дискуссий. Она также послужила темой недавнего совместного совещания, созванного Продовольственной и сельскохозяйственной организацией Объединенных Наций, Всемирной организацией здравоохранения и Международным агентством по атомной энергии, где была предпринята попытка выделить факторы, которые необходимо рассмотреть для того, чтобы определить их доброкачественность*. Были зарегистрированы результаты для более чем 100 тыс. животных и велось определенное наблюдение за различными поколениями этих животных. Из результатов, полученных в течение шестилетнего периода, было сделано заключение, что использование облученных продуктов для корма животных не приводило к появлению аномалий в каком-либо поколении. Я не слышал, что кто-либо получил противоположные результаты. Д-р Гопалиенгар хорошо знаком с литературой по этому вопросу и я не думаю, что я могу еще что-либо к этому добавить.

Доклад Р/880 (представил Х. Феттер)

ДИСКУССИЯ

Г. А. ЗЕДГЕНИДЗЕ (СССР): Я хотел бы дополнить очень содержательный доклад д-ра Феттера следующими данными.

Использование меченых атомов и источников излучений в медицине и биологии в СССР значительно расширилось со времени Второй Женевской конференции. Основной принцип развития сети медицинских учреждений и научно-исследовательских институтов, использую-

щих атомную энергию, заключался в организации при онкологических клиниках, больших больницах и научно-исследовательских институтах радиологических центров, оснащенных современным радиологическим оборудованием. В результате этого значительно возросло число советских медицинских учреждений, которые регулярно используют радиоактивные препараты. Если в 1957 году насчитывалось 213 таких организаций, то сейчас более 500 таких организаций используют радиоактивные препараты и излучения.

Использование различных меченых соединений позволило получить некоторые новые данные в биологических и медицинских исследованиях, в исследованиях функциональных состояний сердечно-сосудистой системы, печени, желудочно-кишечного тракта, почек и эндокринных желез, а также в диагностике опухолей в различных органах и системах.

Усовершенствованные и более мощные установки для стационарного, ротационного облучения и облучения сходящимся пучком, оборудованные источниками Co^{60} и такими источниками излучений высокой энергии, как бетатроны и линейные ускорители, были введены в СССР на основе новых методов и значительно повысили результаты радиотерапии опухолей в различных частях организма.

Использование радиоактивных игл различных типов и препаратов и коллоидных растворов радиоактивного золота, серебра, фосфора и других элементов значительно способствовали улучшению радиотерапии.

П. Дж. ДАНКТОН (Соединенное Королевство): Мой вопрос относится к разделу «Радиоизотопная телетерапия». Выдвигались предположения, что эффективность радиокобальтовых установок при терапии глубоких опухолей поставлена под угрозу в результате увеличения подачи кислорода больному во время терапии путем использования гипербарических камер или других средств. Имеется ли у авторов какой-либо опыт в этом отношении?

Х. ФЕТТЕР (МАГАТЭ): У авторов нет личного опыта по этому предположению, но такая работа ведется главным образом в Соединенном Королевстве, а также в Соединенных Штатах. Она находится только на стадии экспериментов, хотя для этого метода имеется хорошая радиобиологическая основа. Предварительные результаты являются обнадеживающими, но я думаю, что мы подождем, еще, вероятно, пять лет, прежде чем можно будет сделать твердую оценку эффектов этой формы терапии.

Р. ОГБОРН (США): Я хотел бы попросить д-ра Феттера рассказать о некоторых меченых соединениях, о которых не упоминается в его докладе. Я имею в виду, например, недавнюю работу С. Бенсона и Р. Палоу по антителам, связывающим инсулин, которая открыла новую область диагностики и прогноза состояний

* FAO/WHO/IAEI Expert Committee on the Technical Basis for Legislation on the Wholesomeness and Microbiological Safety of Irradiated Foods, Rome, 21-28 april 1964.

гормональных заболеваний. Следует также отметить радиофармацевтические препараты, проходящие в настоящее время испытания на людях; эти препараты локализуются в опухолевой ткани с концентрациями до 100:1 по сравнению с нормальной окружающей тканью.

В качестве примера я сошлюсь на работу С. Дж. Митчелла из Кембриджа, Англия, и работу К. Эскельсона и Дж. Маклири, Соединенные Штаты, связанные с использованием радиоактивного сывяквита и радиоактивного тетрациклина.

Х. ФЕТТЕР (МАГАТЭ): Я согласен, что меченый инсулин является исключительно полезным соединением, которое используется в настоящее время во многих медицинских исследовательских институтах для оценки концентраций инсулина в жидкостях организма. Работа Митчелла по меченому витамину К в настоящее время находится, может быть, еще в ранней стадии своего развития, но есть основания надеяться, что значительные дозы облучения могут быть произведены в ближайшем будущем для некоторых типов раковых заболеваний человека.

Г. МИЛО (Франция): Я хотел бы сделать три кратких замечания в связи с очень интересным докладом д-ра Феттера и сотр. Во-первых, что касается оборудования, то введение счетчиков с малым фоном для использования с мягкими бета-излучающими изотопами (кроме трития) представляет значительное достижение и позволяет в большей степени сократить вводимую дозу, чем при использовании сцинтилляционных счетчиков. Во-вторых, очень трудный диагноз гипертиреозидизма стал отно-

сительно легким благодаря использованию Ca^{45} . Путем этой процедуры можно избежать ненужного хирургического вмешательства. И, наконец, очень вероятно, что в будущем возрастет использование соединений, меченых C^{14} которые могут использоваться для диагностики наследственных метаболических заболеваний (галактозурия, наследственная непереносимость к фруктозе, заболевание, вызванное сиропом из кленового листа) путем культивирования крови или части органа вне организма.

З. ДИНСТБИР (Чехословакия): Можно ли мне спросить авторов, что они понимают под термином «ядерная медицина»?

Х. ФЕТТЕР (МАГАТЭ): Использование этого термина является терминологическим вопросом и, вероятно, каждый работающий в этой области имеет свое собственное определение. Например, есть люди, которые считают, что ядерная медицина означает ядерную войну. С таким определением я лично не согласен. По моему мнению, ядерная медицина означает использование радиоизотопов и источников излучений в медицине. И даже в этой области все еще могут быть некоторые разногласия, например, следует ли классифицировать использование радиокобальтовых источников в телетерапии как ядерную медицину или как радиологию; некоторые считают, что поскольку этот метод связан с использованием атомной энергии в медицине, то единственным правильным путем будет отнести его к ядерной медицине. Это просто вопрос интерпретации и я уверен, что пройдет еще десять — пятнадцать лет, прежде чем эти юридические проблемы будут уяснены.

Acta de la sesión G

Aplicaciones de los radioisótopos y de las fuentes de radiación en las ciencias biológicas

Presidente: L. Cintra do Prado (Brasil)

Documento P/874

DISCUSIÓN

R. E. KAVETSKY (RSS de Ucrania): Estamos completamente de acuerdo con el profesor Chagas en que el empleo de compuestos marcados nos ha permitido estudiar el mecanismo de la acción farmacológica de varias sustancias. Sin embargo, esta acción no está siempre relacionada con la acumulación primaria del agente en el tejido reaccionante, como él mismo hizo notar en sus interesantes experimentos

sobre curarización. Por ejemplo, en nuestra investigación, inyectando 7,12-dimentilbenzantraceno marcado a ratas, no observamos acumulación primaria de agente cancerígeno ni en las glándulas mamarias ni en la leche de los animales; no obstante, en el 70% de las ratas apareció cáncer en las glándulas citadas. En este caso, por consiguiente, la localización del proceso no fue debida a una acumulación primaria del agente, sino, según se demostró mediante experiencias apropiadas, a la predisposición genética de las células (tipo de animales) y a las condiciones

funcionales del órgano (influencia de las hormonas pituitarias y ováricas). Por otra parte, nuestras investigaciones confirman la conclusión básica del profesor Chagas en cuanto al valor de los compuestos marcados en investigación biológica.

C. CHAGAS FILHO (Brasil): Un hecho farmacológico sorprendente, demostrado con ayuda de isótopos, es, según ha señalado el Sr. Kavetsky, que la distribución en el cuerpo de un compuesto marcado guarda muy poca relación con su acción biológica o farmacológica. Este hecho fue demostrado por primera vez en el caso de glicósidos cardíacos. Incluso en el caso del curare radiactivo, agente con el cual estoy trabajando, la droga puede ser encontrada en lugares donde no desempeña papel alguno. Por ejemplo, se encuentra bastante curare en el humor acuoso, donde según se sabe perfectamente no existe sinapsis. Todos estos hallazgos, de los cuales hay un gran número, demuestran una vez más que debemos tener una gran precaución al deducir conclusiones.

M. ABDEL WAHAB (República Árabe Unida): El autor se ha referido al uso de CO_2 marcado en estudios de fotosíntesis. ¿Están basadas sus conclusiones en las investigaciones de Calvin sobre plantas monocelulares, o tiene noticias de algunos estudios con $^{14}CO_2$ realizados en plantas superiores? En caso afirmativo me interesaría conocer los mecanismos de la respiración y fotosíntesis.

C. CHAGAS FILHO (Brasil): No he realizado ningún trabajo sobre fotosíntesis. Los datos que he presentado están basados principalmente en los trabajos de Calvin y por tanto en los tipos de plantas por él estudiados. Cité esto tan sólo como ejemplo, no con el propósito de deducir ninguna conclusión.

Documento P/876 (presentado por M. Fried)

DISCUSIÓN

M. A. ARSENYEVA (URSS): Me gustaría complementar esta interesante memoria con una enumeración muy rápida de la investigación que dentro de este campo se está realizando en la Unión Soviética.

Varios centros de investigación de la URSS están llevando a cabo actualmente innumerables trabajos sobre el cultivo de plantas con ayuda de varios tipos de radiación (rayos gamma, neutrones rápidos) y varios compuestos químicos. Algunos de estos trabajos están relacionados con el estudio de la sensibilidad de las plantas a las radiaciones indicadas. Se ha demostrado, por ejemplo, que ciertas variedades de guisantes son especialmente sensibles a los rayos gamma y además son igualmente sensibles a los neutrones rápidos.

Se están llevando a cabo investigaciones sobre el cultivo de formas diploides y tetraploides de trigo sarraceno, con objeto de estudiar su resistencia a la radiación y a ciertos agentes químicos que pueden producir mutaciones.

También se están realizando amplios estudios sobre la eficacia y especificidad de las radiaciones ionizantes y la etilenimina en la inducción de mutaciones en el trigo de invierno. Este último compuesto ha demostrado ser el más eficaz en este sentido, seguido por los neutrones rápidos. Los rayos gamma son los menos eficaces.

La escala de mutaciones también varía de acuerdo con la exposición a los diferentes tipos de radiación. Muchas de las variedades obtenidas se encuentran ahora bajo investigación. Algunas plantas tienen características notables, tales como resistencia a ciertas enfermedades, mayor fortaleza y alta productividad (trigo de invierno). Se han obtenido asimismo mutaciones en tomates enanos así como en otras plantas que presentan interés desde el punto de vista agrícola.

La radiación se está utilizando igualmente para estimular la germinación y maduración de diferentes cultivos. Los resultados obtenidos muestran una vez más la importancia de las radiaciones en la mejora de plantas.

La radiación se está utilizando con éxito para prolongar el período de almacenamiento de vegetales (patatas, cebollas, etc.). Este trabajo ha adquirido ahora importancia industrial. Actualmente se lleva a cabo una investigación en gran escala sobre la esterilización de alimentos y su preservación por radiación, constituyendo asimismo un gran progreso científico la esterilización de ciertos insectos machos. Es bien conocido el trabajo del profesor Astaurov sobre el gusano de seda, el cual tiene una considerable importancia industrial.

Me es completamente imposible en esta exposición, dar cuenta de los trabajos que se están llevando a cabo, dentro de este tema, en la Unión Soviética, pero la mayoría de ellos han sido comunicados en publicaciones científicas.

F. MORGAN (Reino Unido): En relación con la sección de esta memoria que trata de los peces, puede resultar interesante mencionar algunas experiencias llevadas a cabo por el Ministerio de Agricultura y Pesca del Reino Unido en el mar de Irlanda. Antes de poner en funcionamiento el reactor de Windscale fue llevado a cabo un programa de marcado de peces en los alrededores del sitio propuesto para la descarga, y se determinó, tomando como base las recapturas, el tiempo que cada año permanece la platija (la especie más importante) cerca de la salida. Los peces se mantuvieron en acuarios que contenían radiactividad y de ese modo pudo deducirse la absorción anual de la platija, así como el límite para la concentración permitida en el agua.

Merced a estas experiencias de marcado pudo sacarse una conclusión secundaria que nos permitió llegar a una función exponencial que describía la distribución de la población de la platija en función de la distancia al punto de descarga. Esto fue posible gracias al hallazgo de un fondo de comida cerca del punto de descarga y las idas y venidas de los peces se reflejaron de acuerdo con ello. Después de efectuar las descargas durante varios años y de que el sistema ecológico alcanzara el equilibrio, podrían hacerse ulteriores trabajos sobre las relaciones entre el agua y la población de platijas. Las medidas del agua de mar durante varios años nos han permitido explicar las concentraciones en cada momento de varios radionúclidos en función de la distancia al punto de salida y de la velocidad de descarga. Mediante el uso de tal función, en lugar de la obtenida a partir de las experiencias originales con fluoresceína, y combinándola con: a) la relación de probabilidad aplicada a la posición de un pez y su distribución desde el punto de descarga y b) el factor de concentración experimental entre el pez y el agua, hemos obtenido datos recientes de los niveles de concentración media para las platijas. Estos datos estuvieron de acuerdo con los encontrados pescando en esa zona y efectuando medidas directas en los peces.

De este modo, uno de los resultados auxiliares del programa de radioprotección de Windscale ha sido permitir el control del comportamiento de una población de peces.

K. KAINDL (Austria): Me gustaría comentar brevemente algunos de los puntos expuestos en esta interesante memoria.

Primero, según dicen los autores, la determinación del contenido de elementos traza en las células o en los tejidos de la materia viva, mediante análisis por activación, solamente nos da una idea aproximada del papel que desempeñan dichos elementos. Por otra parte, el contenido de elementos traza en los ácidos nucleicos muestra que constituyen un factor muy importante en la estabilidad del material genético. De esta forma, ha sido posible demostrar que la radiosensibilidad de levaduras, por ejemplo, depende del contenido de elementos traza en los ácidos nucleicos siendo esta consideración de alguna importancia en relación con la irradiación de alimentos.

Existen también ciertos indicios de que el grado de infección depende de la relación del contenido de iones metálicos del virus al del huésped, hecho que puede permitir sacar algunas conclusiones en agricultura.

Nuestra opinión es que el contenido de elementos traza en los ácidos nucleicos y sus fracciones es de gran importancia en las relaciones entre la materia viva y los factores ambientales tales como enfermedades e irradiación. Hasta cierto punto esto es tam-

bién de gran importancia en lo que se refiere a los caracteres hereditarios.

Referente a la irradiación de alimentos, me gustaría mencionar que los resultados de nuestros trabajos muestran que la radiopasteurización de jugos de frutas constituye un camino aparentemente prometedor.

La determinación de la distribución de insectos, lo que constituye un requisito previo en el control de los mismos, puede llevarse a cabo fácilmente marcando los insectos con elementos de las tierras raras (p. ej. europeo) (0,1—1,0 ppm) y llevando a cabo el análisis por activación.

Con respecto a la estimulación de estos procesos vegetales, mencionados por la Srta. Arseneva, me gustaría recordar el trabajo de Süß, de la República Federal de Alemania, que demostró la posibilidad de aumentar las cosechas mediante la irradiación de semillas.

T. A. MARULANDA (Colombia): ¿Se expenden actualmente en algún país alimentos irradiados?

M. FRIED (OIEA): Creo que las patatas irradiadas se expenden en los mercados del Canadá y de la Unión Soviética. No conozco ningún otro país donde se vendan todavía tocino y trigo, pero no dudo de que esto se conseguirá muy pronto.

A. VAN DEN HENDE (Bélgica): La absorción por las plantas de sustancias nutritivas a través de sus sistemas radiculares está limitada a veces por factores que dependen de la naturaleza del suelo: fijación (bloqueo), dificultades de absorción (insolubilidad), etc. En Bélgica se ha resuelto frecuentemente este problema mediante procesos de pulverización con soluciones que contienen los elementos deficitarios. Los ensayos realizados con los radioisótopos del fósforo, sodio, hierro y manganeso muestran que dichos elementos son absorbidos muy rápidamente por las hojas. Gracias a esto, las deficiencias pueden corregirse muy rápidamente durante las épocas de crecimiento, en aquellos casos en que no era posible evitar una disminución en el rendimiento de las cosechas al intentarse la nutrición solamente a través del suelo.

M. FRIED (OIEA): El fenómeno al que acaba de referirse se observa comúnmente en la mayoría de los elementos nutritivos, aunque no ciertamente en todos. Una de las preguntas que surgen es si mediante este proceso pueden corregirse las deficiencias nutricionales, y otra, si la técnica es económica.

A. SZILVINYI (Austria): La radiosensibilidad de la levadura está relacionada con un determinado número de factores. Bajo el contrato de trabajo para el Organismo Internacional de Energía Atómica, hemos encontrado que el factor más importante en la radiosensibilidad de varias levaduras, y probablemente también de las bacterias, es el estado particular del ciclo de

vida en que son irradiadas las células. En cultivos sincronizados, existe una confirmación clara de que la fase más sensible es la que precede a la síntesis del ADN.

A. N. SEVCHENKO (RSS de Bielorrusia): Uno de los principales factores en el desarrollo de la vida es la fotosíntesis. Además, la radiación luminosa intrínseca a este proceso y mediante la cual tiene lugar el desarrollo de las plantas es idéntica en naturaleza a la radiación gamma que inhibe o destruye los procesos vitales. Ambas son radiaciones electromagnéticas y difieren solamente en su energía, siendo más baja la de la radiación luminosa. ¿Podría explicar el Sr. Fried algo relacionado con estos dos tipos de radiación y los procesos de la vida?

M. FRIED (OIEA): Los factores de la vida son muy complejos y en el desarrollo evolutivo ciertas radiaciones son claramente absorbidas por los pigmentos presentes en la planta. Con estas longitudes de onda particulares, que son absorbidas por tales pigmentos, el vegetal continúa siendo útil en la realización de los procesos de fotosíntesis. Las radiaciones X y gamma tienen una mayor energía y si no existen mecanismos que la disipen, será probablemente destructiva para los tejidos vegetales a dosis altas.

A. R. GOPAL-AYENGAR (India): Me gustaría hacer dos breves observaciones y formular una pregunta al Dr. Fried. La primera observación se refiere a varias mutaciones económicamente ventajosas, que hemos conseguido en el Atomic Energy Establishment de Trombay, India. En especial el trabajo concerniente a la medida cuantitativa de las mutaciones producidas en variedades de alto rendimiento de arroz y cacahuetes. Quisiera hacer notar que es definitivamente posible producir tales variedades de arroz con un rendimiento de hasta 55% superior con respecto al control y una variedad gigante de cacahuate cuyo tamaño es doble que el de la variedad inicial.

La segunda observación se refiere a las posibilidades de la irradiación y pasteurización de alimentos con objeto de prolongar su conservación. Es ahora posible, mediante combinación de tratamientos con calor y dosis más bajas de radiación, reducir a un mínimo los efectos tóxicos y no alterar las propiedades organolépticas.

La pregunta que me gustaría hacer al Dr. Fried es la siguiente: Se han realizado un gran número de estudios toxicológicos en animales con alimentos irradiados, pero ¿se han llevado a cabo experimentos genéticos sobre sucesivas generaciones con objeto de eliminar o desechar la posibilidad de efectos nocivos?

M. FRIED (OIEA): El Dr. Gopal-Ayengar ha hecho una pregunta muy completa. El problema de la salubridad de alimentos irradiados ha estado sujeto a

innumerables discusiones. Fue también el tema de una reciente asamblea convocada por la Organización de la Naciones Unidas para la Agricultura y la Alimentación, la Organización Mundial de la Salud y el Organismo Internacional de Energía Atómica, donde se realizó un esfuerzo para determinar qué factores deberían ser considerados para determinar la salubridad*. Se han recogido los resultados de las experiencias realizadas con más de 100 000 animales así como con varias generaciones de éstos y se ha concluido que en un período de tiempo de alrededor de seis años, los alimentos irradiados no causaron anomalías en ninguna generación. No tengo noticias de ningún resultado contradictorio. El Dr. Gopal-Ayengar conoce completamente la bibliografía y no creo que pueda añadir nada más.

Documento P/880 (presentado por H. Vetter)

DISCUSIÓN

G. A. ZEDGENIDZE (URSS): Me gustaría añadir algunos datos al interesante trabajo presentado por el Dr. Vetter.

El uso de trazadores y fuentes de radiación en medicina y biología en la Unión Soviética ha progresado considerablemente desde la Segunda Conferencia de Ginebra. Los motivos que han conducido al desarrollo de una red de instalaciones y servicios médicos e instituciones de investigación científica usando energía atómica, han sido el establecimiento, en clínicas oncológicas, grandes hospitales, e institutos de investigación, de centros radiológicos provistos de equipos modernos. Como consecuencia de lo apuntado anteriormente, se ha producido un aumento apreciable del número de establecimientos médicos soviéticos que emplean con regularidad radioisótopos. Mientras que en 1957 existían 213 instituciones de este tipo, actualmente sobrepasan las 500.

El empleo de varios compuestos marcados ha hecho posible obtener nuevos datos en investigación médica y biológica, en estudios de las condiciones funcionales del sistema cardiovascular, el hígado, el conducto gastrointestinal, los riñones y las glándulas de secreción interna y también en el reconocimiento de tumores de varios órganos y sistemas.

Se han introducido en la URSS mejores y más potentes instalaciones equipadas con fuentes de ⁶⁰Co, con objeto de realizar irradiaciones estacionarias, rotativas y convergentes. Dichas instalaciones y otras fuentes de radiación de alta energía, tales como beta-trones y aceleradores lineales, han mejorado los resultados del tratamiento de tumores en diferentes partes del cuerpo.

* FAO/OMS/OIEA, Comité de expertos sobre las bases técnicas para la legislación sobre la salubridad y seguridad microbiológica de alimentos irradiados, Roma, 21-28 de abril de 1964.

La utilización de diferentes tipos de agujas radiactivas y soluciones coloidales de oro radiactivo, plata, fósforo y otros elementos, han contribuido notablemente a una serie de mejoras en los tratamientos con radiaciones.

P. J. DUNTON (Reino Unido): Mi pregunta está relacionada con la teleterapia con radioisótopos. Se sugirió que la efectividad de las unidades de cobalto-60 en el tratamiento de tumores profundos, podrían favorecerse aumentando el suministro de oxígeno al paciente durante el tratamiento, mediante el empleo de cámaras a alta presión o de alguna otra forma. ¿Tienen los autores alguna experiencia en esta materia?

H. VETTER (OIEA): Los autores no tienen experiencia personal en esta materia pero tales trabajos se están desarrollando principalmente en el Reino Unido y también en Estados Unidos. Todavía se encuentra este tema en etapa experimental inicial, a pesar de que existe una base radiobiológica firme para el método. Los resultados preliminares son alentadores, pero creo que tendremos que esperar quizá otros cinco años antes de que pueda hacerse una estimación firme de los efectos de esta forma particular de terapia.

R. OGBORN (Estados Unidos de América): Quisiera rogar al Dr. Vetter que haga algún comentario sobre ciertos compuestos marcados a los que no se ha referido en su memoria. Recuerdo, por ejemplo, el reciente trabajo de S. Benson y R. Yalow sobre los anticuerpos unidos a la insulina, los cuales han abierto un nuevo campo de diagnosis y prognosis de los estados de enfermedades hormonales. Podría hacer también mención de los radiosfármacos, actualmente en estudio en seres humanos, los cuales se localizan en tumores en concentraciones de hasta 100 : 1 comparadas con los tejidos normales que rodean a aquellos. Como ejemplo podría referirme al trabajo de S. J. Mitchell en Cambridge, Inglaterra, y al de C. Eskelson y J. MacLeary en Estados Unidos, los cuales emplean Synkavit radiactivo y tetraciclina marcada.

H. VETTER (OIEA): Estoy de acuerdo en que la insulina marcada es un compuesto extremadamente útil que se emplea actualmente en muchas instituciones de investigación médica para determinar las concentraciones de insulina en los fluidos del cuerpo.

El trabajo de Mitchell sobre la vitamina K marcada está actualmente, quizá, en sus comienzos, pero hay razones para esperar que puedan administrarse dosis sustanciales de radiación a ciertos tipos de cáncer humano en un futuro próximo.

G. MILHAUD (Francia): Me gustaría hacer tres breves observaciones a la interesante memoria del Dr. Vetter y colaboradores. Primero, con respecto al equipo, la introducción de contadores de bajo fondo para su uso con radioisótopos emisores beta débiles (distintos del tritio) representa un avance considerable y permite reducir de una manera notable la dosis administrada cuando se utilizan contadores de centelleo líquido. Segundo, la difícil diagnosis del hipertiroidismo ha llegado a ser relativamente fácil, gracias al uso del calcio-45. Con este procedimiento puede evitarse una intervención innecesaria. Por último, es muy probable que aumente el empleo de compuestos marcados con carbono-14, los cuales pueden usarse en la diagnosis de enfermedades metabólicas hereditarias (galactosuria, intolerancia hereditaria de fructosa, enfermedad del jarabe de maple) incubando sangre o un fragmento de un órgano fuera del cuerpo.

Z. DIENSTBIER (Checoslovaquia): ¿Puedo preguntar a los autores que entienden por « medicina nuclear »?

H. VETTER (OIEA): El uso de esta expresión es asunto de definición y es probable que cada investigador en este campo tenga la suya propia. Hay personas, por ejemplo, que consideran que la medicina nuclear es la medicina de una guerra nuclear. Esta es una definición con la cual yo personalmente no estoy de acuerdo, puesto que entiendo que la medicina nuclear significa el uso de radioisótopos y fuentes de radiación en medicina. Incluso aquí puede haber aún alguna discrepancia, como es, por ejemplo, si el uso de fuentes de radiocobalto en teleterapia puede clasificarse como medicina nuclear o como radiología. Algunos consideran que el empleo de unidades de cobalto ha reemplazado simplemente la terapia de rayos X y que, por consiguiente, constituyen simplemente una nueva ayuda para la radiología; otros creen que puesto que este método lleva consigo el empleo de la energía atómica en medicina, solamente es adecuado incluirlo, por decirlo así, en el concepto de medicina nuclear. Esta es una simple cuestión de interpretación y estoy seguro que pasarán otros diez o quince años antes de que estos problemas jurisdiccionales se hayan aclarado.

Session 4.2

MISCELLANEOUS APPLICATIONS OF ATOMIC ENERGY

LIST OF PAPERS

	Page
Chemical applications	
P/112	305
Continuous methods of tracing chemical changes in fluids under gamma-irradiation	S. Minc <i>et al.</i>
P/113	314
Radiation chemistry in alkaline solutions	B. Jeżowska-Trzebiatowska, J. Kaleciński
P/292	322
The development of chemonuclear processes	B. Manowitz <i>et al.</i>
P/542	332
The use of power reactors as large-scale radiation sources for radiation-chemical production	F. Herre <i>et al.</i>
Applications in industry, engineering and physics	
P/92	339
Une nouvelle structure ordonnée, créée par irradiation aux neutrons	L. Neel
<i>A new ordered structure created by neutron irradiation</i>	
P/114	341
Pipeline wear in iron ore transportation	H. L. Tavares <i>et al.</i>
P/198	347
Current status and future prospects for commercial radiation processing	J. E. Machurek <i>et al.</i>
P/291	356
Engineering applications of nuclear explosives: project PLOWSHARE	G. W. Johnson, G. H. Higgins
P/389	369
Радиационно-термический крекинг (РТК) нефти, нефтепродуктов и углеводородных газов	Л. С. Полак
<i>Radiation-thermal cracking of crude oil stocks and hydro- carbon gases</i>	
	<i>L. S. Polak</i>
P/497	379
Algunas aplicaciones de los elementos radiactivos como trazadores en obras públicas	M. del Val <i>et al.</i>
<i>Some applications of radioactive tracers in civil engineering</i>	
P/583	389
Новые изотопы и систематика нуклидов	И. П. Селинов
<i>New isotopes and the systematics of nuclides</i>	
	<i>I. P. Selinov</i>
P/830	402
Contribution to the understanding of the natural evolution of petroleum: radiation effects on crude oils	U. Colombo <i>et al.</i>
P/854	412
Determination of trace elements in the Greek lakes by neutron-activation analysis	A. P. Grimanis <i>et al.</i>
P/862	420
Two radioactive sources used in an unconventional way.....	T. Cless-Bernert <i>et al.</i>

	Page
P/879 О научно-исследовательской деятельности по использованию атомной энергии в мирных целях в Народной Республике Болгарии (Обзорный доклад)	Г. Наджаков 425
<i>General review of scientific work on the peaceful uses of atomic energy in the People's Republic of Bulgaria</i>	<i>G. Nadzhakov</i>
 Methods and Instrumentation	
P/197 Advances in neutron activation analysis	V. P. Guinn 433
P/457 Separation and purification of certain radioisotopes for medical use	A. A. Abdel-Rassoul <i>et al.</i> 445
P/458 New developments in the accelerated isotopic labelling of organic compounds	N. A. Ghanem 452
P/825 Neutron counting in activation-analysis.....	S. Amiel 462
P/828 Choice of most suitable radiation characteristics for any given gauging problem	P. Platzek, A. C. Meyer 474
P/829 Determination of certain trace impurities in pure lead and aluminium by neutron-activation analysis	H. K. El-Shamy <i>et al.</i> 484
P/855 Gas-phase methods operating at atmospheric pressure for the analysis of soft beta-emitting isotopes	S. Mlinko, T. Szarvas 492
 Applications in the life sciences	
P/841 Biological disposition of anti-bilharzial antimony drugs: estimation of antimony in body fluids and parasites by activation analysis.....	A. A. Abdel-Rassoul <i>et al.</i> 501
P/850 The effect of liming on the availability of phosphate in "cerrado" soils of Brazil	E. Malavolta <i>et al.</i> 507
P/853 Radioisotope studies of adaptation to residence at high altitudes and to heat stress.....	J. Metz, C. Wyndham 511
P/856 The effect of tritiated thymidine and gamma-irradiation on the mortality of <i>Drosophila melanogaster</i> larvae.....	E. Kent 518

Continuous methods of tracing chemical changes in fluids under gamma-irradiation

By S. Minc, Z. P. Zagórski and R. Broszkiewicz*

Investigations have been carried out on the development of continuous methods for the intermediate identification of chemical changes, taking place in the gamma radiolysis of solutions, initiated by the Department of Radiation Chemistry in 1960, with three years of continuous support from the International Atomic Energy Agency. These studies have

been undertaken since conventional methods of identification after irradiation are insufficient for the understanding of the chemical processes caused by gamma irradiation.

Two methods have been adopted for use in strong fields of gamma radiation, of the order of 100 rad/s. As a result, kinetic curves have been obtained showing the changes in the concentration of particular reagents in the system as a function of the irradiation time

* Institute of Nuclear Research, Warsaw.

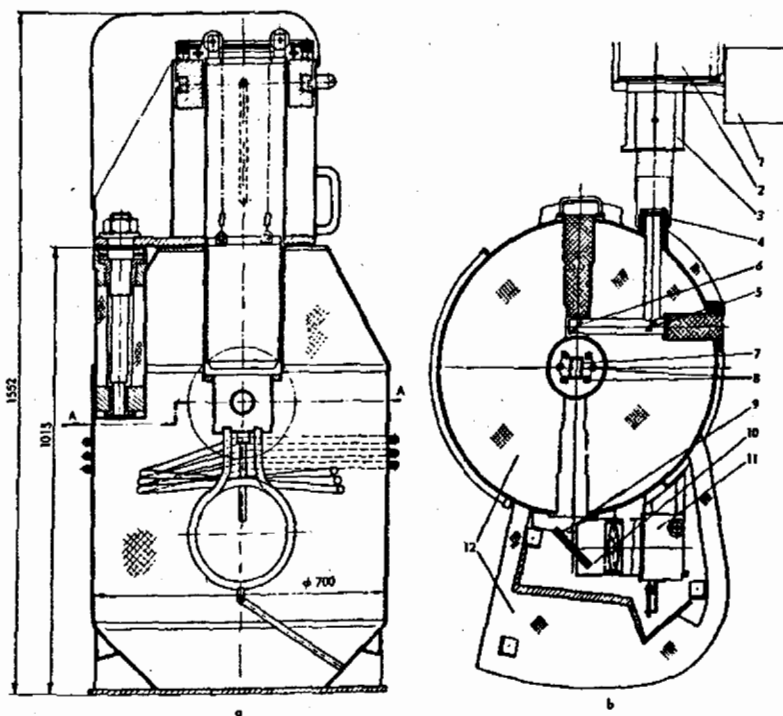


Figure 1. Vertical (a) and horizontal (b) cross-sections of cobalt-60 source for optical measurements during gamma irradiation

The plane of drawing (b) is that of the optical axis of the analytical light beam. 1: Box with light sources (hydrogen lamp or tungsten bulb placed according to the range of the spectrum in which measurement is made); 2: Tail part of the main body of the monochromator; 3: Cell box (not used in the modified instrument, as described); 4: Quartz lens giving parallel beam of monochromatic light; 5, 6: Metallized mirrors reflecting the light beam; 7: Container with cells (vessels); 8: Cobalt source holders (in working position contain cobalt-60 capsules); 9: Metallized mirror reflecting light beam on photocells; 10: Quartz lens focussing light beam on photocell; 11: Photocell box with pre-amplifier

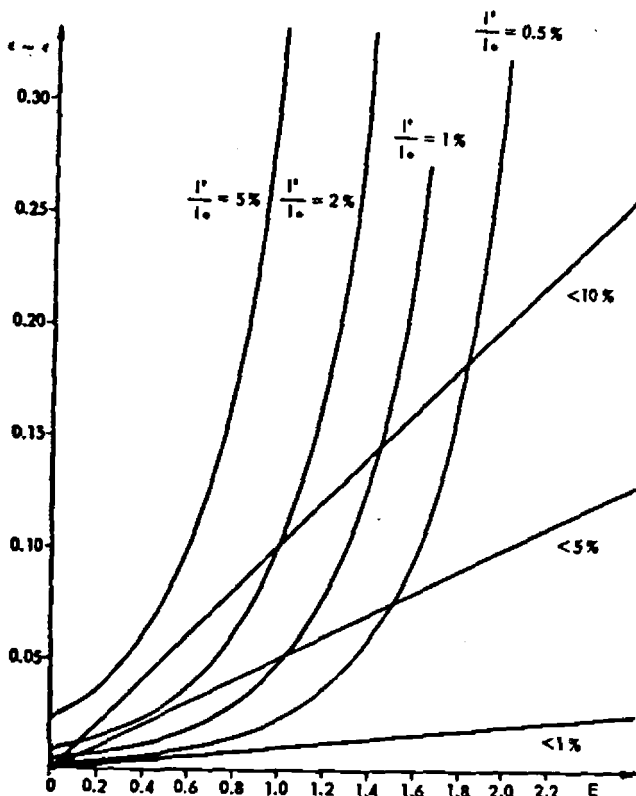


Figure 2. Diagram of corrections to calculated extinction values (optical density) of solutions in a gamma radiation field emitting Čerenkov radiation and sometimes also fluorescent radiation

and the time elapsed thereafter. It is possible, therefore, to determine the products which are usually unstable but which occur as intermediates in the systems investigated and disappear after irradiation.

TECHNIQUES APPLIED IN INVESTIGATIONS

Spectrophotometry in the gamma radiation field

For optical investigations on gamma-irradiated systems, a special source with cobalt-60 has been constructed [1,2]. Its cross-sections are shown in Fig. 1. The Unicam SP500 spectrophotometer serves as a monochromatic light source and standard parts of this apparatus are used for the measurement of the

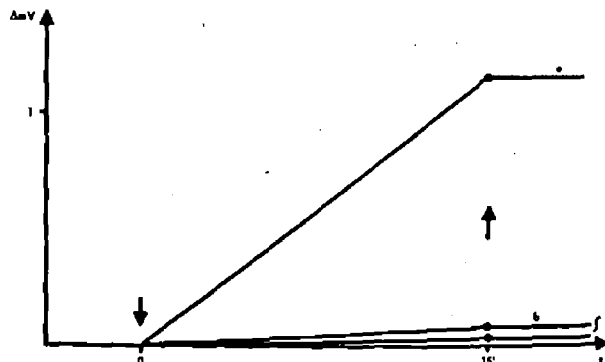


Figure 3. Changes of calomel electrode potential in a gamma radiation field

Arrows denote the beginning and the end of irradiation. a: The expected change of potential assuming that the temperature of the electrode is equal to that reached by the irradiated mercury, thermally insulated from the surrounding medium; b: Experimental results (indicating conditions intermediate between a and c; c: Change of potential expected, assuming that the electrode temperature is equal to that reached by the irradiated saturated potassium chloride solution, thermally insulated from the surrounding medium

amount of light passing through the samples. The amount of light received by the photocells is increased by the Čerenkov radiation emitted by the sample in the gamma radiation field. True extinction values of solutions are determined with the aid of the diagram shown in Fig. 2 [3]. All measurements are made in cells of very pure quartz which does not darken in the radiation field. The apparatus described serves not only for the measurement of absorption but also for the emission of light [4]. Altering the geometry of the system, i.e., sources against measuring optical axis,

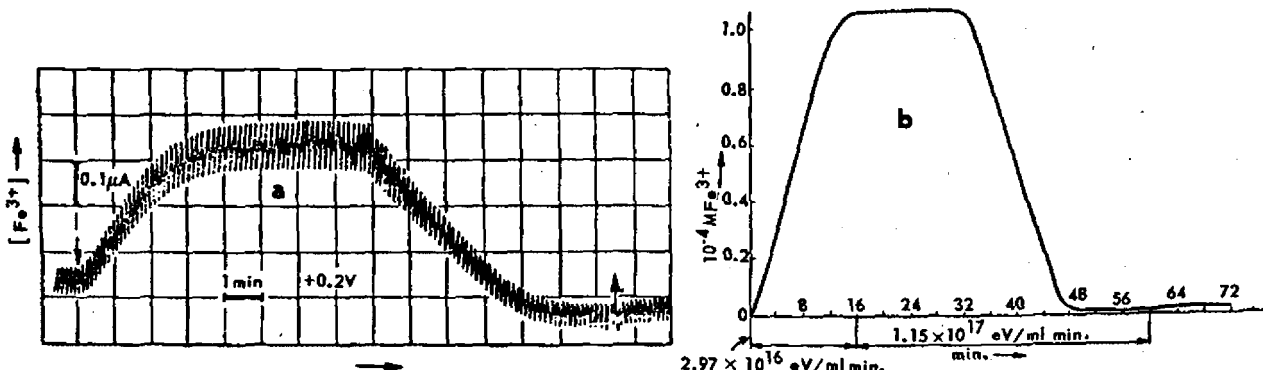


Figure 4. Comparison of kinetic curves for the oxidation and reduction of iron ions, obtained by polarographic (a) and by spectrophotometric (b) methods

makes it possible to distinguish between Čerenkov radiation and fluorescence. It is also possible to investigate the irradiation after-glow and its spectrum.

Polarography in the gamma radiation field

It was found that gamma radiation does not adversely affect the performance of a dropping mercury electrode, except minor effects due to local increases in temperature, which slightly enlarge the confidence interval of measurements [5]. The saturated calomel electrode was found to be a reference electrode with an excellent resistance to radiation. Its changes of potential (Fig. 3) are due to temperature effects only [6]. These changes have no significance in polarographical applications. A number of reference electrodes, e.g., silver-silver chloride, were found to be too sensitive to radiation.

Comparison between spectrophotometric and polarographic methods

The methods developed are complementary, although there are cases in which both may be applied for the determination of the same constituent (Fig. 4), according to [7]. Therefore, the accuracy of both methods could be proved and confidence intervals determined. The sensitivities of the methods are from 10^{-7} to 10^{-5} M/l, depending on the type of constituent. Accordingly, at a dose rate of 100 rad/s and a radiation yield of $G = 1$, kinetic curves may be studied for an experiment of a few seconds of irradiation. The sensitivity of measurement may be reduced by several orders of magnitude and it is possible, therefore, to obtain kinetic curves of chain reactions with $G = 10\,000$, as observed in our laboratory and described below.

The high sensitivity of measurement makes it possible, at the dose rates mentioned, to trap medium-stable radiolytic intermediates, namely, in the case of water, of hydrogen peroxide and indirectly of peroxy-organic compounds, occurring as intermediate species in chain oxidation reactions and, hence, to study after-effects.

RESULTS

Radiation chemistry of neutral iron(II) solutions

Our methods gave an insight into the radiation chemistry of neutral (pH 5 to 8.5) oxygen-free solutions of ferrous salts, i.e., in the range which has hitherto been considered impracticable for precise study. It was shown that the radiation yields of iron oxidation in such solutions are unusually low ($G_{Fe^{2+}} = 0.45$), lower than the molecular yield of hydrogen peroxide. Kinetic curves show only the reaction between ferrous ion and hydrogen peroxide, which proceeds with a large after-effect. Figure 5 shows the original triple-potential plot of three components, H_2O_2 , $Fe^{2+} + H^+$ and Fig. 6 the intensities of diffusion currents and concentration as a function of time [8].

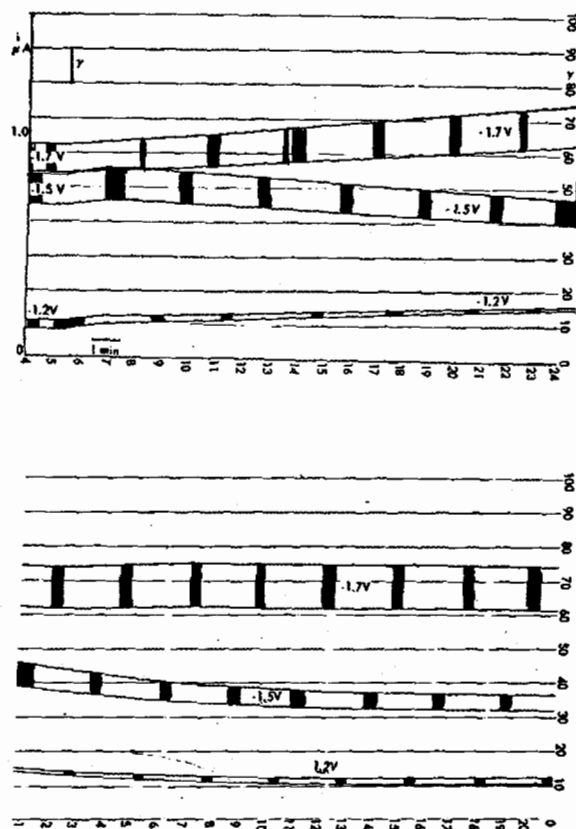


Figure 5. Plot of changes in diffusion currents of H_2O_2 , $Fe^{2+} + H_2O_2$ and $H^+ + Fe^{2+} + H_2O_2$ during and after irradiation

Iron(III) precipitates in this system as the colloidal hydroxide. Hydrogen ions are formed simultaneously with a radiation yield equal to a third of the iron (III) yield.

Radiation chemistry of aqueous iron(II, III) solutions containing organic compounds

The methods developed provided a means of investigating the mechanism of the reactions in irradiated solutions of iron salts and made possible the determination of data necessary for the calculation of the initial radiation yields of products in the so-called "chemical" stage of radiolysis.

The mechanism of reactions proceeding during the irradiation of acidic aerated aqueous solutions containing ferrous ions and organic compounds was to some extent explained in the nineteen-fifties [10-12]. Table I gives an up-to-date summary, taking into account recent work [13].

Among the reactions listed in Table I, only those between products of water radiolysis and iron ions or organic compounds are considered to be thoroughly checked and established. The remaining reactions and the mechanism as a whole are hypothetical and not verified by experiment.

It is evident from the system of nineteen reactions that the possibility of iron oxidizing depends only on

Table 1.

$\text{H}_2\text{O} \xrightarrow{\gamma}$	$e^-_{aq}, \text{OH}, \text{H}_2, \text{H}_2\text{O}_2$	(1)
$e^-_{aq} + \text{O}_2 \longrightarrow$	$\text{HO}_2 + \text{OH}^-$	(2)
$\text{Fe}^{2+} + \text{OH} \longrightarrow$	$\text{Fe}^{2+} + \text{OH}^-$	(3)
$^{\circ}\text{RH} + \text{OH} \longrightarrow$	$\text{R} + \text{H}_2\text{O}$	(4)
$\text{R} + \text{O}_2 \longrightarrow$	RO_2	(5)
$\text{Fe}^{2+} + \text{RO}_2 + \text{H}^+ \longrightarrow$	$\text{Fe}^{2+} + \text{RO}_2\text{H}$	(6)
$\text{Fe}^{2+} + \text{RO}_2\text{H} \longrightarrow$	$\text{Fe}^{2+} + \text{RO} + \text{OH}^-$	(7)
$\text{Fe}^{2+} + \text{RO} \longrightarrow$	$\text{Fe}^{2+} + \text{RO}^-$	(8)
$\text{RH} + \text{RO} \longrightarrow$	$\text{R} + \text{RHO}$	(9)
$\text{Fe}^{2+} + \text{HO}_2 + \text{H}^+ \longrightarrow$	$\text{Fe}^{2+} + \text{H}_2\text{O}_2$	(10)
$\text{Fe}^{2+} + \text{H}_2\text{O}_2 \longrightarrow$	$\text{Fe}^{2+} + \text{OH}^- + \text{OH}$	(11)
$\text{RO}_2\text{H} + \text{RH} \longrightarrow$	2RHO	(12)
$\text{HO}_2 + \text{RH} \longrightarrow$	$\text{R} + \text{H}_2\text{O}_2$	(13)
$\text{RO}_2 + \text{RH} \longrightarrow$	$\text{R} + \text{RO}_2\text{H}$	(14)
$\text{Fe}^{2+} + \text{R} + \text{H}_2\text{O} \longrightarrow$	$\text{Fe}^{2+} + \text{ROH} + \text{H}^+$	(15)
$\text{RH} + e^-_{aq} \longrightarrow$	$\text{R} + \text{H}_2 + \text{OH}^-$	(16)
$\text{Fe}^{2+} + e^-_{aq} \longrightarrow$	$\text{Fe}^{2+} + \text{H}_2\text{O}$	(17)
$e^-_{aq} + \text{H}_2\text{O}^+ \longrightarrow$	$\text{H} + 2 \text{H}_2\text{O}$	(18)
$\text{RH} + \text{H} \longrightarrow$	$\text{R} + \text{H}_2$	(19)

* R = radical (CH_3), CHCHOH or similar.

the presence of oxygen, provided that the concentration of organic compound is sufficiently high in comparison to the concentration of ferrous ions. The absolute rate constants of reactions (3) and (4) are, for the majority of simple organic substances, of the same order of magnitude. Therefore, it may be assumed that all hydrogen atoms and organic radicals are bound by oxygen, forming peroxy-radicals.

The use of a sufficient concentration of acid, making reaction (18) faster than (17), and possibly (16) for the reduction of ferric ions is impossible since reaction (15) cannot proceed without one of the substrates. Hence, it follows that the oxidation of iron will proceed either towards total transformation into iron (III) ions, if the initial concentration of ferrous ions is lower than the equivalent concentration of oxygen, or towards the exhaustion of the oxidizing peroxides, where there is a high concentration of iron. If the system has no contact with oxygen and the regeneration of peroxides cannot occur after irradiation, radicals "R" reduce ferric ions, due to the lack of species which inhibit reaction (15).

Experiments performed with our methods have fully confirmed the assumptions [14-17].

If the irradiated system initially contains ferrous ions, isobutyl alcohol, sulphuric acid 0.1*N* and oxygen in equilibrium with air, irradiation induces successively: (a) oxidation of ferrous ions to ferric ions, (b) radiation equilibrium, and (c) reduction of ferric ions to the ferrous valency.

All these processes depend on the concentration of ferrous ions, alcohol and oxygen. The diagram in Fig. 7 shows the course of events for a constant ($10^{-4}M$) ferrous ion concentration, but different alcohol concentrations.

These effects were investigated for an excess of iron in respect to oxygen, with concentrations of alcohol

and acid kept at a constant level (both 0.1*M*). The kinetic curves are shown in Fig. 8. An intermediate state of radiation equilibrium occurs if the number of ferrous ions is smaller than the maximum number which could be oxidized by the oxygen present.

As one oxygen molecule, in this case, oxidizes three ferrous ions and the initial concentration of oxygen is about $2 \times 10^{-4}M$, this constituent of the solution reacts with organic compounds only if the solution is low in iron (II). Until all oxygen is consumed, reduction reaction (15) cannot begin. If, however, the concentration of ferrous ions is higher than $6 \times 10^{-4}M$, radiation equilibrium does not occur and reduction begins immediately [15, 17].

It may be concluded that, in the mechanism quoted, oxygen is the deciding factor. In its presence the reduction of iron does not proceed, and in its absence the oxidation reaction is inhibited.

The dependence of oxidation and reduction processes on the alcohol concentration has two aspects. If the concentration of alcohol is too low (10^{-5} or $10^{-4}M$) to supply radicals "R" for the reduction, an apparent or secondary equilibrium occurs. If the concentration of alcohol increases, the reduction yield changes according to the increasing influence on the scavenging radicals H and OH of organic molecules. A similar effect determines the influence of the ferrous ion concentration.

The course of the observed phenomena was investigated also in $10^{-3}M$ solution in sulphuric acid [18]. The results are shown in Fig. 9. The increase in pH value, up to the limits at which it is still possible to observe iron (III) ion concentrations without taking hydrolysis into account, does not qualitatively change the course of reaction. The diminishment of the $G\text{Fe}^{3+}$ value is a phenomenon common to the increase in the pH value of the solution.

The results shown in Figs. 7, 8 and 9 were obtained with iso-butyl alcohol and cannot be arbitrarily transferred to other organic compounds, since the structure of the compound is an essential factor influencing the course of chemical processes.

The rôle of the structure of an organic compound was investigated on examples of primary, secondary and tertiary alcohols, ketones, mono- and dicarboxylic acids [20-22]. The course of ferrous ion oxidation proved to be only slightly dependent on the nature of the organic compound, at least for low concentrations of iron. The structure of the organic compound, however, determines the course of reduction. Radicals formed from acetic, propionic and butyric acids, as well as from dicarboxylic acids from malonic to primelic [21], and ketones [22] do not reduce ferric ions. The yields, if reduction takes place at all, depend on the structure of the organic compound. Reduction yields (G_{initial}) for different compounds are listed in Table 2.

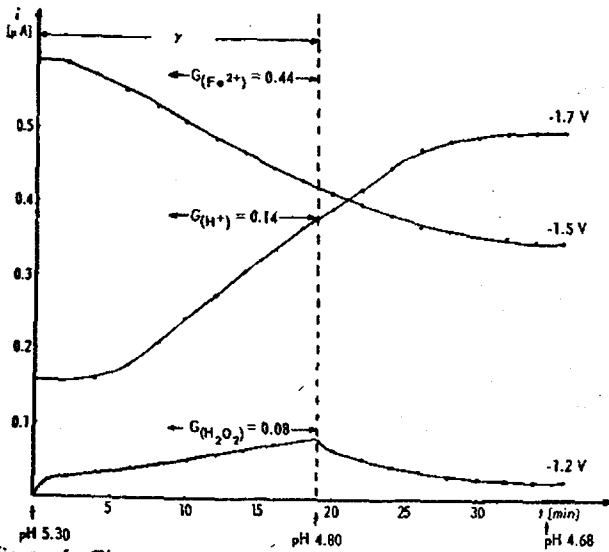


Figure 6. Changes in H_2O_2 , Fe^{2+} , $H_2O\cdot$ concentrations during the irradiation of a neutral ferrous salt solution

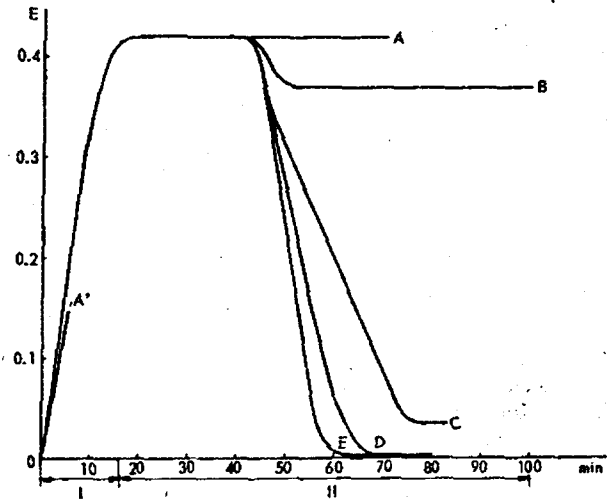


Figure 7. Dependence of ferric ion extinction on the absorbed dose

Solution $1 \times 10^{-4} M$ in $Fe(NH_4)_2(SO_4)_2$, $1 \times 10^{-1} N$ in H_2SO_4 , *i*-BuOH added in concentrations. A: 10^{-4} ; B: 10^{-4} ; C: 10^{-3} ; D: 10^{-2} ; R: $10^{-1} M$; A': Dosimetric solution. Dose rates: I: $2.97 \times 10^{16} eV/ml \text{ min}$; II: $1.15 \times 10^{17} eV/ml \text{ min}$. Measurement in 302μ , silica cell 2 cm

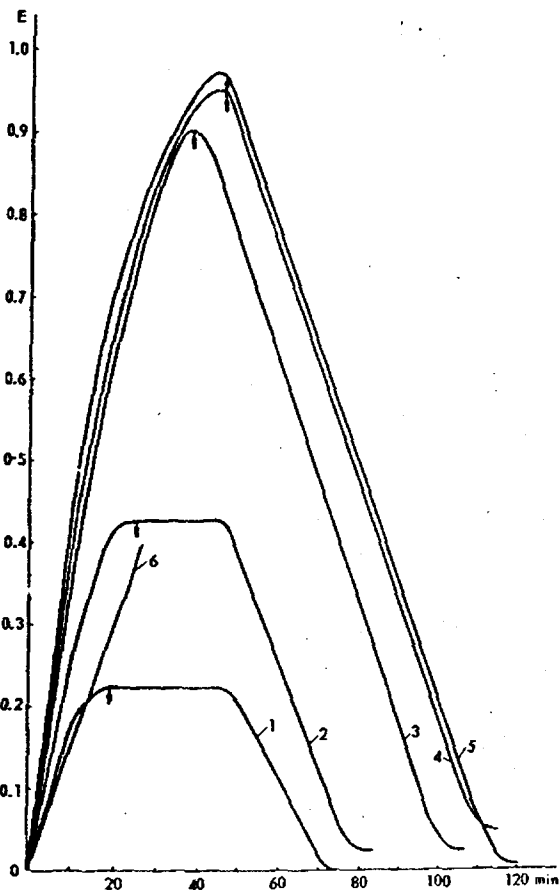


Figure 8. Dependence of ferric ion extinction on the absorbed dose

Solution $1 \times 10^{-3} M$ in *i*-BuOH, $1 \times 10^{-1} N$ H_2SO_4 , Fe^{2+} present in concentrations: 1: $10^{-4} M$; 2: $2 \times 10^{-4} M$; 3: $6 \times 10^{-4} M$; 4: $1 \times 10^{-3} M$; 5: $5 \times 10^{-3} M$ and $1 \times 10^{-2} M$; 6: Dosimetric solution. Dose rates up to (\downarrow) $2.74 \times 10^{16} eV/ml \text{ min}$, then $1.00 \times 10^{17} eV/ml \text{ min}$. Measured in 302μ , silica cell 1 cm

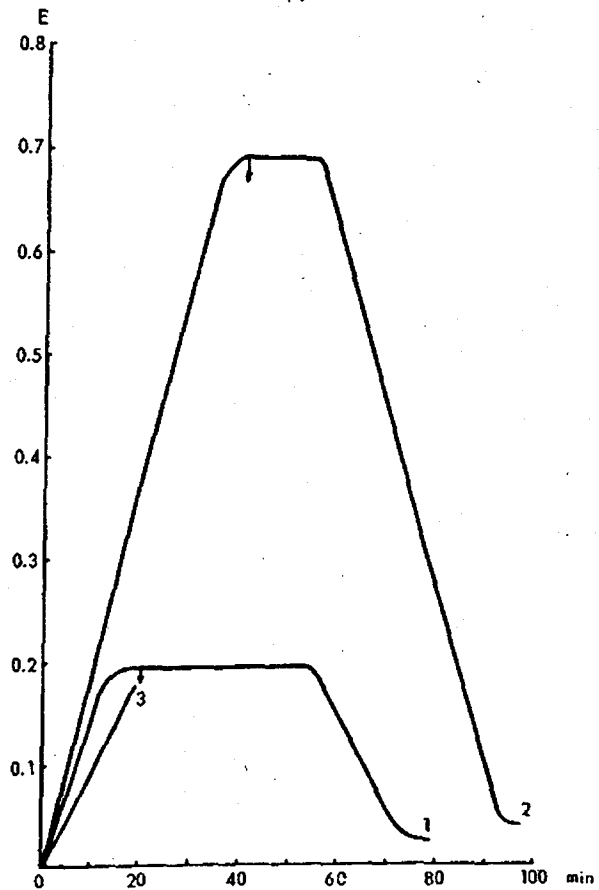


Figure 9. Dependence of ferric ion extinction on the absorbed dose

Solution $1 \times 10^{-3} M$ in *i*-BuOH, $1 \times 10^{-1} N$ in H_2SO_4 , Fe^{2+} present in concentrations: 1: $1 \times 10^{-4} M$; 2: $1 \times 10^{-3} M$; 3: Solution $1 \times 10^{-3} M$ in Fe^{2+} and 1×10^{-3} in H_2SO_4 . Dose rates up to (\downarrow) $2.41 \times 10^{16} eV/ml \text{ min}$, then $8.37 \times 10^{16} eV/ml \text{ min}$. Measurement in 302μ , silica cell 1 cm

Table 2.
Initial $G_{Fe^{2+}}$ values for different organic compounds

Organic compound	Concentration of organic compound	$G_{Fe^{2+}}$
Methanol	10^{-3}	3.47
Ethanol	10^{-3}	2.25
n-Propanol	10^{-3}	1.31
n-Butanol	10^{-3}	1.17
n-Pentanol	10^{-3}	1.17
n-Hexanol	10^{-3}	1.17
n-Hexane	1.6×10^{-3}	1.17
Isopropanol	10^{-1}	4.78
Cyclohexanol	10^{-1}	4.80
Tertiary isobutanol	10^{-1}	0.94
Formic acid	10^{-1}	3.75
Valeric acid	10^{-1}	0.84
Oxalic acid	10^{-1}	0.83

The results obtained indicate the importance of the hydrogen atom attached to the carbon atom C-1 in the organic molecule transformed into the reducing radical "R". The absence of this atom, in the case of alcohols, diminishes the yield and in the case of ketones and acids, renders the reduction of ferric ions totally impossible.

Another effect takes place at the same time; the C-H bond is activated by adjacent, negative hydroxyl groups. This phenomenon causes an increase in the reduction yield together with a decrease in length of the carbon atom chain. In the case of molecules with four or more carbon atoms, the radiation yield is the same as in the case of the corresponding hydrocarbon [20].

The molecule of an acid does not possess a hydrogen atom on the C-1 carbon atom (except formic acid) and the abstraction of hydrogen takes place from more distant carbon atoms. Therefore, the carboxylic group may be considered as an agent screening the ferric ion and an unpaired electron. The transfer of an electron and the reduction of an ion are possible only when dealing with a long-chain molecule, where the effect loses its importance. This may be observed in the case of valeric acid.

Oxalic acid is an exception because it decomposes during reaction (4), yielding CO_2 and a $-COOH$ radical, identical with that formed in the corresponding reaction of formic acid. Thus oxalic acid represents the only dicarboxylic acid able to produce an iron(III)-reducing radical. The remaining acids do not take part in such a reaction because of the shielding action of the carboxylic group [21].

Alkaline solutions

Using methods of direct analysis it is possible to discover and investigate chain-reactions in alkaline solutions, and to examine this neglected medium more closely. Chain-reactions in the sulphite-oxygen system

in a strong alkaline solution [23-25] reach a yield of the order of 10 000 O_2 molecules per 100 eV of absorbed energy. Figure 10 shows a typical curve for the removal of oxygen from a solution containing 0.02M sulphite and 0.001M oxygen in 1N sodium hydroxide. Investigation of the influence of several organic and inorganic compounds has shown that the chain is effectively suppressed, especially by compounds containing a readily detachable hydrogen atom. Suppression of the effects of molecular hydrogen and hydrogen peroxide suggests that the molecular products of water radiolysis, or their precursors, are responsible for limiting the chain length in a solution without additional solutes.

A study was also made of the formation of hydrogen peroxide in neutral (slightly acidic and slightly alkaline) pH ranges and it was shown that there is a sharp drop in the accumulation of H_2O_2 in the pH range 5 to 6.

CONCLUSIONS AND FUTURE TRENDS

Methodology conclusions

The development of direct continuous analytical methods applied to irradiated solutions has proved to be purposeful since it has made possible the following:

(a) The rapid tracing of kinetic curves showing radiation reactions, even of several components, and has, therefore, made possible the rapid investigation of the influence of different parameters and additives;

(b) The detection and determination of stable products occurring intermediately in the system, e.g., H_2O_2 ;

(c) The detection of concentration variations, even in cases where the direction changes, e.g., $Fe^{3+} \rightarrow Fe^{2+}$.

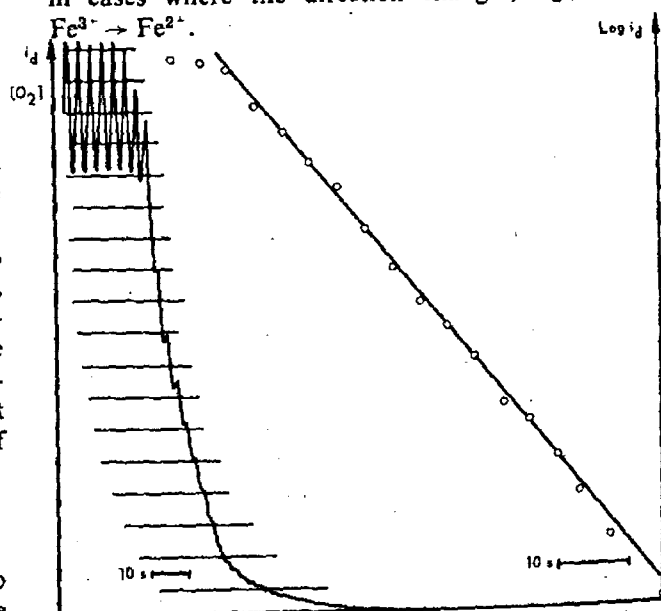


Figure 10. Kinetic curves of oxygen removal recorded polarographically in a gamma-irradiated solution of sodium sulphite, oxygen and sodium hydroxide

The direct methods already described are being constantly improved, and will be extended to investigations using other electro-chemical and optical methods, and further, will be used for research not only on new inorganic systems but also on non-aqueous liquids.

Direct investigation in the gamma field does not give an opportunity of detecting short-lived intermediate species. It has been found, however, that the polarographic method may be applied for investigations of transient species appearing in a comparatively high concentration during an accelerated electron beam pulse irradiation of high intensity. This is, therefore, a new method supplementary to spectrophotometric measurement, which has been used for this purpose over several years.

Research conclusions

Investigations carried out with direct observation methods during irradiation have given a better understanding of rapid oxidation reactions in alkaline solutions and of the mechanism of redox reactions in solutions containing ferrous and ferric ions and organic compounds.

The last mentioned investigations have shown that the change in the oxidation state of iron proceeds under irradiation at the expense of the organic compounds and oxygen present in the solution, thus indicating the importance of this effect in radiobiology. Although iron ions occur in the blood and other complex compounds, it appears that the systems investigated may present a simple *in vitro* model of chemical phenomena taking place during the irradiation of blood *in vivo*.

REFERENCES

1. Zagórski, Z. P., and Ney, W., *Nukleonika*, 5, 219-226 (1960).
2. Minc, S., and Zagórski, Z. P., *Nature*, 193, 1290-1291 (1962).

3. Zagórski, Z. P., and Kosek, S., *IBJ-Report No. 431, XVII*, 1-21 (1963).
4. Kosek, S., and Zagórski, Z. P., *IBJ-Report No. 488, XVII*, 1-5 (1963).
5. Zagórski, Z. P., *Nukleonika*, 5, 253-260 (1960).
6. Zagórski, Z. P., *Abhandlungen der deutschen Akademie der Wissenschaften zu Berlin* (1964), in print.
7. Broszkiewicz, R., and Minc, S., *Nukleonika*, 7, 483-486 (1962).
8. Minc, S., and Zagórski, Z. P., *Postradiation effects in solutions as observed by analytical methods applied directly to the irradiated sample*, 2nd Int. Congress Rad. Res. Harrogate, 1962.
9. Zagórski, Z. P., *IBJ-Report* (1964), in print.
10. Kolthoff, W. M., and Medalia, A. I., *J. Am. Chem. Soc.*, 71, 3784 (1949).
11. Dewhurst, H. A., *Trans. Faraday Soc.*, 48, 905 (1952).
12. Vermeil, C., *Ann. Chim.*, 1, 641 (1956).
13. Stolarczyk, L., *Nukleonika*, 7, 245-250 (1962).
14. Broszkiewicz, R., and Minc, S., *Direct observations of redox processes in aqueous solutions of iron ions during irradiation*, 2nd Int. Congress Rad. Res., Harrogate, 1962.
15. Broszkiewicz, R., *The transformations of ferrous and ferric ions in aqueous solutions directly observed during the irradiation with gamma-rays*, *Symp. Rad. Chem., Tihany*, 1962.
16. Broszkiewicz, R., and Minc, S., *Nukleonika*, 7, 251 (1962).
17. Broszkiewicz, R., *Nukleonika*, 8, 617-625 (1963).
18. Broszkiewicz, R., and Minc, S., *Nukleonika*, 8, 157-164 (1963).
19. Broszkiewicz, R., *Nukleonika*, in print.
20. Broszkiewicz, R., *Nukleonika*, 8, 627-634 (1963).
21. Broszkiewicz, R., *Nukleonika*, 8, 641-648 (1963).
22. Broszkiewicz, R., *Nukleonika*, in print.
23. Zagórski, Z. P., *Nukleonika*, 6, 587-599 (1961).
24. Zagórski, Z. P., and Minc, S., *Radiation chemistry of aqueous alkaline solutions of sulphites*, 2nd Int. Congress Rad. Res. Harrogate, 1962.
25. Zagórski, Z. P., *New experiments in the field of radiation chemistry of aqueous alkaline solutions*, *Symp. Radiation Chem., Tihany*, 1962.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АБХОТАЦІЯ—RESUMEN

A/112 Pologne

Méthodes d'étude continue
des modifications chimiques
dans des fluides soumis aux rayons gamma
par S. Minc

Des travaux sur des champs gamma intenses (de l'ordre de 100 rad/s) ont été exécutés à l'aide de deux méthodes: spectrophotométrie et polarographie. Les auteurs ont étudié tous les facteurs qui ont une

influence sur les mesures. Grâce à des mesures continues, ils ont obtenu des courbes cinétiques montrant les variations de la concentration de différentes espèces en fonction de la durée de l'irradiation et du temps écoulé depuis l'irradiation. La sensibilité des méthodes est de 10^{-7} à 10^{-5} M/l, selon la substance. Ainsi, pour un débit de dose de 100 rad/s et un rendement $G = 1$, il est possible de construire des courbes cinétiques pour une irradiation de seulement quelques secondes. On peut réduire la sensibilité des mesures de plusieurs ordres de grandeurs de manière à pouvoir

construire des courbes cinétiques pour des valeurs de G pouvant atteindre 10 000 (valeur trouvée par les auteurs dans leur laboratoire).

La grande sensibilité des mesures permet d'étudier la cinétique des produits intermédiaires de la radiolyse de stabilité moyenne, notamment (dans le cas de l'eau) celle de l'eau oxygénée ou, indirectement, celle des peroxydes de substances organiques qui interviennent comme produits intermédiaires dans les réactions d'oxydation en chaîne provoquées par des rayonnements.

Les méthodes mises au point pour l'analyse continue sous irradiation ont été utilisées dans des recherches sur plusieurs systèmes. Parmi ces systèmes on peut citer ceux qui permettent de classer les composés organiques selon leur réactivité dans des solutions irradiées.

Grâce à leurs méthodes, les auteurs ont pu étudier la radiochimie de solutions neutres (pH compris entre 5 et 8,5) de sels ferreux.

Par des méthodes d'analyse directe sous irradiation, ils ont pu aussi mettre en évidence et étudier les réactions en chaîne dans des solutions alcalines et examiner de plus près la radiochimie du domaine des pH élevés, qui avait été quelque peu négligé jusqu'à présent.

A l'aide de ces méthodes, les auteurs ont étudié les applications industrielles possibles de l'oxydation radioinduite du fer; ils ont obtenu des résultats positifs dans les cas où des composés organiques pouvaient être présents dans la solution.

A/112 Польша

Методы непрерывного исследования химических изменений в жидкостях под действием γ -излучения*

C. Минц et al.

Два метода — спектрофотометрический и полярографический — были применены для работы в сильных полях (порядка 100 рад/сек) γ -излучения. Были исследованы все факторы, влияющие на измерение. В результате непрерывного измерения получены кинетические кривые, показывающие изменение концентрации отдельных реагентов системы как функцию времени облучения и времени после облучения. Чувствительность методов в зависимости от вида компонента равна 10^{-7} — 10^{-5} М/л. Таким образом, при мощности дозы 100 рад/сек и радиационном выходе $G = 1$ можно получить кинетические кривые во время облучения в течение нескольких секунд. Уменьшая чувствительность измерения на несколько порядков,

* Выполнено по контракту № 43 с Международным агентством по атомной энергии.

можно получить кинетические кривые для $G = 10\ 000$. Такие реакции были исследованы в лаборатории авторов.

Высокая чувствительность измерений позволяет исследовать кинетику промежуточных продуктов радиолитической средней стабильности, как, например, в случае воды — кинетику перекиси водорода или косвенным путем — кинетику перекисных органических веществ, являющихся промежуточными продуктами в цепных реакциях радиационного окисления.

Пользуясь разработанными методами непрерывного анализа во время облучения, авторы исследовали ряд систем. Изученные органические соединения были классифицированы по их реакционной способности в облученных растворах.

Использованные методы дали возможность изучить радиационную химию нейтральных (pH = 5—8,5) растворов солей железа.

Методы непосредственного анализа во время облучения позволили авторам определить и изучить цепные реакции в щелочных растворах и изучить радиационную химию в средах с высоким pH, которым до сих пор уделялось очень мало внимания.

С использованием разработанных авторами методов были исследованы перспективы промышленного применения реакции радиационного окисления железа. Положительные результаты получены в случае радиационного окисления железа в растворах, в которых могут присутствовать органические вещества.

A/112 Polonia

Métodos de observación continua de cambios químicos en líquidos sometidos a irradiación gamma

por S. Minc et al.

Dos métodos, el espectro fotométrico y el polarográfico, se han seguido en los trabajos en campos intensos de irradiación gamma (del orden de 100 rad/s). Se investigaron todos los factores que influyen sobre las mediciones. Como resultado de la medición continua, se obtuvieron curvas cinéticas que mostraban el cambio de concentración de los diferentes componentes del sistema en función del tiempo de irradiación y del tiempo transcurrido después de ésta. La sensibilidad de los métodos varía entre 10^{-7} y 10^{-5} M/l, según sea la naturaleza de la componente. De esta manera, para una intensidad de dosis de 100 rad/s y un rendimiento de la radiación $G = 1$, se pueden seguir las curvas cinéticas en el curso de la irradiación durante algunos segundos. Si se disminuye la precisión de la medida en algunos órdenes de magnitud, es posible conseguir curvas cinéticas para $G = 10\ 000$. Tales reacciones se investigaron en nuestro labora-

torio. La gran sensibilidad de las mediciones permite estudiar la cinética de los productos intermedios radiolíticos semiestables, como por ejemplo, en el caso del agua, la del agua oxigenada o, indirectamente, de los peróxidos orgánicos, que aparecen como productos intermedios en las reacciones en cadena de oxidación radiactiva.

Valiéndonos de los métodos, puestos a punto, de análisis continuo durante la irradiación, investigamos toda una serie de sistemas. Entre ellos, se estudiaron sistemas que permiten clasificar los compuestos orgánicos atendiendo a su reactividad en disoluciones irradiadas. Nuestros métodos permitieron estudiar

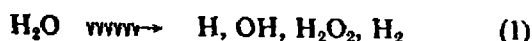
en parte la química de la radiación en el caso de soluciones neutras ($\text{pH} = 5-8,5$) de sales de hierro. Los métodos de análisis directo durante la irradiación hicieron posible encontrar y estudiar reacciones en cadena en las soluciones alcalinas, como también examinar la química de la radiación para valores grandes del pH, campo al que se había prestado hasta ahora poca atención.

Investigamos con nuestros métodos las perspectivas de una utilización industrial de la oxidación del hierro por la radiación, habiendo obtenido resultados positivos en casos en los que puede haber presentes en solución sustancias orgánicas.

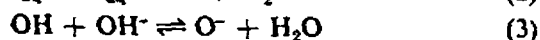
Radiation chemistry in alkaline solutions

By B. Jeżowska-Trzebiatowska and J. Kaleciński *

The concentration of hydrogen and hydroxide ions in aqueous solutions has an undeniable effect upon the mechanism of radiolysis. This effect is due to the specific properties of scavengers, which in alkaline solutions may occur in a different form (partial or complete hydrolysis) from that of acid solutions, as well as to the original products of radiolysis. These products, formed in the reaction:



may occur in various acidic and basic forms between which an equilibrium state establishes itself depending on pH of the solution. This may be illustrated by the following reactions:



The basic forms of the original products of radiolysis may have different oxidation-reduction properties from those appearing in acid forms. This, of course, affects the radiolysis mechanism of particular scavengers.

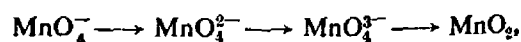
Research studies carried out so far have dealt mainly with acid and neutral solutions. Alkaline solutions involve more experimental difficulties due to hydrolysis reactions and have not, in principle, been discussed. Therefore, studies have been carried out on the radiolysis of alkaline solutions using scavengers which do not undergo hydrolysis. These are the oxidation-reduction systems of the transition metals manganese and chromium and also the system $\text{I}^- - \text{I}_2$ [1-5].

All oxy-anions of manganese and chromium are relatively stable in an alkaline medium and hence may be used as good standard systems for studies on the radiolysis mechanisms of alkaline solutions. The I^- in alkaline solution is also stable. In this case, however, certain interpretation difficulties occur since radiation oxidation of I^- to I_2 does not proceed to finality but merely to a state of equilibrium. Our studies dealt with an extensive pH range, from neutral to concentrated alkaline solutions. The results have

made it possible to calculate radical and molecular yields as well as to draw certain conclusions concerning the general radiolysis mechanism of alkaline solutions.

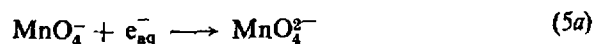
THE REDUCTION OF MANGANESE OXY-ANIONS

Manganese oxy-anions in alkaline solutions irradiated with gamma rays are reduced. The reactions proceed consecutively:

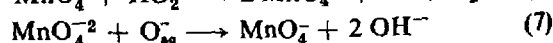
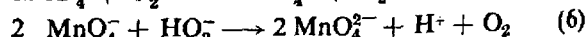
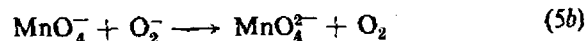


and each successive stage occurs only after the one previous is virtually completed. The reduction mechanisms in particular stages were successfully studied by a suitable selection of hydroxide concentrations. It is most convenient to investigate first stage reduction in solutions where the OH^- concentration does not exceed 1.5M [3]. The thermal reaction between MnO_4^- and OH^- ions is then slow enough [6] and may be easily taken into account while measuring the permanganate and manganate concentration changes induced by gamma irradiation. Some typical plots of MnO_4^- and MnO_4^{2-} concentrations against irradiation time are shown in Fig. 1.

As shown in Fig. 1, in the first reaction stage the reduction of MnO_4^- proceeds completely only to MnO_4^{2-} and both concentrations are a linear function of irradiation time. The following mechanism explains this reaction course:



or in the presence of oxygen:



The primary products of radiolysis formed in reaction (1) react very quickly in accordance with the equilibrium reactions (2)-(4) and with scavengers (in this case the permanganate) in their basic forms.

In the second stage, after the reduction of permanganate is virtually complete, further irradiation of the solution results in a consequent reduction of manganate to manganese dioxide (Fig. 1). At this stage the

* Institute of Physico-chemical Structural Research, Polish Academy of Sciences, Wrocław.

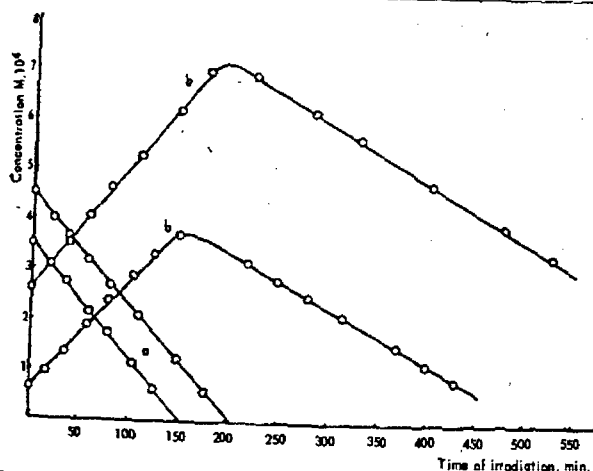


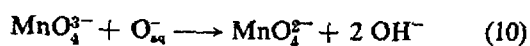
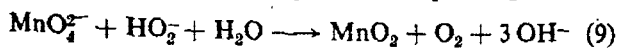
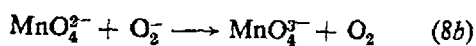
Figure 1. MnO_4^{2-} a and MnO_4^{3-} b concentrations plotted against irradiation time. 0.6N KOH solution

reaction proceeds through hypomanganate which, however, undergoes rapid disproportionation at a relatively small concentration of OH^- ions [7]. As a result, MnO_2 is formed and manganate is regenerated.

Studies on the reduction of manganate to hypomanganate were carried out in concentrated solutions of hydroxides (OH^- concentration above 7 mole per litre [3]). Under these conditions the thermal reaction between MnO_4^- and OH^- ions, as well as the disproportionation reaction of hypomanganate, are very slow [7, 8] and their effect on MnO_4^{2-} or MnO_4^{3-} concentration changes during an irradiation period is negligible. A typical reaction course is shown in Fig. 2. It shows that in concentrated alkaline solutions, manganate is reduced under the influence of gamma irradiation mainly to hypomanganate and only in small amounts to MnO_2 . This is due to the bielectronic reduction of manganate by a dissociated form of hydrogen peroxide. A suggested mechanism is shown below:



and in aerated solutions:



Reactions (10) and (11) are competitive and their respective predominance depends on the OH^- concentration. At lower OH^- concentrations, reaction (11) is very rapid and predominates over reaction (10). Under these circumstances OH radicals react in accordance with reaction (7).

Studies on the radiolysis of hypomanganate in concentrated hydroxide solutions [4] have shown that a drop in the hypomanganate concentration is a linear

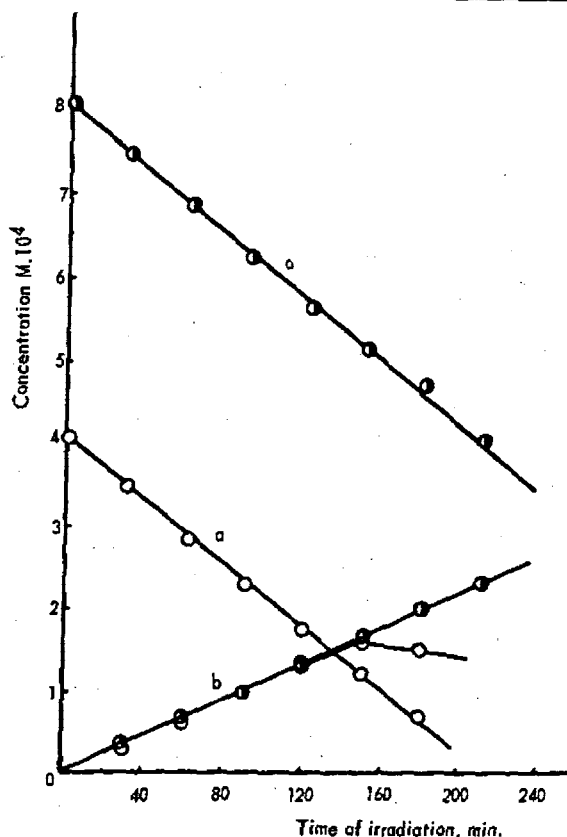
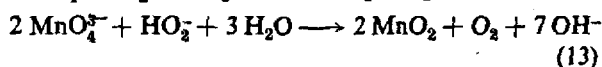
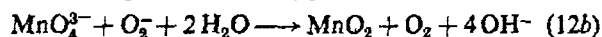


Figure 2. MnO_4^{2-} a and MnO_4^{3-} b concentrations as function of irradiation time. 7.0N NaOH solution

function of irradiation time. The mechanism is illustrated below:



or in the presence of oxygen:



The dissociated form of an OH radical reacts in accordance with reaction (10), and the manganate thus formed undergoes an immediate reduction in accordance with reaction (8).

From the mechanisms given above a general equation, giving the yield of manganese oxy-anion reduction, may be derived by applying the theory of steady-states:

$$G(-\text{MnO}_4^{2-}) = G_{\text{H}} + 2 G_{\text{R},\text{O}_2} - G_{\text{OH}}, \quad (14)$$

(where $n = 1, 2, 3$)

expressed in equivalents per 100 eV. The above statement shows clearly that the reduction yield of all manganese oxy-anions does not depend either on the oxidation state of manganese or on the hydroxide concentration or its type.* This conclusion is strongly supported by experimental results (Table 1).

* In Eq. (14), the OH^- concentration does not occur, but only the primary yields which are independent of OH^- ion concentration, as is shown by an analysis of the experimental results.

Table 1. Reduction yields of manganese oxy-anions

Reactions	Concentrations of OH ions <i>M</i>	Yields ions per 100 eV	Yields equivalents per 100 eV
$\text{MnO}_4^- \longrightarrow \text{MnO}_4^{2-}$	0.07 - 1.2	$G(-\text{MnO}_4^-) = 1.75 \pm 0.07$ $G(\text{MnO}_4^{2-}) = 1.72 \pm 0.07$	$G(-\text{MnO}_4^-) = 1.74 \pm 0.08$
$\text{MnO}_4^{2-} \longrightarrow \text{MnO}_2$	0.07 - 1.2	$G(-\text{MnO}_4^{2-}) = 0.85 \pm 0.03$	$G(-\text{MnO}_4^{2-}) = 1.70 \pm 0.06$
$\text{MnO}_4^{2-} \begin{cases} \longrightarrow \text{MnO}_4^- \\ \longrightarrow \text{MnO}_2 \end{cases}$	7.0 - 13.5	$G(-\text{MnO}_4^{2-}) = 1.30 \pm 0.04$ $G(\text{MnO}_4^-) = 0.79 \pm 0.05$	$G(-\text{MnO}_4^{2-}) = 1.81 \pm 0.09$
$\text{MnO}_4^{2-} \longrightarrow \text{MnO}_2$	7.0 - 13.5	$G(-\text{MnO}_4^{2-}) = 1.87 \pm 0.10$	$G(-\text{MnO}_4^{2-}) = 1.87 \pm 0.10$

Reduction yields of manganese oxy-anions in alkaline solutions are small in comparison with considerably greater yields in neutral and acid solutions [2, 9, 10], e.g., in neutral solutions at $5 \times 10^{-4} M$ MnO_4^- the reduction yield is equal to about 15 equivalents per 100 eV, and are due to the fact that OH radicals, or rather their dissociated form, react only as oxidizers, i.e., they oxidize all manganese oxy-anions in which manganese is in a state lower than +7 oxidation. In neutral and acid solutions OH radicals appear as direct agents reducing MnO_4^- ions. The reduction takes place through a series of consecutive reactions initiated by linking the OH radical to MnO_4^- . The resulting complex MnO_4OH^- reacts with H_2O_2 and H_2O , yielding MnO_4^{2-} ions. Such a role of OH radicals explains the increase in $G(-\text{MnO}_4^-)$ with the increase in the initial concentration of permanganate. This relationship is given by an empirical equation:

$$G(-\text{MnO}_4^-) = 1.7 + 1.62 \times 10^2 [\text{MnO}_4^-]^{1/2} \quad (15)$$

A similar equation was also derived theoretically:

$$3G(-\text{MnO}_4^-) = G_{\text{H}} + G_{\text{H}_2\text{O}_2} + (G_{\text{OH}} - G_{\text{H}_2\text{O}_2})^2 + 2K[\text{MnO}_4^-](G_{\text{H}_2\text{O}_2} + 3G_{\text{OH}})^{1/2}, \quad (16)$$

where *K* depends only on the reaction rate constants and dose rate.

By the extrapolation of the above dependencies to zero concentration of permanganate, a total sum of radical yields for the radiolysis of pure water may be determined: $G_{\text{H}} + G_{\text{OH}} = 5.1$. This value is in agreement with the generally accepted values of radical yields [11].

OXIDATION OF IODIDES

The twofold oxidation-reduction role of OH radicals was pointed out during studies on the gamma radiolysis of alkaline and neutral I^- solutions [5]. The system $\text{I}^- - \text{I}_2$ is a typical equilibrium system, i.e., a system in which the gamma-induced oxidation of I^- to I_2 does not proceed to finality but only to equilibrium. The amount of I_2 formed (or in alkaline solutions an equivalent amount of I_2^-) complies with an empirical equation:

$$\ln \frac{[\text{I}_2]_{\infty}}{[\text{I}_2]_{\infty} - [\text{I}_2]} = k t \quad (17)$$

where:

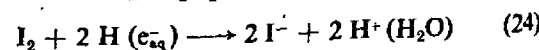
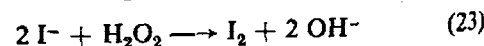
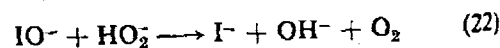
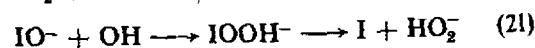
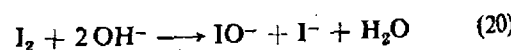
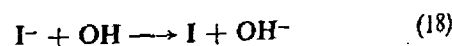
k: first order kinetic constant equal to about $2.10 \cdot 10^{-3} \text{ min}^{-1}$

t: irradiation time

$[\text{I}_2]_{\infty}$: concentration of iodine in the equilibrium after infinite time of irradiation (in alkaline solutions an equivalent amount of I_2^-)

The I_2 concentration in equilibrium rises with a higher initial I^- concentration and decreases with the increase in pH. A similar relationship may also be observed for initial yields $G_0(\text{I}_2)$ as shown in Table 2.

Low initial yields and their dependence on the initial concentrations of I^- and OH^- suggest that OH radicals, as in the case of permanganate reduction, display some reducing properties. Their role in the radiolysis mechanism of the system $\text{I}^- - \text{I}_2$ is shown in the scheme below:



Reactions (18) to (24) as well as reaction (4) give the equation:

$$\ln \frac{[\text{I}_2]_{\infty}}{[\text{I}_2]_{\infty} - [\text{I}_2]} = \frac{K G_{\text{H}_2\text{O}_2} - \frac{1}{2}(G_{\text{H}} - G_{\text{OH}})}{[\text{I}_2]_{\infty}} t \quad (25)$$

which agrees with the empirical equation (17). The value of *K* depends on the initial concentration I^- and on the reaction rate (4) in accordance with the equation:

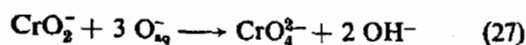
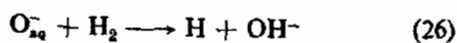
$$K = \frac{k_{19}[\text{I}^-] - k_4}{k_{19}[\text{I}^-] + k_4}$$

This may explain the increase of $G_0(I_2)$ with the increase of the initial I^- concentration, and if reaction (3) is taken into account, explains the fact that there are lower values of $G_0(I_2)$ in alkaline solutions than in neutral solutions (Table 2).

REDUCTION OF CHROMATES

The dependence of chromium(VI) reduction yields on the pH of the solution, studied by Proskurnin *et al.* [12], is also evidence that OH radicals may act as direct reducing agents. This happens, however, only in neutral solutions where Cr^{VI} reduction yield reaches a value of 7 equivalents per 100 eV. This yield is much lower in acid solutions (2.4 equivalents per 100 eV [13]) and drops sharply with the increase in pH. Studies on alkaline chromate solutions in which the OH^- concentration exceeded 1M and saturated with air or argon, have shown that under such conditions chromate is not reduced. On the contrary, oxidation of chromite to chromate takes place with an initial yield of about 0.5 ions per 100 eV. The yield decreases, however, with an increase in irradiation time and with a lowering of chromite concentration.

The radiation reduction of chromates in alkaline solutions takes place only when the solutions are saturated with hydrogen. The reduction rate, however, decreases significantly with irradiation time. It follows that the instantaneous yield, i.e., the actual yield at any time, decreases considerably with irradiation time. This may be explained by competition between reactions (26) and (27).



The CrO_4^{2-} ions are reduced by the H radicals formed

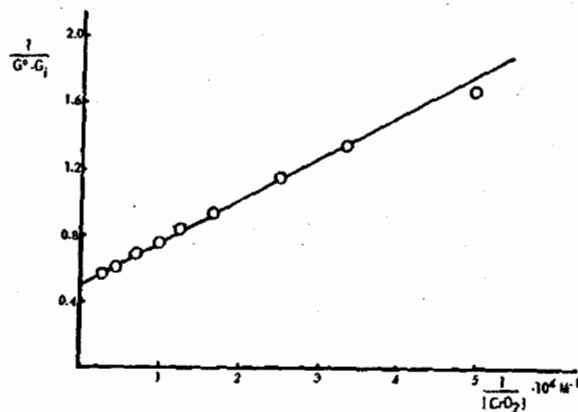
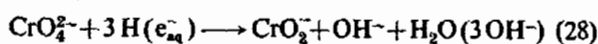


Figure 3. Graphic solution of Eq. (30), 3N KOH solution

in reaction (26) and by (e_{aq}^-) formed directly during radiolysis:



On the basis of the above mechanism, an equation expressing the instantaneous yield of chromate reduction was derived:

$$G(-CrO_4^{2-}) = \frac{1}{3}(G_R + G_{OH} - 2G_{H_2O_2}) - \frac{2k_{22}G_{OH}[CrO_2^-]}{3k_{22}[CrO_2^-] + k_{21}[H_2]} \quad (29)$$

which indicates that the yield decreases with the increase of chromite concentration. This means that the instantaneous yield decreases with irradiation time, which is in agreement with direct experimental data.

Transformation of Eq. (29) gives:

$$\frac{1}{G^0 - G_1(-CrO_4^{2-})} = \frac{3}{2G_{OH}} + \frac{k_{21}[H_2]}{2G_{OH}k_{22}[CrO_2^-]} \quad (30)$$

where: $G^0 = \frac{1}{3}(G_R + G_{OH} - 2G_{H_2O_2})$

Table 2. Equilibrium concentrations of I_2 , values of k and initial yields of I_2

	Concentration of KOH M	Initial concentrations of I^- M					
		1.00	0.50	0.20	0.10	0.05	0.02
$[I_2]_{\infty} 10^4 M$	0.00	—	4.00	0.80	0.63	0.58	0.44
$k 10^3 \text{ min}^{-1}$		—	1.17	2.60	2.42	2.38	2.95
$G_0(I_2)$		0.75	0.41	0.18	0.13	0.12	0.11
$[I_2]_{\infty} 10^4 M$	0.05	—	3.50	0.450	0.360	0.230	0.180
$k 10^3 \text{ min}^{-1}$		—	0.93	1.87	1.61	1.52	1.37
$G_0(I_2)$		0.75	0.29	0.074	0.051	0.031	0.022
$[I_2]_{\infty} 10^4 M$	0.10	—	3.00	0.35	0.235	0.185	0.165
$k 10^3 \text{ min}^{-1}$		—	1.02	1.41	1.92	1.60	1.46
$G_0(I_2)$		0.75	0.27	0.043	0.039	0.026	0.017
$[I_2]_{\infty} 10^4 M$	0.50	—	2.20	0.30	0.23	0.18	0.13
$k 10^3 \text{ min}^{-1}$		—	1.70	1.63	1.70	1.36	1.45
$G_0(I_2)$		0.75	0.32	0.043	0.034	0.022	0.017
$[I_2]_{\infty} 10^4 M$	1.00	—	1.90	0.28	0.18	0.10	0.09
$k 10^3 \text{ min}^{-1}$		—	1.28	1.97	2.13	1.51	0.99
$G_0(I_2)$		0.75	0.21	0.048	0.035	0.013	0.011

The agreement between Eq. (30) and experimental data is shown in Fig. 3 and proves the validity of the mechanism assumed.

DISCUSSION

On the basis of the radiation reduction of manganate in concentrated alkaline solutions, the differences of the primary radical yields and molecular yields were successfully calculated. The following relationships are obtained from the reaction mechanism quoted above in reactions (8), (9), and (10) and the experimental results in Table 1:

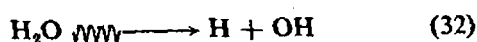
$$G(-\text{MnO}_4^{2-}) = G_{\text{H}} + G_{\text{H}_2\text{O}_2} - G_{\text{OH}} = 1.30 \pm 0.04 \quad (31)$$

$$G(\text{MnO}_4^{3-}) = G_{\text{H}} - G_{\text{OH}} = 0.79 \pm 0.05$$

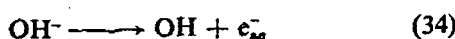
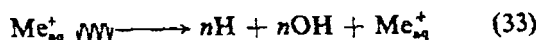
From the above equations is directly derived: $G_{\text{H}_2\text{O}_2} = 0.51 \pm 0.09$. Taking into account the equation of material balance of radiolysis: $G_{\text{H}} + 2G_{\text{H}_2\text{O}_2} = G_{\text{OH}} + 2G_{\text{H}_2\text{O}}$, the yield of molecular hydrogen was calculated: $G_{\text{H}_2} = 0.12 \pm 0.11$.

On the basis of Eq. (30) and Fig. 3 the yield of OH radicals in 3N KOH solutions was determined, which amounts to: $G_{\text{HO}} = 3.00 \pm 0.03$. Taking into account this yield, we obtain from Eq. (31): $G_{\text{H}} = 3.79 \pm 0.08$.

Recently, several authors in their studies on the radiolysis of alkaline solutions were reported to have applied certain other scavengers which do not undergo hydrolysis such as: $\text{PtCl}_6^{2-} - \text{PtCl}_4^{2-}$ [14], $\text{N}_2\text{O} - \text{Fe}(\text{CN})_6^{3-} - \text{Fe}(\text{CN})_6^{4-}$ [15] systems and BrO^- [16]. These authors limited their investigations to weak alkaline solutions, not exceeding a concentration of 1M. It is, however, interesting that our results from a wide range of OH^- concentrations are in agreement with the results for weak alkaline solutions. It is, therefore, clear that the general radiolysis mechanism of alkaline solutions is the same for the entire range of OH^- concentrations. This conclusion is endorsed by the fact that $G(-\text{MnO}_4^{2-})$ is independent of the concentration of hydroxide or its type. The general conclusion may thus be drawn that Me_{aq}^+ and OH^- ions resulting from the electrolytic dissociation of hydroxides react to gamma radiation in the same way as H_2O molecules, i.e., they supply reducing and oxidizing radicals which react with scavengers. It might thus be assumed that, except for the primary process:



the process is possible in alkaline solutions which roughly comprise the reactions:

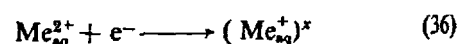


Reaction (34) arises without doubt, but reaction (33) requires some explanation. The first stage of the process in (33) will undoubtedly be an electron ejection:

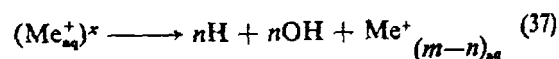


This process is feasible not only because of a Compton effect, but also due to the interaction of delta electrons since their mean kinetic energy (about 75 eV [17]) considerably exceeds the second ionization potentials of the respective alkali metals.

The electron ejected from a hydrated cation Me_{aq}^+ cannot surmount the electrostatic field of its parent cation and will return to its parent ion within ca. 10^{-13} s:



Reaction (36) results in the formation of a strongly excited $(\text{Me}_{\text{aq}}^+)^*$ ion which will have an excess energy equal to the second ionization potential of an alkali metal. In the case of sodium and potassium, the values are 47.3 and 31.8 eV respectively. Since the dissociation energy of formation of H and OH radicals from an H_2O molecule is equal to about 5.1 eV, even if there are several H_2O molecules in a solvation sphere, the excess energy is still sufficient to bring about the dissociation of at least one H_2O molecule to form radicals:



The H and OH radicals are formed in one reaction according to Eq. (37) and are thus in the same Franck-Rabinovich cage, which favours their recombination. They can react with scavengers only if the concentration of the latter is sufficiently high, i.e., of the order of 1M.

In contradistinction to the above, a small concentration of scavengers is sufficient to capture the OH radicals and electrons formed in reaction (34), because the recombination of electrons with OH radicals is improbable in view of the considerable distance between those species, i.e., no electrostatic attracting field. The electrons formed in reaction (34) undergo hydration and exist in this form in solution until they react with scavengers. They may be identified by the pulse-radiolysis method [18] or by the EPR method [19] together with the electrons formed during the radiolytic decomposition of H_2O molecules. The spatial distribution of electrons and of OH radicals formed in reaction (34) resembles the spatial distribution of radicals during the radiolysis of pure water, suggested by Platzman [20]. On the contrary, the processes presented approximately in reaction (33) are analogous to the pattern for pure water, as suggested by Magee *et al.* [21].

REFERENCES

1. Jeżowska-Trzebiatowska, B., and Kaleciński, J., *Bull. Acad. Polon. Sci. Ser. Sci. Chim.*, **8**, 27 (1960).
2. Jeżowska-Trzebiatowska, B., and Kaleciński, J., *ibid.*, **9**, 791 (1961).
3. Jeżowska-Trzebiatowska, B., and Kaleciński, J., *ibid.*, **10**, 241 (1962).
4. Kaleciński, J., and Jeżowska-Trzebiatowska, B., *ibid.*, **11**, 531 (1963).
5. Jeżowska-Trzebiatowska, B., Kaleciński, J., and Jędrzejowski, W., *ibid.*, **10**, 367 (1962).
6. Jeżowska-Trzebiatowska, B., and Kaleciński, J., *Bull. Acad. Polon. Sci., Ser. Sci. Chim. Geol. et Geogr.*, **7**, 405 (1959).
7. Jeżowska-Trzebiatowska, B., and Nawojka, J., *Bull. Acad. Polon. Sci., Ser. Sci. Chim.*, **10**, 361 (1962).
8. Wrońska, M., and Baranowska, M., in *Theory and Structure of Complex Compounds*, p. 645, Pergamon Press, Wydawn. Naukowo-Techn., Warszawa (1963).
9. Simonoff, G., *J. Chim. Phys.*, **55**, 547 (1958).
10. Daniels, M., *J. Phys. Chem.*, **64**, 1839 (1960).
11. Allen, A. O., in *The Radiation Chemistry of Water and Aqueous Solutions*, p. 47, D. Van Nostrand Co. Inc., New Jersey (1961).
12. Proskurnin, M. A., Orekhov, V. D., and Chernova, A. I. *Zh. Fiz. Khim.*, **35**, 920 (1961).
13. Anderson, A. R., and Farhatziz, *Trans. Faraday. Soc.*, **59**, 1299 (1963).
14. Haissinsky, M., and Patigny, P., *J. Chim. Phys.*, **59**, 675 (1962).
15. Dainton, F. S., and Watt, W. S., *Proc. Roy. Soc. (London), Ser. A*, **275**, 447 (1963).
16. Check, C. H., and Linenbom, V. J., *J. Phys. Chem.*, **67**, 1856 (1963).
17. Hochanadel, C. J., in *Comparative Effects of Radiation*, p. 160, Burton, M., Kirby-Smiths, J. S., and Magee, J. L., Eds, John Wiley and Sons Inc.
18. Hart, E. J., and Boag, J. W., *J. Am. Chem. Soc.*, **84**, 4090 (1962).
19. Ershov, B. G., Pikaev, A. K., Glazunov, P. Ya., and Spitsyn, V. I., *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, **149**, 363 (1963).
20. Platzman, R. L., in *Radiation Biology and Medicine*, pp. 15-72, Claus, W. D., Ed., Addison Wesley, New York (1958).
21. Samuel A. H., and Magee, J. L., *J. Chem. Phys.*, **21**, 1080 (1953).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/113 Pologne

Radiochimie en solution alcaline

par B. Jeżowska-Trzebiatowska et J. Kaleciński

Les oxy-anions de manganèse se prêtent bien à l'étude de la radiolyse des solutions alcalines, car les hydrolyses qui compliquent la réaction ne se produisent pas dans ce cas. La réduction du permanganate sous l'action des rayons gamma (^{60}Co d'une activité d'environ 200 Ci) s'opère dans l'ordre suivant: $\text{MnO}_4^- \rightarrow \text{MnO}_4^{2-} \rightarrow \text{MnO}_4^{3-} \rightarrow \text{MnO}_2$, chaque étape commençant après l'achèvement complet de la précédente. En choisissant des concentrations appropriées d'ions OH^- , on a pu étudier séparément chacune de ces étapes. Le rendement de la réaction en solution alcaline aux différentes étapes peut s'exprimer par la formule suivante

$$G(\text{MnO}_4^{n-}) = G_{\text{H}} + 2G_{\text{H}_2\text{O}_2} - G_{\text{OH}}$$

$$\approx 1,9 \text{ équivalent par } 100 \text{ eV}$$

Ce rendement est sensiblement inférieur à celui que l'on obtient avec des solutions neutres; cela s'explique par le fait qu'en solution alcaline les radicaux OH ont un comportement typique d'agents oxydants: ils oxydent tous les oxy-anions de manganèse dans lesquels le métal se trouve à un degré d'oxydation inférieur à +7. Dans les solutions neutres, les radicaux OH participent directement à la réduction du permanganate; c'est ce phénomène qui provoque l'augmentation du rendement par rapport aux solutions alcalines et fait que le rendement est fonction de la concentration initiale du permanganate. Le rendement

peut alors s'exprimer par la formule empirique $G(\text{MnO}_4^-) = 1,7 + 1,62 \times 10^2 [\text{MnO}_4^-]^{1/2}$, qu'il est également possible d'établir par la théorie.

Le double rôle des radicaux OH comme agents oxydants et réducteurs a été aussi confirmé par la radiolyse de solutions d'iodure de potassium. Les radicaux OH oxydent les ions I^- en I_2 et réduisent les ions IO_3^- qui se forment avec I_2 dans les solutions neutres et alcalines. Ainsi, ce comportement des radicaux OH augmente sensiblement le rendement lorsque la concentration initiale de I^- augmente, et le diminue lorsqu'il y a accroissement du pH.

Dans les solutions alcalines, le rendement de la réduction des oxy-anions de manganèse est indépendant de la concentration initiale de ces anions ainsi que de la concentration et de la nature de la base.

En s'appuyant sur ce fait, les auteurs formulent des conclusions générales au sujet du modèle représentant la radiolyse des solutions alcalines, selon lequel les radicaux se forment directement à partir des ions OH^- et Me^+ . Ce modèle a été confirmé par la radiolyse de solutions de chromates et de chromites. Dans ces solutions les chromites sont oxydés sous l'action des rayons gamma de manière à donner des chromates. Quant à ces derniers, ils ne se transforment en chromites que dans des solutions saturées en hydrogène, et le rendement dépend alors du rapport $(\text{CrO}_2)/\text{H}_2$.

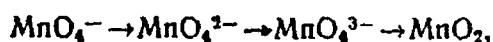
En partant du mécanisme de réduction radioinduite du manganate dans des solutions alcalines concentrées, les auteurs ont calculé les rendements moléculaires qui peuvent être obtenus dans ces conditions à savoir: $G_{\text{H}_2} = 0,12$; $G_{\text{H}_2\text{O}_2} = 0,51$.

A/113 Польша

Радиационная химия в щелочных растворах

Б. Ежевска-Тжебатовска, Й. Калециньски

Кислородсодержащие анионы марганца оказались особенно удобным объектом для исследований радиолитического щелочных водных растворов, так как в этом случае нет усложняющих реакций гидролиза. Восстановление перманганата под влиянием γ -излучения (источник из Co^{60} активностью примерно 200 кюри) происходит последовательно:



причем каждая следующая стадия начинается после практически полного окончания предыдущей. Подбирая соответствующие концентрации ионов OH^- можно было в отдельности исследовать каждую из этих стадий. Для отдельных стадий радиационные выходы реакций восстановления кислородсодержащих анионов марганца в щелочных растворах можно представить следующей формулой:

$$G(-\text{MnO}_4^{n-}) = G_{\text{H}} + 2G_{\text{H}_2\text{O}_2} - G_{\text{OH}}$$

и составляет около 1,9 эквивалента на 100 эв.

Этот выход намного ниже, чем выход в нейтральных растворах. Это вызвано тем, что радикалы OH в этих условиях играют характерную для себя роль окислителя: они окисляют кислородсодержащие анионы марганца, в которых марганец находится в степени окисления ниже +7. В нейтральных же растворах радикалы OH принимают непосредственное участие в реакции восстановления перманганата, что и вызывает рост выхода по сравнению со щелочными растворами и обуславливает зависимость выхода от начальной концентрации перманганата. Этот выход можно выразить эмпирической формулой

$$G(-\text{MnO}_4^-) = 1,7 + 1,62 \cdot 10^2 \text{MnO}_4^{-1/2},$$

которую можно вывести также и теоретически.

Двойственная роль радикалов OH как окислительно-восстановительного агента была подтверждена также на примере радиолитического растворов нитристого калия. Радикалы OH окисляют J^- до J_2 и восстанавливают ион JO_2^- , образующийся в нейтральных и щелочных растворах из J_2 . Такая роль радикалов OH вызывает значительный рост радиационного выхода с увеличением начальной концентрации J^- и уменьшение выхода с ростом pH.

В щелочных растворах радиационный выход для реакций восстановления кислородсодержащих анионов марганца не зависит от начальной концентрации аниона, а также от концентрации и рода щелочи.

На этом основании сделаны общие выводы, касающиеся схемы радиолитического щелочных растворов, согласно которой радикалы образуются непосредственно из ионов OH^- и Me^+ . Эта схема была подтверждена на примере радиолитического растворов хроматов и хромитов. В этих растворах хромиты под влиянием γ -излучения окисляются до хроматов. Хроматы же восстанавливаются до хромитов только в растворах, насыщенных водородом, причем выход зависит от отношения $(\text{CrO}_4^{2-})/\text{H}_2$.

На основании разработанного механизма радиационного восстановления манганата в концентрированных щелочных растворах рассчитаны молекулярные выходы для этих условий:

$$G_{\text{H}_2} = 1,12; G_{\text{H}_2\text{O}_2} = 0,51$$

A/113 Polonia

Química de la radiación en las soluciones alcalinas

por B. Jeżowska-Trzebiatowska y J. Kaleciński

Se ha encontrado que los aniones oxigenados de manganeso son adecuados para las investigaciones de radiólisis de las soluciones acuosas alcalinas, porque no se producen fenómenos de hidrólisis que compliquen la reacción. La reducción del permanganato bajo la acción de la radiación gamma (se utilizó una fuente de ^{60}Co , de unos 200 curios) se produce escalonadamente: $\text{MnO}_4^- \rightarrow \text{MnO}_4^{2-} \rightarrow \text{MnO}_4^{3-} \rightarrow \text{MnO}_2$, y no comienza una nueva fase de reducción hasta que la anterior, prácticamente, ha terminado. Eligiendo convenientemente las concentraciones de los iones OH^- se ha podido investigar cada una de estas fases de reducción independientemente. El rendimiento de la radiación, para cada una de las fases de la reducción de los aniones oxigenados del manganeso en soluciones alcalinas, puede determinarse por la siguiente fórmula: $G(-\text{MnO}_4^{n-}) = G_{\text{H}} + 2G_{\text{H}_2\text{O}_2} - G_{\text{OH}} = 1,9$

equivalentes/100 eV. Este rendimiento es mucho menor que el que se obtiene con soluciones neutras, lo que se debe a que los radicales OH , en estas condiciones, están desempeñando su papel típico de oxidantes: oxidan todos los aniones oxigenados de manganeso en los que el grado de oxidación de éste es menor que +7. En las soluciones neutras, en cambio, los radicales OH participan directamente en la reducción del permanganato; produciendo un aumento del rendimiento en comparación con el de las soluciones alcalinas, y haciendo también que el rendimiento dependa de la concentración inicial del permanganato. Se puede determinar dicho rendimiento por la fórmula empírica: $G(-\text{MnO}_4^-) = 1,7 + 1,62 \times 10^2 (\text{MnO}_4^-)^{1/2}$, que también se deduce teóricamente.

Este doble papel, oxidante y reductor, de los radicales OH se ha comprobado también en el caso de la radiólisis de disoluciones de yoduro potásico. Los radicales OH oxidan los yoduros a I_2 y reducen los hipoyoditos que se forman en las disoluciones neutras o alcalinas de I_2 . Esto hace que los radicales OH produzcan un aumento considerable del rendimiento de la radiación al aumentar la concentración inicial de I^- , y una disminución de dicho rendimiento al aumentar el pH.

El rendimiento de la radiación para la reducción de los aniones oxigenados del manganeso en solución alcalina, no depende ni de la concentración inicial del anión, ni de la concentración, o clase, del álcali. Basándose en estos hechos se ha deducido un modelo

del proceso de radiólisis de las soluciones alcalinas, según el cual los radicales se forman directamente de los iones OH^- y Me^+ . Se ha comprobado este modelo en el caso de la radiólisis de soluciones de cromitos y de cromatos. En estas soluciones los cromitos se oxidan a cromatos bajo la acción de los rayos gamma. Sin embargo, los cromatos se reducen a cromitos únicamente en soluciones saturadas de hidrógeno, con un rendimiento que depende del cociente de las concentraciones $(CrO_2^-)/H_2$.

Basándose en este mecanismo de la reducción, por la radiación, del manganato en soluciones alcalinas concentradas, se han calculado, para estas condiciones, los siguientes rendimientos moleculares: $G_{H_2} = 0,12$; $G_{H_2O_2} = 0,51$.

The development of chemonuclear processes

By B. Manowitz,* M. Steinberg,* J. W. Sutherland,* P. Harteck,** S. Dondes** and J. H. Cusack***

A chemonuclear reactor is defined as a nuclear reactor which makes *direct* use of a significant fraction of the energy of fission, either as the kinetic energy of the fission fragments or as the kinetic energy of neutrons, betas, and gammas associated with the fission process, to break chemical bonds and form new chemical products. A plant would consist of a chemonuclear reactor and associated chemical process equipment to recover and decontaminate the chemical products. In some cases, heat generated in the reactor would be at temperatures high enough for process heat or for power generation.

In general, the research effort in the United States in this field is in an early stage of development. The major effort is being applied at three laboratories: Brookhaven National Laboratory (BNL), Rensselaer

Polytechnic Institute (RPI), and Aerojet General Nucleonics (AGN), with additional work being carried out at other universities and industrial laboratories.

The work at BNL and RPI is of a research and development nature, investigating the chemistry and technology of a variety of chemical systems which lead to chemonuclear processes. The primary objective of the AGN program is to develop a pilot plant which would demonstrate the feasibility of producing hydrazine from ammonia by exposure to fission fragment recoil energy.

PRELIMINARY ECONOMIC ANALYSIS

Because of the approximate nature of the assumptions that must be made, the results obtained from economic evaluations cannot be taken as firm estimates, but must be considered merely as providing some guidance in selecting interesting chemical systems to study. Such an analysis is given in Table 1. The assump-

- * Brookhaven National Laboratory, Upton, New York.
- ** Rensselaer Polytechnic Institute, Troy New York.
- *** Aerojet General Nucleonics, San Ramon, California.

Table 1. Breakeven G values for a number of chemicals proposed for fission fragment chemonuclear production [1]

Chemical	Assumed annual plant volume 10 ⁶ lb/yr	Estimated conventional cost of production, ¢/lb	Type of plant operation assumed ^a	% of present annual market for a single chemonuclear plant	Breakeven G value ^b		Highest G value reported for and type of radiation
					Basis 1	Basis 2	
<i>Group A — Products with present large markets</i>							
Nitrogen dioxide for nitric acid	3 000	2.5	C	30	10.4	16.8	7.4
Nitrogen dioxide for nitric acid	3 000	2.5	C+P	30	8.9	21.0	7.4
Carbon suboxide for acetic anhydride	1 100	8	C	30	3.1	2.6	2.5
Carbon suboxide for acetic anhydride	1 100	8	C+P	30	2.5	2.9	2.5
Ethylene glycol	1 200	6.5	C	30	3.9	3.6	3
Propylene glycol	290	7.0	C	30	7.8	16.2	—
Hydrogen peroxide	110	25	C	30	3.8	2.6	3.1
Hydrazine	15	60	C	100	1.6	0.9	2.3
<i>Group B — Staples with huge markets</i>							
Nitrogen dioxide for fertilizer	20 000	1.5	C	10	15.1	30.7	7.4
Nitrogen dioxide for fertilizer	20 000	1.5	C+P	10	11.9	35.8	7.4
Nitrogen dioxide for fertilizer	20 000	1.5	C+P	20	5.9	8.4	7.4
<i>Group C — Products with potential large markets</i>							
Hydrazine	650	20	C	30	1.9	1.4	2.3
Ozone	600	5	C	30	12.7	24.6	15

^a C = single purpose plant for chemical production only; C+P = dual purpose plant for chemical plus power.
^b Basis 1: cost of radiochemical section determined by total curies handled; Basis 2: cost of radiochemical section determined by daily volume throughout.

tions made in the analysis and details of the calculations are given in Report No. BNL 804 [1].

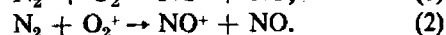
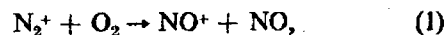
It appears from the analysis that G values in excess of 1 are required. Single-purpose plants may have economic potential for the production of certain chemicals, e.g., hydrazine, ozone, and hydrogen peroxide, while a larger dual-purpose plant may be required for the fixation of nitrogen to produce fertilizer.

RADIATION CHEMISTRY

Fixation of nitrogen

At RPI, the research effort has concentrated on unravelling the mechanism of the formation of nitrogen dioxide from nitrogen-oxygen mixtures and on improving the yields of fixed nitrogen. Mixtures of $^{14}\text{N}_2$ and $^{15}\text{N}_2$, having oxygen concentrations less than 1 part in 10 000, have been irradiated with fission fragment and/or reactor radiation. The G value for nitrogen atom production, as determined from the mass 29 peak, was 11.5. From theoretical considerations [2], a G value of 3 for nitrogen molecule dissociation, leading to a G value of 6 for nitrogen atoms, is predicted. The G value for ion production (N_2^+) is 2.85, leading to an additional G value for nitrogen atoms of 5.7 upon neutralization of the N_2^+ ions followed by dissociation. Thus, the total G predicted for nitrogen atom yield, 11.7, is in excellent agreement with the

value of 11.5 found in the nitrogen isotope-exchange experiments. The introduction of 1% oxygen into the mixture suppressed the G for nitrogen atom yield to a value of about 6, and with the addition of 10% oxygen the value was further lowered. Thus, the oxygen partially quenches the nitrogen atom production by charge transfer from the N_2^+ ion to the O_2 molecule. This effect cancels the possibility of ion reactions as major producers of NO by the reactions



Reaction (1) does not proceed, otherwise enhancement of $G(\text{NO}_2)$ should occur. Reaction (2) does not proceed since, in upper atmosphere research, the O_2^+ ion is observed and is not consumed in this manner. With the introduction of oxygen, therefore, the nitrogen atoms will be produced almost entirely from the dissociative excitation of nitrogen molecules.

The N_2O produced in this experiment shows a direct proportion of ^{14}N and ^{15}N , which indicates that it is the result of the reaction of nitrogen atoms with NO_2 , rather than $^{14}\text{N}_2$ or $^{15}\text{N}_2$ reacting with oxygen atoms. Further work is being conducted with the $^{14}\text{N}_2$ - $^{15}\text{N}_2$ system alone and with mixtures containing rare gases and oxygen.

In some preliminary experiments air was exposed to reactor radiation in a quartz vessel, the inner walls of which had been coated with solid potassium

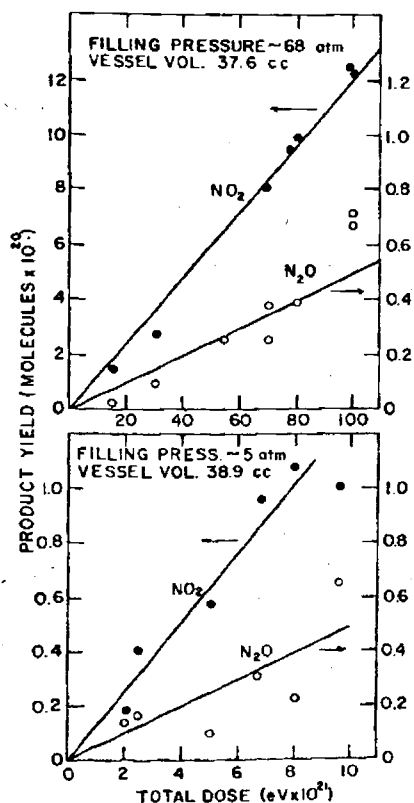


Figure 1. Reactor irradiation of synthetic air. ($\text{N}_2 = 77.3\%$; $\text{O}_2 = 22.7\%$) Temp. $\approx 40^\circ\text{C}$.

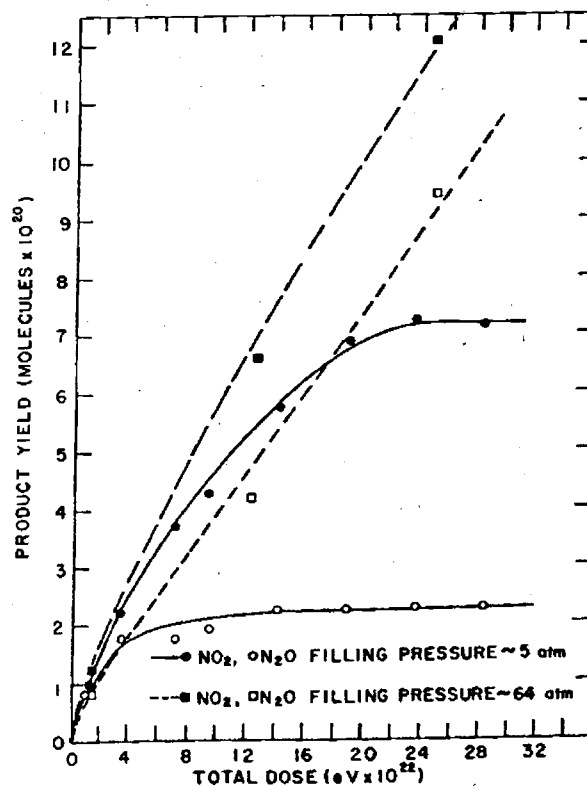


Figure 2. Fission fragment + reactor irradiation of synthetic air. ($\text{N}_2 = 77.3\%$; $\text{O}_2 = 22.7\%$) Temp. $\approx 40^\circ\text{C}$.

hydroxide to reduce the concentration of NO_2 in the gas phase. Control experiments were also made under identical experimental conditions but without these coatings. With the potassium hydroxide coating present, more oxygen was consumed. For example, after irradiation a concentration of only 1% oxygen remained with the hydroxide present compared with 5% without the hydroxide. Moreover, practically no N_2O was found, <0.1%, compared with a value of about 5% without the hydroxide. This further confirms that N_2O arises from N atom attack on NO_2 .

Recently at BNL, product yield vs. dose curves for the radiolysis of dry synthetic air (composition $\text{N}_2 = 77.3\%$, $\text{O}_2 = 22.7\%$) have been obtained under a variety of experimental conditions. The yields of fixed nitrogen, presented here as total NO_2 and N_2O , have been measured at two initial filling pressures, ≈ 5 atm and ≈ 65 atm for reactor irradiation and for fission fragment plus reactor irradiation at about 40°C .

Reactor Irradiation

Results are summarized in Table 2 and Fig. 1. In the dose range studied, the yield of total NO_2 is linear with dose, and the G value is independent of pressure within experimental error. The yield of N_2O is linear with dose, but the G value at ≈ 5 atm initial filling pressure is about 10 times that at ≈ 65 atm.

Fission fragment plus reactor irradiation

In Fig. 2, data are plotted for NO and N_2O yields as a function of total dose for mixed fission fragment plus reactor irradiation. In Table 3, an estimate of the contribution of each of the three important modes of energy deposition in the system is given for the BNL experimental conditions, as evaluated from gas dosimetry and neutron flux measurements [3]. The initial G values of NO_2 and N_2O , from Fig. 2, are $G(\text{NO}_2) \approx 0.9$ and $G(\text{N}_2\text{O}) \approx 0.6$ and appear to be independent of pressure. In the 5 atm experiments, both the NO_2 and the N_2O reached a steady-state concentration as shown in Fig. 2. The steady-state concentration values expressed in terms of partial pressures and volume percent concentrations are as follows: $P_{\text{NO}_2} = 67$ cm Hg (19.7%), $P_{\text{N}_2\text{O}} = 21$ cm Hg (6.2%), $P_{\text{N}_2} = 242$ cm Hg (71%), and $P_{\text{O}_2} = 10$ cm Hg (2.9%). The nitrogen

Table 2. Reactor irradiation of synthetic air
Composition: $\text{N}_2 = 77.7\% + \text{O}_2 = 22.3\%$
Temperature: $\approx 40^\circ\text{C}$

Filling pressure atm	Reactor radiation dose rate* eV/g hr	$G(\text{NO}_2)$	$G(\text{N}_2\text{O})$
≈ 5	1.60×10^{21}	1.26 ± 0.26	0.49 ± 0.18
≈ 68	1.60×10^{21}	1.10 ± 0.15	0.048 ± 0.012

* $(n + \gamma + p)$.

Table 3. Fission fragment plus reactor irradiation of synthetic air

Composition: $\text{N}_2 = 77.7\% + \text{O}_2 = 22.3\%$
Temperature: $\approx 40^\circ\text{C}$

Filling pressure	≈ 5 atm	≈ 64 atm
Volume of vessel	31.9 cm^3	31.9 cm^3
Thermal neutron flux	$8.0 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$	$8.0 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$
Weight of U-Pd foil	$4.28 \times 10^{-2} \text{ g}$	$4.28 \times 10^{-2} \text{ g}$
Weight of ^{235}U	$7.32 \times 10^{-2} \text{ g}$	$7.32 \times 10^{-2} \text{ g}$
Foil thickness	4.08μ	4.08μ
Fission fragment energy deposition efficiency	25%	25%
Fission fragment dose rate	$1.15 \times 10^{21} \text{ eV/h}$	$1.15 \times 10^{21} \text{ eV/h}$
Reactor radiation dose rate ^a $(n + \gamma + p)$	$3.18 \times 10^{20} \text{ eV/h}$	$3.87 \times 10^{21} \text{ eV/h}$

* Preliminary measurements have indicated that about 25% of this energy is deposited by gamma rays and about 75% by the $^{235}\text{U}(n,p)^{235}\text{C}$ reaction.

and oxygen partial pressures were calculated from material balance equations. A gas chromatographic analysis of gases at steady state showed the absence of NO .

Steady-state concentrations in the high pressure experiment (≈ 64 atm) have not been measured as yet, although the saturated vapor pressure of liquid N_2O_4 (1.2 atm at 25°C) has been reached.

The minimum dose which could be given to the sample with reasonable accuracy in the fission fragment irradiation experiments is very large, namely, about 1×10^{22} eV. Two experiments were carried out in the "thermal column" at the BNL reactor, where the neutron flux is $4.0 \times 10^9 \text{ n/cm}^2 \text{ s}$, and the results are tabulated in Table 4. Despite the fact

Table 4. Low dose fission fragment plus reactor irradiation of synthetic air

Composition: $\text{N}_2 = 77.7\% + \text{O}_2 = 22.3\%$
Temperature: $\approx 40^\circ\text{C}$

	Sample 1	Sample 2
Volume of vessel	32.2 cm^3	32.1 cm^3
Filling pressure	67.8 atm	5.34 atm
Neutron flux	$4.0 \times 10^9 \text{ n/cm}^2 \text{ s}$	$4.0 \times 10^9 \text{ n/cm}^2 \text{ s}$
Irradiation	48 h	48 h
Weight of U-Pd foil	$4.18 \times 10^{-2} \text{ g}$	$4.28 \times 10^{-2} \text{ g}$
Weight of ^{235}U	$7.13 \times 10^{-2} \text{ g}$	$7.27 \times 10^{-2} \text{ g}$
Foil thickness	4.08μ	4.08μ
Fission fragment dose rate ^a	$5.55 \times 10^{18} \text{ eV/h}$	$5.70 \times 10^{18} \text{ eV/h}$
Reactor radiation dose rate ^a $(n + \gamma + p)$	$3.96 \times 10^{18} \text{ eV/h}$	$3.10 \times 10^{17} \text{ eV/h}$
Total dose	$4.56 \times 10^{20} \text{ eV}$	$2.88 \times 10^{20} \text{ eV}$
Molecules NO_2	3.29×10^{18}	2.71×10^{18}
Molecules N_2O	6.00×10^{18}	4.27×10^{18}
$G(\text{NO}_2)$	0.72	0.95
$G(\text{N}_2\text{O})$	1.32	1.48

* Estimates based on neutron and gamma flux measurements. About 67% of the reactor radiation energy is deposited by gamma rays and 33% by the $^{235}\text{U}(n,p)^{235}\text{C}$ reaction.

that the total dose had been reduced by a factor of about 30 in the high pressure run and 40 in the low pressure run, no significant change in $G(\text{NO}_2)$ was found. In the 68 atm experiment, the yield decreased slightly, while in the 5 atm pressure run no change was observed within experimental error. However, in both instances, the $G(\text{N}_2\text{O})$ yields had increased considerably. The significance of these results is not understood at present, because of insufficient data as well as the additional complexity, especially in the high pressure case, of the change in the relative amounts of energy absorbed by the reactor radiation ($n+\gamma+p$) and fission fragment modes of energy deposition.

There seems little doubt that there is a high steady-state concentration of NO_2 , and thus the economic feasibility of this process may not be limited by product recovery at low concentrations. On the other hand, under the experimental conditions investigated at BNL up to the present, no higher G value than about 1 has been found, even for very low conversion, e.g., down to 0.006 mole % of NO_2 .

Synthesis of hydrazine by radiolysis of liquid ammonia

At AGN the synthesis of hydrazine by fission fragment irradiation of liquid ammonia has been investigated [4]. Thirty-five liquid ammonia and ammonia-hydrazine mixtures in 100 g quantities have been irradiated at the Livermore pool-type reactor. The liquid ammonia, together with 5 to 10 g of fully enriched UO_2 fuel in the 1 to 5 micron size range, was continuously stirred to maintain a suspension. Reactor pool water was circulated to maintain capsule temperatures and pressures. Irradiations were conducted for 6 to 30 h periods in a thermal neutron flux of about 10^{11} n/cm² s.

The rate of hydrazine production decreased with increasing hydrazine concentration and a steady-state concentration was reached at about 3.0 wt % of N_2H_4 , corresponding to about a 0.6 molar solution of hydrazine in liquid ammonia. The maximum $G(\text{N}_2\text{H}_4)$ observed was about 1.7. From further capsule experiments it was found that (a) overpressure of $\text{N}_2 + \text{H}_2$ [187 psi (12.7 atm) H_2 and 108 psi (7.4 atm) N_2] increased the hydrazine yield; (b) reducing the ratio of absorbed gamma and (n, p) to fission fragment energy by appropriate shielding increased the hydrazine yield; (c) the addition of 0.1 mole % of isopropyl alcohol increased the N_2H_4 yield; and (d) the hydrazine yield decreased between 193 and 253 °K, increased between 253 and 293 °K, and decreased above 293 °K.

At BNL, liquid ammonia has been irradiated with ⁶⁰Co gamma rays at 24 °C. Contrary to the findings of Kolditz and Prösch [5], no evidence of any pronounced post-irradiation decomposition of the hydrazine formed in the radiolysis of liquid ammonia has been observed.

In the dose range 0 to 30×10^3 rad, no N_2 was observed, only H_2 and N_2H_4 in non-stoichiometric proportions. The lowest dose at which the products could be measured with reasonable accuracy was about 2.5×10^3 rad. Extrapolation to zero dose yielded initial G values of $G(\text{H}_2) = 1.8$ and $G(\text{N}_2\text{H}_4) = 1.8$. As the absorbed dose increases, $G(\text{H}_2)$ and $G(\text{N}_2\text{H}_4)$ decrease, while $G(\text{H}_2)$ is always greater than $G(\text{N}_2\text{H}_4)$. The difference in G values [$G(\text{H}_2) - G(\text{N}_2\text{H}_4)$] remains nearly constant above 5×10^3 rad and equal to about 0.56. These results indicate the presence of some other species, originating, it is thought at present, from attack on the N_2H_4 by the molecular hydrogen precursor. The ultraviolet spectrum of this unknown species has been observed, but a positive identification has not been made as yet.

In the region of 32 to 40×10^3 rad, nitrogen appears as a product. At 40×10^3 rad reasonable material balance between H_2 , N_2 , and N_2H_4 was found, and the spectrum of the unknown product was no longer observed. No corresponding change was observed in the rate of formation of either hydrazine or hydrogen, and it is concluded that destruction of the unknown species apparently yields N_2 as the only detectable product.

On further increase of dose, the $G(\text{N}_2)$ increases linearly with dose up to about 40×10^6 rad while the $G(\text{N}_2\text{H}_4)$ decreases. Initial G values found from extrapolation to a dose of 50×10^3 rads from a yield-dose plot are $G(\text{H}_2) = 0.84 \pm 0.04$, $G(\text{N}_2\text{H}_4) = 0.20 \pm 0.02$, and $G(\text{N}_2) = 0.21 \pm 0.02$, in essential agreement with previous workers results, [6] in this dose region.

Above a dose of 40×10^6 rad the rate of nitrogen production increases with dose as does the rate for H_2 , while the N_2H_4 concentration approaches a steady state of about 1×10^{-4} mole/liter. In the dose range 80 to 150×10^6 rad, rates of nitrogen and hydrogen formation are linear, and the slopes of the straight lines give $G(\text{H}_2) = 0.89$ and $G(\text{N}_2) = 0.30$.

The present data are being analysed, and further experiments with and without additives are being carried out in order to discover the manner in which the hydrazine is destroyed.

FISSION-FRAGMENT SOURCE AND CHEMONUCLEAR FUEL DEVELOPMENT

The fuel requirements and classification of possible chemonuclear fuels have been reviewed by Steinberg [7]. The problem resolves itself into obtaining a material containing a sufficient concentration of fissionable material and dispersing this material in the chemical reactant in such a manner as to maximize the fission energy deposition. For consideration as a chemonuclear fuel, the material must also have chemical, thermal, radiation and structural stability.

At RPI [8] and BNL, solid arrays of ^{235}U -bearing materials in gaseous reactants are being studied. Table 5 gives the characteristics of the sources which have been used at BNL [3]. The maximum feasible ^{235}U content in glass for drawing into fiber is of the order of 50 wt %. Beyond this concentration, the glass has a tendency to recrystallize. The minimum practical diameter of a single-strand filament is $3\ \mu$. Some attempt has been made to weave this material into a two-dimensional array; however, the most feasible form up to the present has been either in a matted structure or in a random packing of glass wool. The disadvantages of the glass fiber are its relatively low softening point, its poor thermal conductivity, and its tendency to fracture and devitrify. It is believed that annealing effects at higher temperatures decrease the radiation damage. It has been possible to increase the softening point of uranium-bearing glass by as much as $250\ ^\circ\text{C}$ by the addition of 5% aluminum oxide. An energy deposition efficiency of 61%, as measured by the nitrous oxide dosimeter, was observed with a relatively light loading ($0.29\ \text{mg}/\text{cm}^2$) of a two-dimensional array of $3\ \mu$ glass fiber.

At BNL metal alloy foils for chemonuclear applications are being developed. Uranium-aluminum alloys in concentrations up to 27.6 wt % U have been rolled into foils having a minimum thickness of $6\ \mu$ (0.25 mil). The disadvantages of this material are its relatively low tensile strength and low melting point. An alloy which has proved to have properties of greater interest for this purpose is a solid solution of uranium in palladium [9]. The melting point of the U-Pd alloy ranges from 1 300 to $1500\ ^\circ\text{C}$ depending on its composition. It has been possible to cold roll a 20 wt % U-Pd alloy to a foil thickness of $\approx 2.5\ \mu$ (0.1 mil) on a Sendzimir mill and to further chemically etch to a thickness of $1.5\ \mu$. An energy deposition efficiency of 63% has been observed with the latter foil. Tests in air at $1\ 000\ ^\circ\text{F}$

($538\ ^\circ\text{C}$) indicated some surface oxidation and loss of ductility, but the foil maintained its structural stability. Reactor tests at low burnup ($< 0.5\%$) indicated a small amount of corrosion in air. Larger amounts of corrosion were noted in an atmosphere of nitrogen dioxide. The alloys have been coated with very thin ($< 1\ 000\ \text{\AA}$) coatings of Al_2O_3 and SiO applied by vapor deposition. Such coatings appear to improve the resistance of the foil to corrosion. High burnup studies with the foil show promising results with respect to structural stability, but conclusive results must await further reactor tests.

The U-Pd alloy foils have been used as sources for fission-fragment chemistry experiments. The energy deposition efficiency for these two-dimensional foils has been shown to fall between values approximated by analytical expressions based on linear and quadratic energy loss dependence of the range-energy curves and assuming a constant G value for chemical conversion along the length of the fission track.

Aerodynamic studies of thin fixed foil-type fuel element arrays have indicated that a stable structure can be attained with the use of a geometrically uniform honeycomb assembly. A model of a honeycomb configuration, Fig. 3, has been constructed of stainless steel foil approximating the foil thickness required ($6\ \mu$ or 0.25 mil) for chemonuclear fuel. It should be possible to construct this type of element from U-Pd alloy material.

The AGN reactor concept involves a fully enriched UO_2 slurry in liquid NH_3 [4]. The fuel is a UO_2 powder of $1\ \mu$ average particle size, heat-treated to give it additional strength by firing for 4 h at $1\ 300\ ^\circ\text{C}$ in a hydrogen atmosphere. The surface area of such a powder is $\approx 0.6\ \text{m}^2/\text{g}$. Higher firing temperatures tended to sinter the UO_2 powder.

Ammonia did not behave as a dispersing medium for UO_2 . The UO_2 mixed intimately with the liquid

Table 5. ^{235}U -bearing fixed fission-fragment sources

Fission-fragment source and dimensions	Composition by weight (^{235}U content)	Softening point ($^\circ\text{C}$)	Density (g/cm^3)	Average F-F range (μ)	Maximum observed F-F energy deposition efficiency (%)	Supplier
1. Glass fiber (five $3\ \mu$ filaments twisted into one strand)	50% U_2O_8 —40% SiO_2 —10% Na_2O (36.8% ^{235}U)	700	3.66	13.7	61	Owens-Corning Fiberglas Co., Granville, Ohio
2. Glass wool ($3\ \mu$ filaments)	50% U_2O_8 —40% SiO_2 —10% Na_2O (36.8% ^{235}U)	700	3.66	13.7	43	Owens-Corning Fiberglas Co., Granville, Ohio
3. U-A2 alloy metal foil (minimum thickness $6\ \mu$)	27.6% U—72.4% Al (25.8% ^{235}U)	730	3.47	13.7	47	Sylvania Electric Products Co., Bayside, N.Y.
4. U-Pd alloy metal foil (minimum thickness $1.5\ \mu$)	18.2% U—81.8% Pd (17.0% ^{235}U)	1 400	12.75	6.1	63	BNL and Arnold Engineering Co., Marengo, Illinois

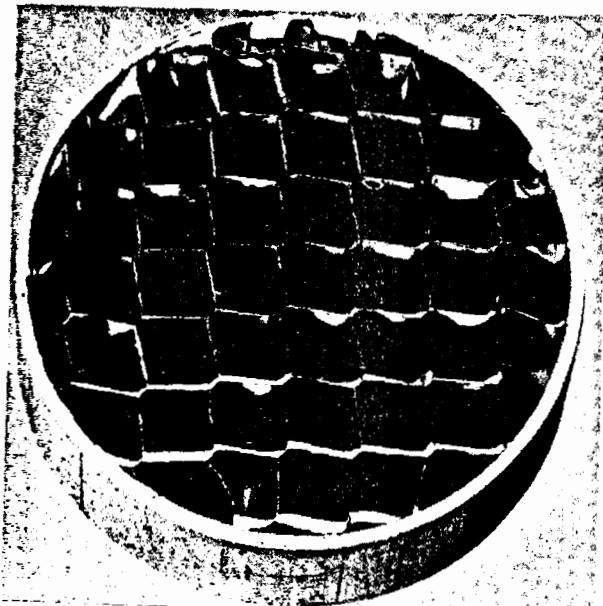


Figure 3. Honeycomb fuel assembly model using 0.25 mil stainless steel foil

ammonia when exposed to high shear forces (e.g., the impeller of a pump) but it flocculated within several hours when flow stopped. Floc diameters were approximately $80\ \mu$ at room temperature and were independent of hydrazine concentration from 0 to 5 wt %. Floc size decreased with increasing temperature and was $\approx 20\ \mu$ at $200\ ^\circ\text{F}$ ($93\ ^\circ\text{C}$). The settling rates of these flocs ranged from $\approx 1.25\ \text{cm/s}$ at $70\ ^\circ\text{F}$ ($21\ ^\circ\text{C}$) to $\approx 2.1\ \text{cm/s}$ at $200\ ^\circ\text{F}$ ($93\ ^\circ\text{C}$).

The erosion of 347 stainless steel by a slurry of $50\ \text{g}\ \text{UO}_2/\text{l}$ in liquid ammonia was measured in a toroid apparatus at $160\ ^\circ\text{F}$ ($71\ ^\circ\text{C}$) with a flow rate of $20\ \text{ft/s}$ ($6.1\ \text{m/s}$). After 100 h of operation, no erosion was detected. Slurry loading and flow rate were increased until erosion rates could be measured, and the results were extrapolated to the above conditions. The calculated erosion rate of the slurry when circulated under the reference conditions is $0.3\ \text{mil}$ ($7.5\ \mu$)/yr, an entirely acceptable rate.

Slurries of enriched UO_2 particles in liquid ammonia were irradiated to 0.6% burnup in the Battelle Memorial Institute Reactor. No evidence of colloid formation was found. Some degradation of the slurry occurred as shown by the increase in the fraction of particles of diameter less than $0.1\ \mu$ and by the increase in the surface area of the powder from $0.6\ \text{m}^2/\text{g}$ to $2.0\ \text{m}^2/\text{g}$. Several particles had increased in degree of crystallinity during irradiation.

At AGN, the energy spectrum of fission-fragments escaping from fully enriched UO_2 plates and powder was measured by a solid state detector-pulse height analyser. The energy deposition efficiency fell slightly below that calculated from range-energy expressions using a quadratic energy loss equation.

Table 6. AGN hydrazine loop

Typical operating conditions for 15 kW fission power

Flow rate	56 gal/min (21.2 l/min)
Temperature	$140\ ^\circ\text{F}$ ($60\ ^\circ\text{C}$)
Pressure	1 000 psia (68 atm)
Fuel concentration	$60\ \text{g}\ \text{UO}_2/\text{l}\ \text{NH}_3$
Fission power density	$130\ \text{kW/l}$ (for 85% of loop in-pile volume)
Maximum thermal flux	$8.5 \times 10^{13}\ \text{n/cm}^2\ \text{s}$
In-pile volume	$180\ \text{cm}^3$
Total loop volume	4 l
Filtered liquid sampling rate	$50\ \text{cm}^3/\text{min}$
Anticipated gas production rate	$40\ \text{SCFH@}\ 1\ \text{atm}\ \text{and}\ 60\ ^\circ\text{F}\ (\text{N}_2 + \text{H}_2)$ ($1\ 070\ \text{l/h@}\ 1\ \text{atm}\ \text{and}\ 0\ ^\circ\text{C}$)
Anticipated hydrazine production rate	$135\ \text{g/h@}\ G_{\text{N}_2\text{H}_4} = 1$

LOOP OPERATIONS

AGN hydrazine loop

The design, component development, fabrication and testing of a hydrazine production loop was completed at AGN, and the loop was installed in the Materials Testing Reactor at Idaho Falls. This work was supported by the US Air Force and the US Atomic Energy Commission. The equipment is fully described in an Aerojet report [4] and is shown schematically in Fig. 4. Pertinent loop parameters are given in Table 6.

As of March 1964, unfuelled liquid ammonia had been irradiated in the loop and a steady-state concentration of about $4 \times 10^{-2}\ \text{wt}\ \% \ \text{N}_2\text{H}_4$ was observed. The absorbed reactor radiation power level was about 125 W. With a fully enriched UO_2 fuel loading of about 150 W of fission power, a steady-state concentration of 1 wt % N_2H_4 was reached. The ratio of absorbed fission fragment to reactor radiation power was about 1. By higher fuel loadings this ratio is increased, and it is anticipated that under these conditions higher steady-state concentrations will be achieved. These experiments are now in progress.

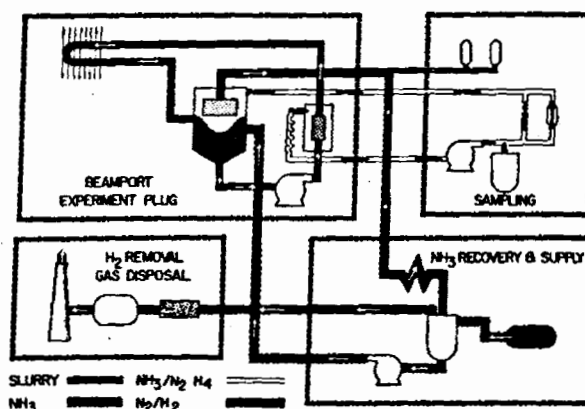
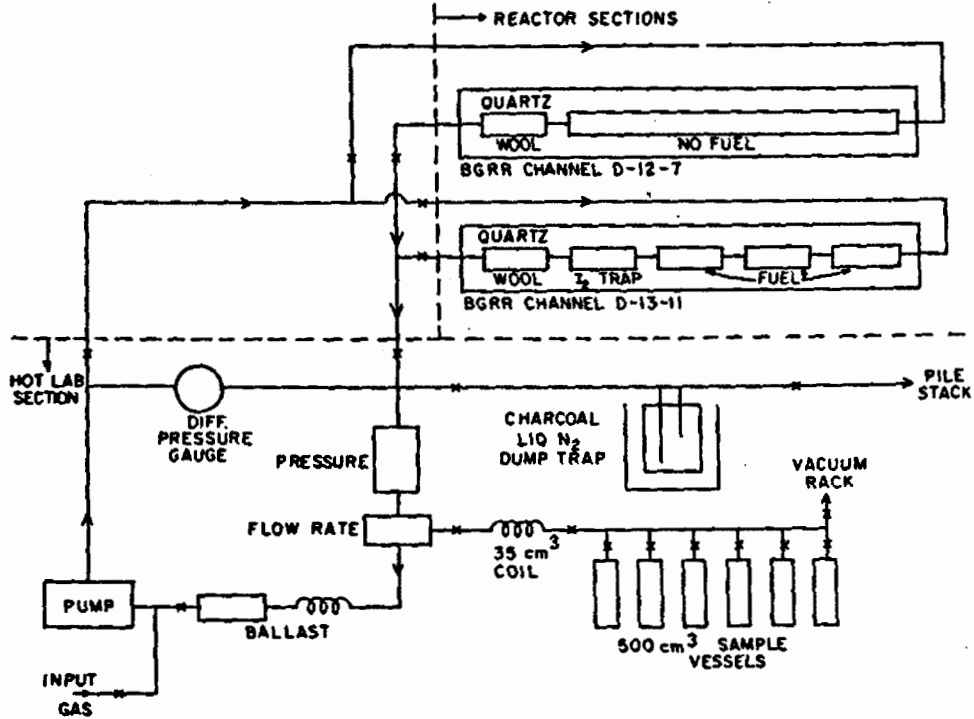


Figure 4. Schematic of AGN hydrazine loop



URANIUM GLASS FIBERS
 D-13-11 THERMAL NEUTRON FLUX
 D-12-7 THERMAL NEUTRON FLUX
 TOTAL LOOP VOLUME
 FLOW RATE
 WORKING PRESSURE RANGE
 I₂ TRAP
 PARTICULATE FILTER-QUARTZ WOOL
 ALL VALVES ARE REMOTELY CONTROLLED
 IN-PILE TEMPERATURES ARE RECORDED CONTINUOUSLY

15g WOOL (10% ²³⁵U)
 5×10^{11} n/cm² s
 5×10^{12} n/cm² s
 151
 3 l/min.
 300-1000 psia (20.5 TO 68 atm)
 AgNO₃ (FUSED)

Figure 5. RPI loop

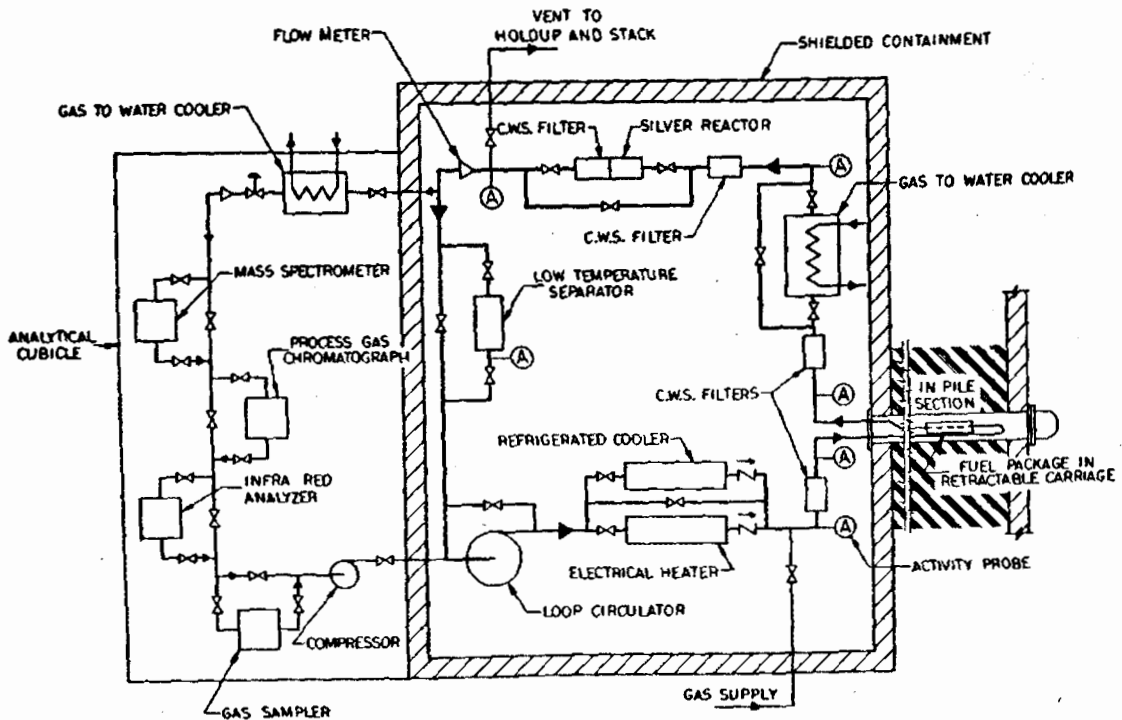


Figure 6. Flow-sheet of BNL chemonuclear in-pile research loop

RPI loop

RPI has constructed installed and operated a loop with a capacity of several grams of enriched uranium in the form of glass wool at the BNL Graphite Research Reactor. A diagram of the loop is shown in Fig. 5 together with some of the operating conditions.

A mixture of helium, nitrogen and oxygen at 1 000 psig (69 atm) was circulated in the loop, which was loaded with 15 g of enriched uranium glass fibers (10 wt % ^{235}U and 5 μ in diameter). Helium was necessary to provide sufficient cooling to prevent the softening of the glass fibers. The neutron flux was 5×10^{11} n/cm² s. Over a period of 48 hr the NO₂ yield steadily increased and a concentration of 0.3 vol % NO₂, equivalent to a partial pressure of 3 psi (0.2 atm), was obtained. Reducing the pressure also reduced the product yield. The largest *G* value observed for NO₂ formation was about 1, and for N₂O about 2. The energy absorbed by the system was determined by using the N₂O dosimeter and by counting the fission fragment ^{133}Xe .

Also shown in Fig. 5 is an in-pile section which will be installed in the reactor and will not contain any fuel. This section will be used for comparing reactor radiation yields with fission fragment yields.

BNL in-pile research loop

A chemonuclear in-pile research loop is under construction at BNL [10]. The loop is designed to be a versatile research facility for handling light gases at pressures up to 1 000 psig (69 atm) and temperatures from -30 °F (-34 °C) to +1 000 °F (538 °C) in contact with fixed fuel elements. The design characteristics of this loop are given in Table 7 and a flow diagram is shown in Fig. 6. The in-pile section will be inserted through the graphite reflector. The process equipment will be located outside one face of the reactor and the fuel handling mechanism outside the opposite face.

Table 7. Design characteristics of BNL in-pile research loop

Gases to be handled	N ₂ O, N ₂ , O ₂ , NO ₂ , He, CO ₂ , CH ₄ , NH ₃
Gas pressure range	0 to 1 000 psig (1 to 69.1 atm)
Temperature range	-30 to +1 000 °F (-34.4 to +538 °C)
Gas velocity	3 to 30 ft/s (91.5 to 915 cm/s)
Maximum volumetric flow rate	170 SCFM @ 1 atm and 60 °F N ₂ H ₄ (4 550 l/min @ 1 atm and 0 °C)
Fue zone dimensions	1½ in id × 5 ft long (3.8 cm id × 1.53 m long)
Maximum flux	2×10^{11} n/cm ² s
Maximum fission power level	5 000 W

It is estimated that the BNL loop should be in operation by the summer of 1965.

CONTAMINATION AND DECONTAMINATION

There has been little work to date on the contamination and decontamination of products formed by fission fragment irradiation. Some scattered pieces of information are available.

In the RPI loop, the only radioactive material found in the gas stream was ^{133}Xe . Apparently all the iodine was absorbed either on the cool surfaces of the stainless steel tubing or in the silver nitrate trap. An analysis of a previous loop that had been dismantled and sectioned to determine the location of other fission fragments showed only iodine to be present.

In experiments at AGN with liquid NH₃-UO₂ slurries irradiated in capsules to moderate fuel burnups (0.06 wt %), only iodine and ruthenium were found in the filtrate; the remaining fission products were presumably adsorbed on the fuel particles. Evaporation of capsule contents into chilled traps showed DFs (decontamination factors) of 10⁵ or greater. A pilot-scale batch distillation test was also performed with 5 liters of a 5 wt % hydrazine-ammonia solution which had been spiked with 2 millicuries of the soluble fission fragments from a capsule irradiation. A DF of 2×10^8 was found for the ammonia distillation step, while a DF of nearly 3×10^5 was observed during hydrazine flashing. A single test of a small ion-exchange column using Dowex AG-1 × 10 (Cl⁻) exchange material resulted in a DF greater than 2×10^2 when tested on spiked hydrazine.

DISCUSSION

Preliminary economic evaluation of chemonuclear processes and the present early state of the technology suggest a continued orderly sequence of basic and applied research and generalized development work in this field. Although the fixation of nitrogen by high energy radiation has been studied for a number of years, many problems remain unresolved. The problems include the accurate determination of yields under various conditions of pressure, temperature and intensity, and determination of the effect of substances which remove the NO₂ shortly after formation. In the radiolysis of ammonia, an important factor to ascertain is the cause of the difference in hydrazine yield at low LET (Linear Energy Transfer) gamma energy and at high LET fission fragment energy. The data from present capsule experiments will be augmented shortly by the operation of the three circulating loop experiments described in this report. The technology of fission-fragment sources and fuel development is also advancing. Based on these efforts, it should be possible within the next few years to determine whether an expanded development program is warranted.

REFERENCES

1. Manowitz, B., Raseman, C., Steinberg, M., Stoller, S., Hogerton, J., and Geller, L., *A Chemonuclear Program for the USAEC*, USAEC Report No. BNL 804 (July 1963).
2. Harteck, P., and Dondes, S., *Z. Elektrochem.*, **64**, 983-996 (1960).
3. Steinberg, M., Loeffelholz, M., and Pruzansky, J., *Fission Fragment Energy Deposition Efficiency for Thin Uranium-Containing Elements and the Fixation of Nitrogen, Industrial Uses of Large Radiation Sources*, Vol. II, IAEA, 87-119 Vienna (1963).
4. Aerojet General Nucleonics Reports, ASD Interim Reports 7-840A (I to XI) (July 1961 to October 1963).
5. Kolditz, L., and Prösch, U., *Z. Physik. Chem. (Frankfurt)*, **208** (1/2), 108-140 (1962).
6. Cleaver, D., Collinson, E., and Dainton, F. S., *Trans. Faraday Soc.*, **56**, 1640-1655 (1960).
7. Steinberg, M., *Chemonuclear Reactors and Chemical Processing, Advances in Nuclear Science and Technology*, Vol. I, 247-333, edited by Henley, E. J., and Kouts, H., Academic Press, New York and London (1962).
8. Harteck, P., Dondes, S., and Lockwood, P., *Glass Fibers Containing Fissionable and Fertile Materials*, USAEC Report No. NYO 9968 (1961).
9. Steinberg, M., and Farber, G., *Chemonuclear Fission Fragment Source and Fuel Development Progress Report*, USAEC Report No. BNL 827 (October 1963).
10. Steinberg, M., Tucker, W., Waide, C., and Bezler, P., *Brookhaven Chemonuclear In-Pile Research Loop*, USAEC Report No. BNL 6510 (October 1962).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АБХОТАЦІЯ—RESUMEN

A/292 Etats-Unis d'Amérique

La mise au point de procédés chimionucléaires
par B. Manowitz et al.

Un réacteur chimionucléaire est un réacteur nucléaire qui utilise directement une part importante de l'énergie de fission sous la forme de l'énergie cinétique des fragments de fission ou de celle des neutrons des particules bêta et gamma associés à la fission, pour rompre des liaisons et fabriquer ainsi des produits chimiques. Une installation chimionucléaire comporterait: a) une section nucléaire, comprenant les appareils dans lesquels les liaisons chimiques sont rompues et où les produits chimiques désirés se forment; b) une section radiochimique, où les produits (et les sous-produits éventuels) sont séparés du fluide primaire et décontaminés; c) une section chimique classique, comprenant le matériel de manutention des produits non contaminés qui entrent dans l'installation ou qui en sortent; d) un groupe de turbo-alternateurs pour produire accessoirement de l'électricité si l'installation est à double fin.

Les auteurs ont analysé les prix de revient de neuf produits chimiques différents et ont fait des calculs pour montrer les possibilités économiques du procédé. Pour illustrer l'état actuel de la recherche chimionucléaire, ils décrivent les aspects chimique et technologique de deux opérations: la fixation de l'azote et la production d'hydrazine.

Les auteurs présentent en outre les résultats obtenus en capsule avec des rayons gamma et avec les fragments de fission, et en boucle avec les fragments de fission pour la production et la concentration à l'état stationnaire de NO_2 dans la radiolyse de mélanges N_2/O_2 à des températures et pressions diverses, et également pour la production et la concentration à l'état stationnaire de l'hydrazine dans la radiolyse de l'ammoniac liquide.

Les auteurs ont analysé l'exactitude des données obtenues jusqu'ici concernant les fragments de fission et ont étudié les problèmes posés par la dosimétrie des fragments de fission et par le rendement du dépôt d'énergie. Ils ont envisagé des sources de fragments de fission utilisables pour la recherche et pour la préparation de combustibles à fragments de fission pour réacteur; ils ont notamment étudié les caractéristiques (y compris les dommages radioinduits et la corrosion chimique) de la fibre de verre à l'uranium, de particules de UO_2 et de sources expérimentales de fragments de fission comprenant des feuilles de U-Al, des feuilles de U-Pd et des particules de UO_2 . On décrit des éléments combustibles en feuilles pour des réacteurs chimionucléaires à gaz et à combustible fixe. On a expérimenté des suspensions de fines particules de UO_2 dans l'ammoniac liquide.

Les auteurs décrivent la boucle à gaz de l'Institut polytechnique Rensselaer, la boucle pour la fabrication d'hydrazine de l'Aerojet General Nucleonics (AGN), et la boucle à gaz dont la construction est projetée au Laboratoire national de Brookhaven.

A/292 США

A/292 Estados Unidos de América

Разработка ядерно-химических процессов

Б. Мановиц et al.

Estudio de los procesos químicionucleares

por B. Manowitz et al.

Ядерно-химический реактор—это такой ядерный реактор, в котором значительная часть энергии деления в виде кинетической энергии осколков деления или нейтронов β - и γ -излучения непосредственно используется для разрушения химических связей и получения новых химических продуктов. Ядерно-химический завод состоит из ядерного цеха, имеющего оборудование, в котором разрушаются химические связи и образуются нужные продукты; радио-химического цеха, в котором продукт и побочные продукты (если такие имеются) отделяются от первичной рабочей жидкости и радиоактивность удаляется из продукта; обычного химического цеха с оборудованием для обработки неактивных исходных и получаемых продуктов завода; турбинного цеха для выработки побочной электроэнергии, если завод имеет двойное назначение. Проведен анализ стоимости для девяти различных химических продуктов и приведены данные, показывающие экономический потенциал этих процессов. Состояние ядерно-химических исследований на современном этапе иллюстрируется на примере химии и технологии двух процессов — фиксации азота и производства гидразина.

Приводятся данные, полученные на капсулах для действия γ -излучения и осколков деления, а также на петле реактора для осколков деления, данные о выходе и установившейся концентрации NO_2 при радиоллизе смесей N_2O_2 при различных температурах и давлениях, а также о выходе и установившейся концентрации N_2H_2 при радиоллизе жидкого NH_3 .

Был проведен анализ точности накопленных до сих пор данных для осколков деления. Исследованы проблемы дозиметрии осколков деления и эффективности поглощения энергии. Были изучены источники осколков деления для научных исследований в виде U/Al фольги, U/Pd фольги и тонкодисперсной UO_2 и возможные виды реакторных топлив на основе урансодержащего стекловолокна и гранулированной UO_2 , а также их характеристики, включая радиационную и коррозионную стойкость. Описаны фольговые тепловыделяющие элементы для газовых ядерно-химических реакторов с неподвижным топливом. Накоплен опыт в работе с тонкодисперсной взвесью UO_2 в жидком NH_3 .

Дано описание действующей газовой петли в Ренселерском политехническом институте, действующей гидразинной петли фирмы «Аэроджет — Дженерал ньюклеоникс» и газовой петли, предложенной Брукхейвенской национальной лабораторией.

Por reactor químicionuclear se entiende un reactor que aproveche directamente una fracción considerable de la energía de fisión, sea como energía cinética de los fragmentos de fisión, sea como energía cinética de neutrones y partículas beta o gamma asociados a la fisión, para romper enlaces químicos y formar nuevas sustancias. Una instalación químicionuclear consistiría en 1) una sección nuclear con el equipo en que se rompen los enlaces químicos y se forman los productos deseados; 2) una sección radioquímica donde del fluido primario se separan el producto final y, de existir, los subproductos y donde se elimina la radiactividad; 3) una sección química clásica con equipo para manipular los productos no contaminados que entran y salen de la instalación; y 4) una sección de turbinas en que se genera electricidad como producto secundario en el caso de fábricas mixtas.

Con miras a evaluar el posible interés económico del proceso se han analizado los costos de nueve productos químicos distintos, así como de la electricidad generada. La memoria examina el estado actual de las investigaciones químicionucleares sobre la base de la química y tecnología de dos procesos: fijación de nitrógeno y producción de hidrazina.

Se presentan datos obtenidos con cápsulas de rayos gamma y de fragmentos de fisión, y circuitos de fragmentos de fisión, relativos al rendimiento y la concentración de equilibrio del NO_2 en la radiólisis de mezclas de nitrógeno y oxígeno a distintas temperaturas y presiones, así como para N_2H_4 en la radiólisis de NH_3 líquido.

Se ha analizado la precisión de los resultados obtenidos hasta el presente con los fragmentos de fisión. Se han investigado problemas de la dosimetría de fragmentos de fisión y de rendimiento en la absorción de energía. Se han estudiado fuentes de fragmentos de fisión destinadas a la investigación y como posibles combustibles para reactores a base de fragmentos de fisión, y también las características (inclusive los daños por irradiación y la corrosión química) de fibras de vidrio con uranio, teniendo partículas de UO_2 y fuentes experimentales de fragmentos de fisión que emplean láminas de U/Al , U/Pd y partículas de UO_2 . Se han descrito elementos combustibles laminares para reactores químicionucleares de combustible fijo. Se ha adquirido cierta experiencia con suspensiones de partículas finas de UO_2 en NH_3 líquido.

La memoria describe el funcionamiento del circuito de gas RPI, del circuito de hidrazina AGN y del circuito de gaz BNL que se ha propuesto.

The use of power reactors as large-scale radiation sources for radiation-chemical production

By F. Herre, W. Herzog, S. Rösinger, W. Schütze and A. Wäcker*

Although numerous radiation-chemical reactions having a high G value, such as polymerisations, chlorinations, sulfochlorinations, and addition reactions with hydrogen halides, have been investigated on the laboratory scale, only the manufacture of ethyl bromide from ethylene and hydrogen bromide has reached industrial utilization (Dow Chemical Company [1]). Due to a G value of 4×10^4 and the relatively low production rate of ethyl bromide envisaged, a ^{60}Co source of 2 kc is adequate for this process. In general, however, considerably larger and more powerful radiation sources will be required. Suggestions, therefore, frequently appear in the relevant literature on suitable measures by which nuclear reactors can be utilized for radiation-chemical purposes [2-6].

Two ways are being pursued at present: attempting to initiate chemical reactions by using the kinetic energy of fission products, or by the interaction of γ -radiation with matter.

Fission products are especially suitable for reactions in the gas phase, since they provide a satisfactory energy transfer. It is common knowledge [7-9] that experiments have been conducted on the direct synthesis of nitrogen oxides by irradiation with fission products. One of the difficulties of the process lies in the very short range of the fission products in uranium, so that complicated fuel elements are required.

It is, however, advantageous to irradiate liquids with γ -radiation, since a uniform release of energy is ensured even in larger reacting volumes.

REACTOR TYPES FOR RADIATION-CHEMISTRY WITH γ -RADIATION

The following three methods are feasible for the utilization of the γ -radiation created during the operation of a reactor: the chemonuclear reactor [6], the "blanket" chemonuclear reactor [6] and the type suggested here, the "compound" reactor (Fig. 1).

In the chemonuclear reactor, the reactants flow through the reactor core. Viewed in the light of neutron

economics they therefore act, depending on their nuclear properties, either as moderators or as absorbers. The space occupied in the core by the reactants forms the chemical reaction chamber. In the case of the "blanket" chemonuclear reactor, the reaction space is arranged in a zone which is normally occupied by the reflector, i.e., within the reactor pressure vessel. Bearing in mind these concepts, it is obvious that new designs differing from those previously employed will have to be developed for the construction of reactors.

In the "compound" reactor, the chemical reaction space is situated outside the pressure vessel. The neutron economy of the reactor thus remains unaltered. In view of the fact that the reaction mixture is placed between the wall of the vessel and the biological shield, the γ -radiation which is normally lost by absorption in the shield, can be utilized for the radiation-chemical reaction. In accordance with this concept it is therefore necessary merely to carry out a negligible amount of alteration to reactors which have already been proved in order to employ them as "compound" reactors.

Apart from γ -radiation, it is also intended to utilize the thermal energy to the fullest extent, either for producing process steam or electrical power.

The points to be discussed in the following are: the advantages of "compound" reactors, the types of power reactors suitable as "compound" reactors, and the throughput which can be expected.

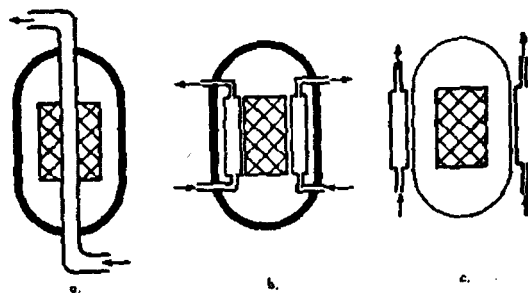


Figure 1. Reactor types for radiation-chemical reactions
a: chemonuclear reactor; b: blanket chemonuclear reactor;
c: compound reactor

* Farbwerke Hoechst AG, vormalis Meister Lucius & Brüning, Frankfurt (Main)-Höchst.

ADVANTAGES OF THE "COMPOUND" REACTOR

Placing the chemical reaction space outside the nuclear reactor vessel results, to a considerable extent, in independence between reactor operation and chemical production, which confers a number of advantages.

Reactor operation and reactor safety

An economic reactor used for power production must operate at the highest possible load factor. The optimum conditions of the reactor should not, therefore, be affected by the measures taken to operate the chemical facility. It is important to avoid having to shut down the reactor because of unavoidable interruptions in the chemical production process.

This is not the case in the chemonuclear reactor shown in Fig. 1a since the reactants constitute part of the core and, because of fluctuations in quantity, composition and temperature, interfere with the neutron economy. Because of this, and as a result of corrosion and fouling, the economics and safety of the reactor are severely affected.

In the case also of the "blanket" chemonuclear reactor as shown in Fig. 1b, the amount of fuel required is higher and control is more complicated, since the reactor has a variable reflector.

The shortcomings in respect of operation and construction mentioned above are not inherent in the "compound" reactor as shown in Fig. 1c. Reactor and chemical production are completely independent of one another in this type; this has a favourable bearing on economics and reactor safety.

Technology and reaction conditions

By separating the nuclear reactor from the chemical reaction space, the reaction conditions in the chemical facility (reaction volume, composition, pressure, temperature, etc.) can be varied within wide limits. This is of importance above all to the reaction temperature since radiation-chemical reactions, cracking of hydrocarbons excepted, proceed at temperatures below 200 °C while, for reasons of the economic production of power, considerably higher temperatures must be achieved in the reactor. A reaction in the interior of the reactor vessel would therefore require additional coolant circuits whose energy release would adversely affect the thermal efficiency of the reactor. Since the chemical reaction takes place outside the reactor vessel, in the case of the "compound" reactor this problem is obviated because the two systems are separate.

Activation

Special attention must be given to the neutron activation of products obtained by radiation-chemical means, since radioactive consumer goods cannot be

offered to the public. Such radioactivity is brought about both by the activation of the reactants as well as by the contamination of the product. Contamination may stem from impurities brought in with the reactants, but may also result from either the corrosion of the chemical reaction vessel walls, or a catalyst, etc. The efflux of fast neutrons is in the main critical for activation; this is because the thermal and epithermal fluxes can be weakened relatively easily by absorbers without much γ -radiation being absorbed.

The specific radioactivity of the product obtained must not exceed the specifications laid down for drinking water. This can be taken as a basis for calculating the maximum permissible flux of fast neutrons for the reaction concerned: a neutron flux density of $10^7/\text{cm}^2 \text{ s}$ is, for instance, adequate for the production of hexadecane-sulfonic acid.

Limiting the flux obviates the costs of careful and expensive purification of the reactants before the reaction, or otherwise, expensive decontamination after passage through the irradiation zone. This purification involves the removal of nuclides with a high activation cross section. In order to check whether the technical purity of the starting materials was satisfactory, hexadecane-sulfonic acid produced by radiation-chemical means was taken as an example, and irradiated in the flux converter of the FRF. Measurements showed activities which confirmed the limit of neutron flux given above.

As a result of these considerations it will be realized that the chemonuclear reactor and the "blanket" nuclear reactor cannot be utilized in radiation-chemical production involving atoms with higher activation cross sections in the reacting mixture. Only the "compound" reactor can be used, since it is possible to reduce the neutron flux to a tolerable degree without affecting the reactor. It is also worth noting that activation of the parts belonging to the chemical facility (reaction vessel, catalyst, pipes, etc.) situated in the radiation field of the reactor can be reduced or avoided and that consequently repairs can be carried out more easily. There is also hardly any limitation on the selection of materials used in the construction of these parts.

Aspects affecting layout and positioning of the chemical vessel

The layout of the chemical reaction vessel depends primarily on the type of reaction and also on the optimum conditions to be attained—namely pressure, temperature, residence time, etc. The wall thickness of the chemical reaction vessel must be kept thin in order to attenuate the γ -radiation as little as possible.

Reaction vessels can for instance be installed in the irradiation zone under water in a tank surrounding the nuclear reactor. The tank replaces or serves as part of the biological shield.

Table 1. Technical data of the reactors

Reactor	CVTR	AKB	630-A
Power [MW (th)]	60.5	300	85
Power density in fuel [MW (th)/t]	23.0	7.5	375
Moderator { material	D ₂ O	D ₂ O	H ₂ O
temperature (°C)	65	85	90
Coolant { material	D ₂ O	CO ₂	air
temperature (°C)	301	550	670
Pressure in pressure tubes (atm. gauge)	105.7	60	25
Vessel dimensions { diameter (m)	2.75	6.52	1.80
height (m)	3.36	5.28	1.00
wall thickness (cm)	2 (Al)	2 (Fe)	7 (Fe)
Wall-thickness of pressure tubes (cm)	Zircaloy-4	Zircaloy-2	NiCr
	0.43	0.27	0.01
Volume of the reaction space (m ³)	50	140	15
γ -dose rate at the edge of the reaction space (Mrad/h)	0.4	0.6	4

NUCLEAR REACTORS SUITABLE AS "COMPOUND" REACTORS

The chief requirement is a high γ flux density and a low neutron flux density outside the nuclear reactor vessel. High thermal power alone is not sufficient to bring about this desirable condition, for the following reason: a high γ flux density exists inside the reactor core of pressurised water and boiling water reactors, but the thick walls of the reactor vessels will reduce it by several powers so that these types of reactor cannot be used for our purpose. The low γ flux density inside Calder Hall type reactors also excludes their being considered. Only reactors having a high power density, with pressure vessels whose wall thickness is relatively thin because of low operating pressures, can be considered. Such types are, for instance, pressure-tube reactors, and probably sodium-cooled reactors, and organic moderated reactors. A few pressure-tube reactors will, therefore, be discussed next:

Carolina Virginia tube reactor of the Westinghouse Electric Corporation [10]

The CVTR is a 60 MW(th) heavy water reactor whose construction and technical data are shown in Fig. 2 and Table 1. This design enables a temperature of 68 °C to be maintained in the reactor vessel, the

coolant temperature in the tubes being nearly 300 °C and the pressure 100 atm. Since the pressure in the moderator is about 1 atm gauge, the wall of the moderator vessel can be kept thin (2 cm aluminium).

Atomkraft Bayern reactor of Siemens

The AKB reactor of 300 MW(th), planned for Atomkraft Bayern, uses carbon dioxide as coolant which leaves the pressure tube at a temperature of 550 °C. The temperature of the heavy water moderator must not exceed 85 °C. In contrast to the CVTR which is loaded with enriched fuel, the AKB reactor will use natural uranium, and hence requires considerably larger reactor dimensions.

630 A reactor of General Electric [11]

The 630 A reactor (Fig. 3) is air-cooled, light water moderated, and highly enriched. Having a capacity of about 85 MW(th), this plant delivers 90 t/h superheated steam at 520 °C and 60 atm. This high steam condition has not been reached by any other reactor so far. The high enrichment gives a high power density in a small core (height 1 m, diameter 1.8 m) and thus a high γ flux density outside the reactor vessel (Table 1).

Table 2. Radiation chemical reactions

	Molecular weight	G value (molecules per 100 eV absorbed energy)	Measured at a dose rate of (Mrad/h)
Hexadecane/sulfonic acid obtained from n -C ₁₆ H ₃₄ , SO ₂ and O ₂ [12]	306	1 260	0.09
Gammexane (R) obtained from C ₆ H ₆ and Cl ₂ [13]	288	3 × 10 ⁶	0.001–0.01
Ethyl bromide obtained from HBr and C ₂ H ₄ [1]	109	4 × 10 ⁶	0.25
Polymerisations of various monomers . . . [14]	50	10 ⁶ –10 ⁸	—

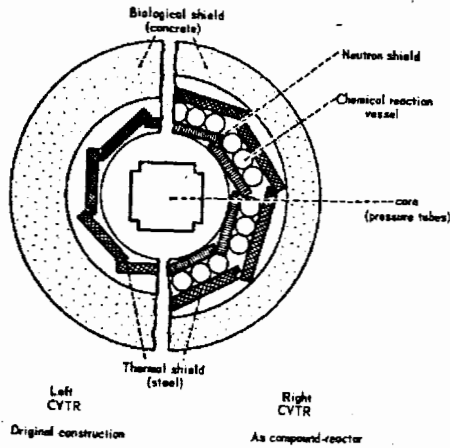


Figure 2. Carolina Virginia tube reactor of Westinghouse

Reactor modifications

Reactors are normally fitted with thermal shields which reduce the neutron and γ radiation to a level which is tolerable for the vessels used. In the case of "compound" reactors, these absorbers must be replaced by materials which mainly absorb neutrons. The materials concerned are graphite, beryllium, boron and their compounds and mixtures with water. Because of the favourable ratio of γ absorption cross-section to removal cross-section, these materials reduce the γ radiation only to a minor extent. A calculation carried out over 6 energy groups of neutrons for the GE reactor 630 A resulted in the curves shown in Fig. 4 representing neutron flux density in the chemical reaction space. It is possible thereby to obtain γ dose rates of several Mrad/h. The replacement of the thermal shield by a weak γ absorber requires special precautions to be taken since excessive gamma heating of the container materials will give rise to unwanted thermal stresses.

Estimation of producible quantities

The following data are required for the calculation of radiation-chemical products: the γ dose rate outside the nuclear reactor vessel, the volume and type of chemical reaction vessel and the G value of the reac-

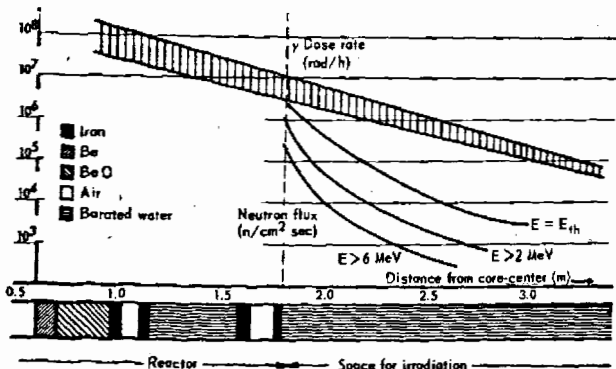


Figure 4. Radiation characteristics of the 630 A reactor

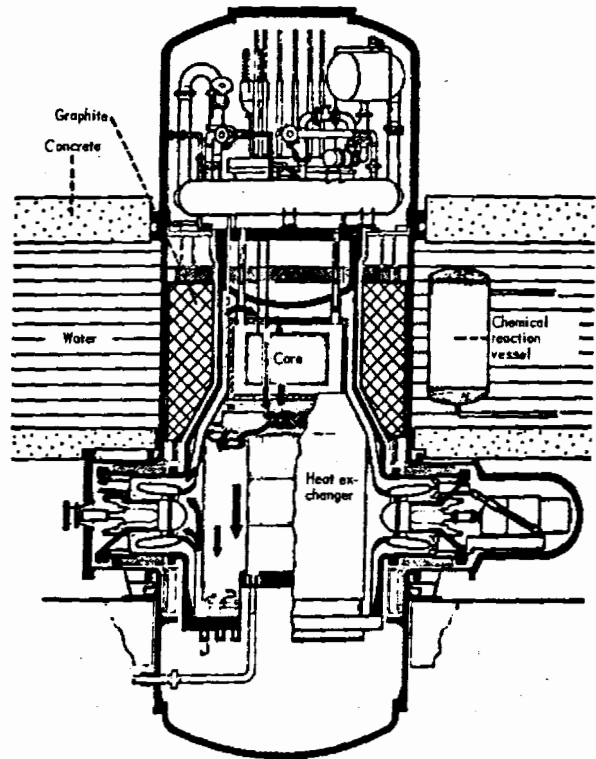


Figure 3. 630 A reactor of General Electric

tion concerned. The G values of several radiation-chemical reactions of technical interest which are initiated by γ radiation are shown in Table 2. The dose rate at which each G value was measured is also shown, since G values may depend on the dose rate. If several simultaneous reactions are considered, this would be possible by subdividing the chemical reaction space, e.g., in a radial direction. The actual

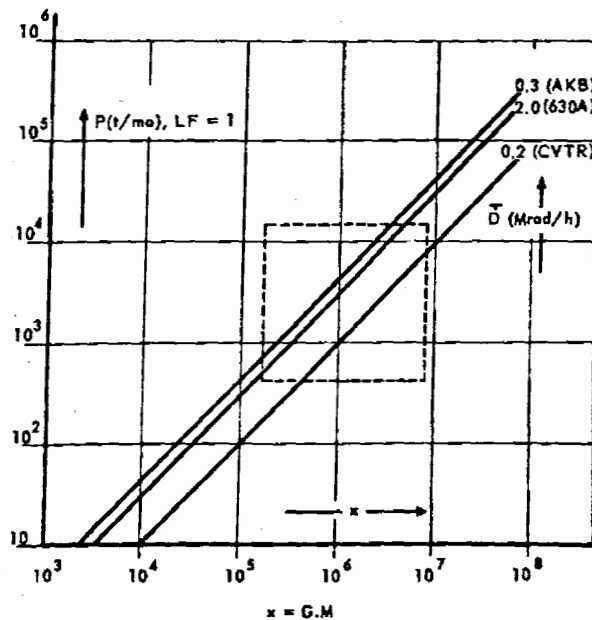


Figure 5. Production capacities in compound reactors

arrangement would be in relation to dose-rate dependence and neutron sensitivity of the reaction, so that an optimum utilization of the available space could be achieved. It is expedient for instance, to place reactions of high G value at the periphery. The dose rate dependence of low G value reactions is generally a linear function, whereas the dose rate dependence of reactions involving chain reactions (high G value) is essentially a root function.

The results available so far [12-14] quoted in Table 2 permit estimates to be made of production quantities P which can be obtained using the power reactors discussed earlier as the radiation sources (see Fig. 5). An annular reaction space 1 m thick and equal in height to the core was assumed in order to compare the three reactors. This space, when filled with water, absorbs more than 90% of the radiation energy.

It appears that only radiation-chemical reactions having G values greater than 100 will be suitable for production on a technical scale in "compound" reactors. The quantities attainable supposing $G < 100$ are too low; if $G > 10^6$, a ^{60}Co source would generally be adequate, unless a very large market could be found for the product.

REFERENCES

1. Harmer, D. E., et al., in *Industrial uses of large radiation sources*, 2, 205, IAEA, Vienna (1963).

2. Lellouche, G., and Steinberg, M., *Industrial chemical production by chemonuclear processes with special reference to the production of fixed nitrogen*, USAEC Report No. BNL 574 (T-157) (1959).
3. Steinberg, M., Powell, J. R., and Green, L., *Review of the utilization of fission fragment energy for the fixation of nitrogen*, USAEC Report No. BNL 602 (T-175) (1961).
4. *Chemonuclear reactors — where do they stand?* *Nucleonics*, 19, (2) 47 (1961).
5. Crean, L. E., Mims, L. S., and Martin, J. J., *Chemonuclear reactor*, *Chem. Eng. Progr.*, 56, (10) 72 (1960).
6. Krauch, H., et al., *Chemiekernreaktoren*, *Dechema Monographien*, 42, 155 (1962).
7. Hardeck, P., and Dondes, S., in *Industrial uses of large radiation sources*, 2, IAEA, 139, Vienna (1963).
8. Landsmann, D. A., and Davies, M. J., *ibid.*, p. 123.
9. Lampe, E. W., et al., in *Industrial uses of large radiation sources*, 1, 41, IAEA, Vienna (1963).
10. Pawlicki, S. S., *Shielding CVTR — a heavy water pressure-tube reactor*, *Nucleonics*, 20, (12), 74 (1962).
11. GEMP-231, *Maritime Nuclear Steam Generator, Status Report No. 1* (1963).
12. Black, J. F., and Baxter, E. F. Jnr., Radiation initiated sulfoxidation of hydrocarbons, *Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy*, P/797, Vol. 29, 162, United Nations (1959).
13. Hills, P. R., Roberts, R., and Spindler, M. W., in *Large Radiation Sources in Industry*, 61, IAEA, Vienna (1960).
14. Charlesby, A., *Atomic Radiation and Polymers*, Pergamon Press (1960).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АБХОТАЦИЯ—RESUMEN

A/542 République fédérale d'Allemagne

L'emploi de réacteurs de puissance
comme sources de rayonnement
de grande capacité pour
la production chimique sous rayonnement

par F. Herre et al.

Dans le cœur des réacteurs de puissance il se produit un rayonnement intense que l'on est obligé d'absorber en majeure partie dans les boucliers thermique et biologique. Diverses méthodes ont été proposées pour exploiter à des fins chimiques ce rayonnement, dans un réacteur « chimionucléaire » (irradiation dans le cœur du réacteur) ou dans un réacteur « chimionucléaire » à enveloppe (irradiation dans la zone du réflecteur). Pour pouvoir employer un réacteur nucléaire comme grande source de rayonnement pour des réactions radiochimiques, il faut, d'une part, que ce réacteur fournisse un débit de dose gamma élevé dans un grand volume, afin d'obtenir un taux de production chimique satisfaisant, et, d'autre part, que le

flux de neutrons ne dépasse pas une limite supérieure définie, afin de maintenir la contamination par activation bien au-dessous de la concentration maximale admissible. Ces deux conditions ne peuvent pas être remplies dans le cadre des propositions faites jusqu'ici avec les réacteurs connus à ce jour. Il faudrait pour cela mettre au point des réacteurs de conception absolument nouvelle, ce qui ne semble pas possible pour un proche avenir.

Le mémoire propose une nouvelle formule: le réacteur « compound ». Celui-ci est caractérisé par le fait que la réaction chimique se déroule en dehors du caisson du réacteur, l'installation chimique faisant fonction en totalité ou en partie de bouclier thermique. Un tel réacteur « compound » permet une production chimique économiquement rentable puisque l'on utilise uniquement le rayonnement qui, sinon, serait de toute façon perdu par absorption dans le blindage.

On peut utiliser des réacteurs de puissance d'un type dont la mise au point est achevée, sans devoir modifier l'économie neutronique. L'utilisation du combustible n'est donc pas diminuée. Un tel réacteur devrait présenter une faible auto — absorption de

rayonnement gamma par le cœur, par le réflecteur et, le cas échéant, par le bouclier thermique, et la pression du modérateur devrait y être faible. Les réacteurs des types à eau bouillante et à eau sous pression ne conviennent pas comme réacteurs « compound » à cause de l'épaisseur des parois que doit avoir leur caisson. Il en est de même des réacteurs refroidis par un gaz, du fait de leur faible densité de puissance et leur grand volume de modérateur. En revanche, il est possible d'utiliser un réacteur à tubes de force avec un faible volume de modérateur et avec refroidissement au gaz sous pression moyenne, étant donné que l'on peut dans ce cas réduire au minimum l'absorption gamma dans le cœur et le matériau de la cuve, et porter au maximum celle de neutrons.

Le réacteur « compound » proposé présente les avantages suivants:

- a) La production d'énergie et la production radiochimique se déroulent presque indépendamment l'une de l'autre dans les meilleurs conditions possibles;
- b) La sûreté du réacteur n'est pas réduite;
- c) L'espace d'irradiation destiné à la production chimique sous rayonnement n'est pas limité;
- d) Le flux de neutrons peut être atténué jusqu'à une valeur limite déterminée sans intervention dans l'économie neutronique;
- e) Libre choix des paramètres de la réaction (pression, température) et des matériaux des récipients de réaction destinés à la production chimique sous rayonnement;
- f) Facilité d'entretien de l'installation chimique.

Pour certaines réactions se déroulant en phase liquide et présentant un intérêt technique particulier, les auteurs ont calculé les quantités que l'on peut produire avec trois réacteurs à tubes de force et fournissent les données pertinentes.

Le réacteur « compound », qui associe la production d'énergie à la production chimique, pourrait contribuer à une exploitation rentable de l'énergie nucléaire.

A/542 ФРГ

Использование энергетических реакторов в качестве крупных источников излучения для радиационно-химического производства

Ф. Герре et al.

Активная зона энергетического реактора является источником интенсивного излучения, большая часть которого должна поглощаться в тепловой и биологической защитах. Показаны различные возможности использования этого излучения для химии или в «химическом реак-

торе» (облучение в активной зоне), или в «реакторе с воспроизводством» (облучение в зоне отражателя). Для того чтобы ядерный реактор мог являться источником излучения при проведении радиационно-химических реакций в больших масштабах, необходимо обеспечить высокую мощность дозы по гамма-излучению (для достижения удовлетворительного химического выхода) и достаточно низкий уровень нейтронного потока (чтобы загрязнения в результате активации были существенно ниже максимально допустимой концентрации). Эти требования нельзя удовлетворить в рамках тех предложений, которые делались до настоящего времени по использованию существующих реакторов, а разработка реакторов совершенно новой конструкции в ближайшее время невозможна.

Для решения этой задачи в докладе предлагается идея «компаунд-реактора». Если химические реакции будут протекать вне бака реактора, то химическая установка целиком или частично может взять на себя функции тепловой защиты. Такой «компаунд-реактор» будет обеспечивать экономичное химическое производство, поскольку в нем используются только «отходы» излучения энергетического реактора, которые все равно необходимо поглощать в радиационной защите.

Для этих целей можно использовать любой технически совершенный энергетический реактор, если не касаться баланса нейтронов. Использование топлива при этом не снизится. Реактор такого типа должен обладать низким самопоглощением гамма-излучения в активной зоне, в отражателе и, если это необходимо, в тепловой защите и должен работать при низком давлении замедлителя. Нельзя использовать кипящие реакторы и реакторы с водой под давлением, поскольку они требуют слишком больших количеств материала для бака высокого давления. Реакторы с газовым охлаждением также непригодны из-за низких плотностей энерговыделения и больших количеств замедлителя. Подходящим типом реактора, вероятно, окажется «реактор с трубами под давлением» с небольшим количеством замедлителя и газовым охлаждением при умеренном давлении. В этом случае поглощение гамма-излучения в активной зоне и материале контейнера можно сделать наименьшим, а поглощение нейтронов наибольшим.

Предлагаемый «компаунд-реактор» имеет следующие преимущества.

1. Генерирование электроэнергии и радиационно-химическое производство практически не зависят друг от друга и протекают при оптимальных условиях.
2. Безопасность реактора не уменьшается.
3. Облучаемое пространство для радиационной химии не ограничено.
4. Нейтронный поток может быть ограничен до нужного значения без нарушения баланса нейтронов.

5. Свободный выбор параметров химических реакций (температура, давление) и материала сосудов для проведения реакций.

6. Легкость обслуживания химической установки.

Для некоторых технически интересных реакций, протекающих в жидкой фазе, рассчитано количество продукции, которое может быть получено на трех реакторах с трубами под давлением.

«Компаунд-реактор» для химического и энергетического производства может служить примером экономичного использования атомной энергии.

A/542 República federal de Alemania

Empleo de reactores de potencia como fuentes de elevada intensidad para la producción química radioinducida

por F. Herre et al.

La intensa radiación producida en el núcleo de los reactores de potencia, que en su mayor parte es absorbida por los blindajes térmico y biológico, puede utilizarse químicamente de diferentes formas, ya sea en el llamado « reactor químico » (irradiación en el núcleo) o en el « reactor fértil » (irradiación en el reflector). El empleo de un reactor nuclear como fuente de radiación en gran escala para inducir reacciones químicas mediante radiaciones requiere que aquél proporcione una elevada dosis y en un volumen considerable (para conseguir una producción química satisfactoria) y un flujo neutrónico que no exceda de cierto límite (para mantener la contaminación por activación muy por debajo de la concentración máxima admisible). Estas dos condiciones todavía no pueden satisfacerse en el marco de las propuestas formuladas hasta el presente, utilizando los reactores conocidos; haría falta perfeccionar un tipo de reactor completamente nuevo, lo cual no parece posible en un futuro cercano.

En la memoria se propone un nuevo reactor de doble propósito, caracterizado por el hecho de que las reacciones químicas tienen lugar fuera del recipiente del reactor, en cuyo caso la instalación química cumple, en todo o en parte, función de blindaje térmico. Un reactor de esa índole permitiría lograr una producción química económica, puesto que solamente haría uso de la radiación del reactor no aprovechable,

es decir, aquella que de otra manera se perdería en el blindaje.

Cualquier reactor de potencia técnicamente perfeccionado puede utilizarse sin necesidad de interferir en la economía neutrónica ni, por tanto, reducir el grado de aprovechamiento del combustible. Un reactor de este tipo habría de tener una baja absorción y en el núcleo y en el reflector y, si fuese necesario, en el blindaje térmico y además tendría que funcionar con una presión reducida de moderador. Los reactores de agua en ebullición y agua a presión no resultan convenientes porque exigen demasiado material para la construcción del recipiente de presión; tampoco sirven los reactores enfriados por gas a causa de su baja potencia específica y de la gran cantidad de moderador que requieren. El tipo apropiado podría ser por ejemplo, el de un reactor de tubos de presión con poca cantidad de moderador y de gas refrigerante a presiones intermedias, puesto que en este caso la absorción y en el núcleo y en el material de contención puede reducirse al mínimo, en tanto que la absorción neutrónica puede aumentarse al máximo posible.

El reactor de doble finalidad propuesto presentaría las siguientes ventajas:

- 1) La producción de energía y la producción química inducida por las radiaciones son prácticamente independientes entre sí y se obtienen en las mejores condiciones posibles;
- 2) La seguridad del reactor no queda disminuida;
- 3) No impone restricciones en cuanto al espacio de irradiación destinado a la producción química;
- 4) El flujo neutrónico puede amortiguarse hasta un cierto valor límite sin interferir en la economía neutrónica;
- 5) Libertad de elección de los parámetros (presión y temperatura) y de los materiales para la construcción del recipiente de reacción química;
- 6) Sencillez del mantenimiento de la instalación química.

Para algunas reacciones técnicamente interesantes que tienen lugar en fase líquida, se han calculado las cantidades que podrían producirse con tres reactores de tubos de presión y se facilitan los datos correspondientes.

El reactor de doble propósito, que combine la regeneración de electricidad con la producción química, podría contribuir eficazmente a la utilización económica de la energía nuclear.

Une nouvelle structure ordonnée, créée par irradiation aux neutrons

par L. Neel*

Jusqu'ici l'attention s'est surtout portée sur les dommages que les rayonnements des réacteurs nucléaires produisent dans les matériaux, c'est-à-dire, en fin de compte, sur les perturbations du réseau cristallin; les rayonnements les écartent de leur état d'équilibre. De même, les quelques applications réussies jusqu'ici résultent surtout d'une excitation, d'une mise hors d'équilibre des atomes ou des molécules — par exemple, la formation de radicaux libres dans la greffe des molécules organiques.

Mais il importe aussi de remarquer que, par un processus inverse, les irradiations dans un réacteur, effectuées à une température suffisamment élevée, facilitent la mise en équilibre du réseau cristallin. Le mécanisme de ces phénomènes est probablement lié à la création par les neutrons rapides de paires interstitiels-lacunes de l'ordre de quelques centaines de paires par neutron. La densité des lacunes devient ainsi considérablement plus élevée que dans une substance normale non irradiée et comme la diffusion à l'intérieur du réseau implique essentiellement les déplacements de lacunes, il en résulte que les vitesses de diffusion, et corrélativement les vitesses de réaction, sont augmentées dans les mêmes proportions.

On sait d'autre part que dans les métaux usuels, les vitesses de transformation deviennent absolument négligeables au-dessous d'une certaine température qui, pour le fer ou le nickel par exemple, est de l'ordre de 400 °C. Il n'est donc pas possible de produire

les composés définis ou les surstructures dont la température de formation est inférieure à cette limite. C'est ainsi que dans les solutions solides de fer-nickel, la surstructure équiatomique Fe-Ni qui, nous le savons maintenant, devrait se former au-dessous de 325 °C, n'avait jamais été observée jusqu'ici.

Les équipes du Laboratoire de physique du solide du Centre d'études nucléaires de Grenoble ont réussi à créer cette surstructure par irradiation prolongée à 300 °C d'un alliage Fe-Ni dans la pile piscine MÉLUSINE. Elle est quadratique et constituée de plans successifs, alternés, les uns formés d'atomes de fer, les autres d'atomes de nickel; elle est remarquable par la grandeur de son anisotropie magnétique. Ses propriétés magnétiques sont décrites en détail.

Il est probable que beaucoup d'autres nouveaux composés ou surstructures pourront être fabriqués par cette méthode; au moins ceux dont la température de formation est comprise entre 250 et 350 °C. Il n'est naturellement pas nécessaire qu'ils soient magnétiques.

Ainsi s'ouvre un nouveau domaine pour les applications des réacteurs nucléaires. Même si aucune application industrielle ne devait en résulter, l'intérêt scientifique en resterait important.

* Commissariat à l'énergie atomique. Avec la collaboration de D. Dautrepe, J. Paulève, S. Laugier, R. Pauthenet et A. Marchand.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/92 France

A new ordered structure created by neutron irradiation

by L. Neel

Neutron irradiation of an Fe-Ni (50% at.) alloy at 300 °C in the swimming-pool reactor MÉLUSINE yielded, by accelerating the diffusion process, a new ordered phase of this alloy of the same type as AuCu.

The evolution of this phase was followed by measuring the magnetic anisotropy and electrical resistance and by X-ray measurements. The super-structure rays obtained confirm a quadratic structure of the AuCu type. The critical temperature, as determined by measuring the electrical resistance in the reactor, was about $320\text{ °C} \pm 2\text{ °C}$. Studies of monocrystals irradiated in a magnetic field gave precise information about the magnetic behaviour of this new alloy, which is organised in small crystallites, the general con-

figuration of which favours its orientation in the direction of the magnetic field applied during irradiation.

The interest of this study lies in the manifold industrial applications of alloys of iron and nickel.

A/92 Франция

Новая упорядоченная структура, созданная в результате облучения нейтронами

Л. Нель *et al.*

В результате облучения нейтронами при температуре 300°С в водо-водяном реакторе MELUSINE сплава Fe — Ni (50%) путем ускорения процессов диффузии получается новая упорядоченная фаза этого сплава типа AuCu.

Это превращение было обнаружено путем измерений магнитной анизотропии электропроводности и рентгеноструктурного анализа. Полученные сверхструктурные линии подтверждают кубическую структуру типа AuCu. Критическая температура, определенная при помощи измерения электропроводности в реакторе, составляет $320 \pm 2^\circ\text{C}$. Исследования на облученных монокристаллах, находящихся в магнитном поле, позволили уточнить магнитные свойства этого нового сплава, который превращается в небольшие кристаллиты, общая конфигурация которых способствует намагничиванию в на-

правлении магнитного поля, применяемого во время облучения.

Это исследование представляет значительный интерес, так как сплавы железа и никеля широко применяются в промышленности.

A/92 Francia

Nueva estructura ordenada, creada por irradiación neutrónica

por L. Neel

La irradiación neutrónica de una aleación de Fe-Ni (al 50%), efectuada a 300° C en el reactor MELUSINE de tipo piscina, permite obtener, por aceleración del proceso de difusión, una nueva fase ordenada de dicha aleación, del tipo AuCu.

La transformación ha sido observada midiendo la anisotropía magnética y la resistencia eléctrica y empleando rayos X. Las rayas puestas en evidencia confirman la presencia de una estructura cuadrática del tipo AuCu. La temperatura crítica, determinada por la medición de la resistencia eléctrica dentro del reactor, asciende a $320^\circ\text{C} \pm 2^\circ\text{C}$. Los estudios efectuados en monocristales irradiados en un campo magnético han permitido definir el comportamiento magnético de esta nueva aleación que se ordena según cristalitas cuya configuración global favorece la imantación en dirección paralela al campo magnético aplicado durante la irradiación.

El interés de este estudio reside en las múltiples aplicaciones que las aleaciones de hierro y de níquel encuentran en la industria.

Pipeline wear in iron ore transportation

By H. L. Tavares, P. E. Aun, A. A. Maestrini and M. T. Magalhães *

This paper is the result of a request made by a metallurgical and mining company aimed at determining the wear of a pipeline used for the transportation of iron ore fines in aqueous suspension.

With the information obtained, further studies have been initiated concerning hydraulics, design and marketing problems.

Brazilian iron ore reserves are amongst the largest in the world, and are distributed as follows:

Friable itabirite:	23.5×10^9 tons
Friable hematite:	1.7×10^9 tons
Compact hematite:	0.8×10^9 tons

From the mining of compact hematite, lumps and medium-sized iron ores are obtained. This mining also produces a large quantity of iron ore fines which form large reserves, together with those resulting from the other mineral deposits. There is an increasing interest, both internal and in the world market, for the iron ore fines in their original form or in the form of manufactured products, such as pellets, briquets, etc. The exploration and exportation of these ores is therefore necessary.

Since the deposits are located about 350 km from the port of shipment, railway transportation of fines is very difficult, due to large resultant losses. Because of this and other difficulties, the idea was conceived of constructing a pipeline to transport the ore in the form of a slurry from the mineral deposits to a pelletizing and briqueting plant established on the coast.

Other advantages inherent in transportation through pipelines are: simplicity of installation, operation and maintenance, low manpower requirements for installation and operation, ease of crossing both natural and artificial obstacles, etc.

GENERAL CONSIDERATIONS

Experiments have been carried out to determine the wear of a pipeline used for the transportation of iron ore slurry.

Wear U is approximately the sum of corrosion C and abrasion A .

To control as closely as possible the parameters influencing corrosion, measurements of pH, EH and dissolved oxygen have been made. Throughout the experiments the pH and EH were kept constant and the dissolved oxygen concentration remained almost constant. It was not possible to separate the effects of corrosion and abrasion in these preliminary experiments.

For abrasion A , an expression has been derived [1]:

$$A \approx A(v^3, \gamma, m, t, D, d, r),$$

where

v = transportation velocity

$$\gamma = \text{slurry density} = \left(\frac{\text{water weight} + \text{ore weight}}{\text{total volume}} \right)$$

m = pipeline material

t = transportation time (or circulation time)

D = hardness of iron ore grain

d = iron ore grain diameter (gradation)

r = grain shape.

Abrasion varies with the third power of the transportation velocity and the optimum value to be used will be just high enough to prevent deposition and to give turbulent flow. Since the pipeline will transport ore for a pelletizing process, homogeneous mixtures [2-3] were formed using very fine iron ore (85% passing 325 mesh) and allowing a low flow velocity.

The slurry viscosity (hematite + water, in a homogeneous mixture) increases rapidly above the density of 1.9 kg/l [4] and this sets an upper limit to the density. Any further increase in this factor during the experiment would decrease markedly the transportation velocity and make possible the deposition of particles. As the ratio of abrasion to the amount of transported material decreases with an increasing density, the largest possible value of the density must be used [1].

In all experiments the same ore and, hence, a fixed value for hardness were used (Mohs value 6). Thus, while maintaining or controlling the values for the pH, eH, v , D , m and γ , curves of U versus t were obtained for the iron ore grains of different shapes and sizes.

* Instituto de Pesquisas Radioativas, Belo Horizonte.

GENERAL METHOD

A loop for the circulation of the slurry was built. In this loop, a radioactivated steel tube was inserted and its wear studied. By suitable sampling and the use of a well-type scintillation detector [NaI(Tl) crystal, $1\frac{3}{4}$ m \times 2 m], the wear was determined since it is proportional to the total count obtained from the ^{59}Fe isotope present.

By preparing and counting a standard having a known mass of the same steel and irradiated under the same conditions as for the tube, the total count obtained can be related to the weight of worn material. This standard was also used for correcting the decay time of ^{59}Fe . This radioisotope technique measures the total wear U , i.e., the wear due to all chemical or physical processes.

EXPERIMENTAL PROCEDURES

Irradiated steel tubes

Three steel tubes of different composition were irradiated. In order to use the irradiation facilities of the Instituto de Pesquisas Radioativas tubes 1 and 2 were activated in our TRIGA Mark I Reactor at 30 kW. These irradiations required special care due to the desired specific activity, and the negative reactivity introduced. The walls of the steel tubes were machined to a minimum possible thickness.

The tubes were then canned with thin aluminium. Due to the low power level, the irradiation times were relatively long.

Tube 1 was used only to arrive at a preliminary design of the experiments.

Tube 3 was irradiated in a swimming-pool reactor at a power level of 2 MW(th).

The characteristics of the tubes are shown in Table 1.

Standards

Cuttings from the tube walls were placed inside the tubes, longitudinally. After irradiation the cuttings from each tube were dissolved separately in hot hydrochloric acid and the resulting solution was diluted with water to 250 ml.

Standards weighing 28 g were obtained by taking 2 ml aliquots from the solution and mixing them with iron ore not yet radioactively contaminated.

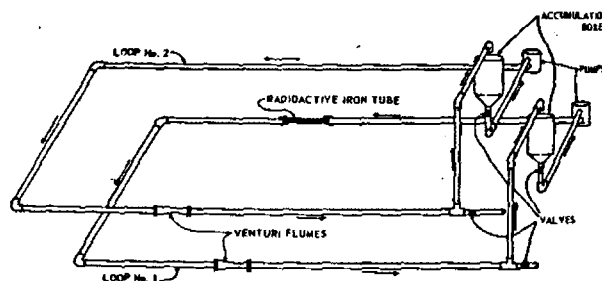


Figure 1. Pipe wear. Experimental loops

Samples

At fixed time intervals a quantity of material was taken out of the circulating slurry and dried. 28 g of the resulting ore were then placed in 10 ml polyethylene containers and counted with a scintillation counter.

Experimental loops

Loop 1: As shown in Fig. 1 steel tubes (1 in internal diameter and 20 m long) were used, with the irradiated tube inserted in a closed loop. The slurry was circulated by a vertical axle pump. Concentration and flow rate were controlled by conventional methods.

Loop 2: In order to study phenomena occurring with the iron ore grains during flow, a second loop without the irradiated tube was assembled.

Iron ore

The iron ore employed was hematite, wet-ground in a ball-mill, dry-ground in a disk-mill, and screened to give a pelleting size distribution.

CONCLUSIONS

Wear rates

Curves for accumulated wear versus transportation time have the shape shown in Fig. 2, which gives a plot of results from experiment 6 in Table 2. Angular coefficients at different points on these curves indicate a variation in the wear rate with slurry transportation time, with a tendency to stabilization. All other curves are given in their derivative form to characterize the wear rate.

Table 1. Characteristics of irradiated tubes

Tube	Chemical composition %					Length (mm)	Weight (g)	Diameter (mm)		Expected specific activities $\mu\text{Ci/g}$, ^{59}Fe	Hardness (Mohs)
	C	Mn	P	S	Si			Internal	External		
1	—	—	—	—	—	560	654.0	26.3	29.9	3	2 3
2	0.21	0.27	0.013	0.020	—	800	667.2	29.5	31.9	5	5
3	0.22	0.48	0.019	0.013	0.27	700	546.0	27.1	29.5	20	5

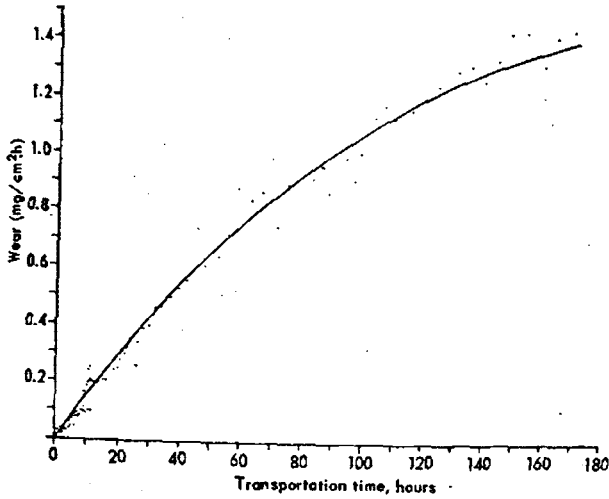


Figure 2. Pipe wear. Typical curve obtained

Grain size and shape variation of dry-ground iron ore

The fact of wear rate decreasing with transportation time could be due, among other factors, to the variation in grain size and shape during the experiment. To test this hypothesis, experiments 11 and 13 were carried out under the same conditions with dry-ground iron ore (disk-milled) as given in Table 2. The slurry used in experiment 13 had previously circulated in the loop 2, for 48 hours to undergo a possible smoothening process.

Loops 1 and 2 were both constructed with the same characteristics, but it was found impossible to obtain the same experimental performance. For equal circulation times, the smoothening of iron ore grains in loops 1 and 2 is different.

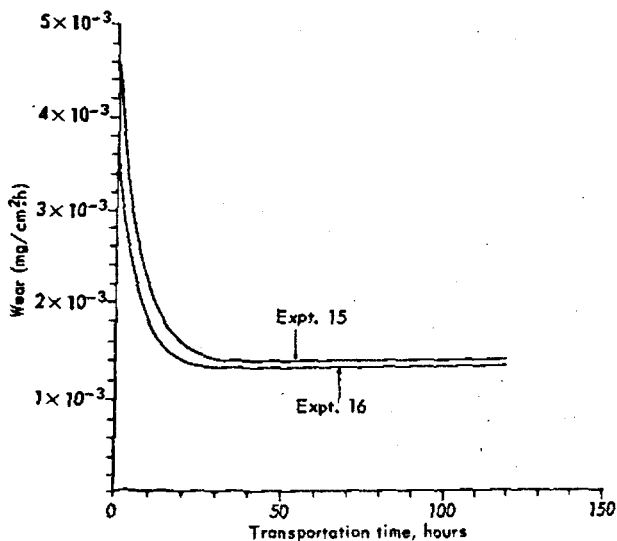


Figure 4. Pipeline wear using wet-ground iron ore (ball-milled). Expt. 16: grains previously smoothened; Expt. 15: grains not previously smoothened

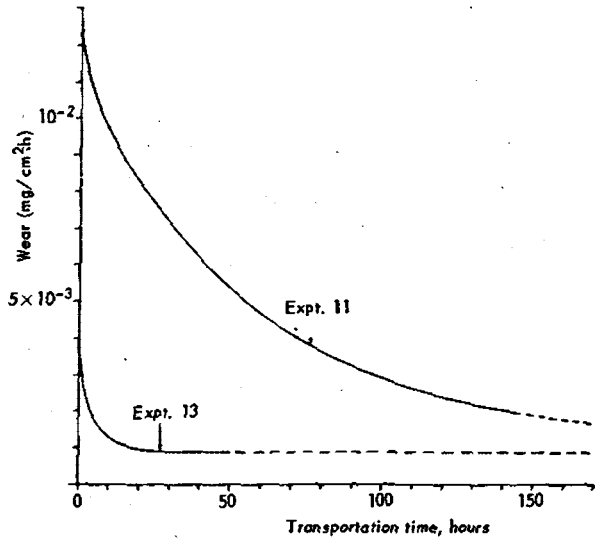


Figure 3. Pipeline wear using dry-ground iron ore (ball-milled). Expt. 13: grains previously smoothened; Expt. 11: grains not previously smoothened

Figure 3 shows that the wear rate in experiment 13 (pre-circulated ore) has sharply decreased compared with experiment 11. This demonstrates that the iron ore grains had undergone a rounding and grinding process during the transportation period. Hence the pipeline lifetime will increase in the direction of the flow, i.e., the sacrifice thickness of the tube will decrease with its length. Photomicrographs have also been made to confirm these results.

Grain size and shape variation in wet-ground iron ore

Experiments 15 and 16 were made to determine whether wet-ground iron ore (ball-milled) undergoes a smoothening during its transport. The results shown in Fig. 4 were obtained using the same criteria as for experiments 11 and 13 with a previous circulation of the iron ore from experiment 16 (Table 2) over 48 hours in loop 2.

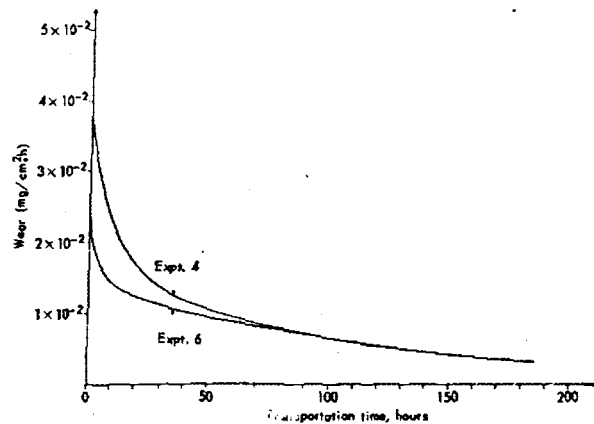


Figure 5. Particle size effect on pipe wear

Table 2. Experimental characteristics (using hematite)

Expt	Iron ore sieve analysis	Grinding Mill	Smoothing time (h)	Average density (kg/l)	Average velocity (m/s)	Tube	Maximum wear rate (mg/cm ² .h)	Thickness decrease rate (mm/yr)
4	30% passing 325 mesh 90% " 200 mesh	Disk	—	1.45	2.5	2	3.75×10^{-3}	0.400
6	90% " 325 mesh 98% " 200 mesh	"	—	1.45	2.5	2	2.40×10^{-3}	0.260
11	90% " 325 mesh 98% " 200 mesh	"	—	1.74	2.2	3	1.25×10^{-3}	0.140
13	90% " 325 mesh 98% " 200 mesh	"	48	1.74	2.2	3	4.00×10^{-3}	0.044
15	80% " 325 mesh 93% " 200 mesh	Ball	—	1.72	2.2	3	4.60×10^{-3}	0.050
16	80% " 325 mesh 93% " 200 mesh	"	48	1.72	2.2	3	3.60×10^{-3}	0.040

In experiment 16, the measured wear rate was smaller than that obtained in experiment 15, but without the drastic variation present in experiments 11 and 13. It seems that the wet-ground iron ores from a ball-mill have a more rounded shape than that of dry-ground material.

Particle size effect

Experiments 4 and 6 (Table 2) were carried out to check the effect of ore size distribution on wear. The curves in Fig. 5 show that the wear increases with the increasing particle diameter [5].

Effect of the grinding process

Finer iron ore than that of experiment 15 was used in experiment 11. However, a smaller wear was obtained in the former case, as showed in Figs. 4 and 3. In view of the foregoing, it can be concluded that wet-ground iron ore produces a wear rate smaller than that for dry-ground material.

Wear rate

In all the experiments, it was established that the wear rate tends, for relatively long transportation times, to give values in the range $1-3 \times 10^{-3}$ mg/cm².h. This range is much smaller than obtained in the first measurements.

Thickness decrease rate

The thickness decrease rate is defined as the decrease in wall thickness of the tube per unit of time, by the effect wear.

The thickness decrease rate is given approximately by $T_s = \frac{W}{\rho}$, where W is the wear rate corresponding to the worst condition (extrapolation at the beginning of the wear curve) and ρ is the tube density.

Thickness decrease rates for the experiments mentioned are shown in Table 2. From the curves these rates can be calculated for any given transportation time.

From the thickness decrease rates found for ore with pelletizing characteristics, a preliminary design for an 18 in diameter pipeline was made [6] and the transportation cost determined. In Brazil an economic study [7] showed that this pipeline can transport a given quantity in a third of the time taken by a railroad connecting the same points.

Based on this, a pilot pipeline (8 in diameter) is being built; a determination of the thickness decrease rates in this installation will be made in order to check the results already obtained.

ACKNOWLEDGEMENTS

The authors wish to express their warmest thanks to Eng. Bernardino Pinto Carneiro and Eng. Luis Oliveira Castro for their valuable suggestions and support. They are also indebted to the direction of the Instituto de Pesquisas Radioativas, to the members of the reactor group and to all of our colleagues who co-operated in making this work possible. Thanks are also due to Metamig S.A. for permission to publish the experimental results.

REFERENCES

- Bergeron, P., *Deuxièmes Journées de l'hydraulique, Société hydrotechnique de France*, pp. 144-163 (1962).
- Condolios, E. and Durand, R., *ibid.*, pp. 29-55.
- Koch, L. W., *Eng. Mining J.*, 163, (10) 74-78 (1962).
- Chawlowski, S., *Revue de l'industrie minière, special No.*, pp. 925-936 (1958).
- Constantini, R., *Mining Engineering*, 13, (8) 977-981 (1961).
- Castro, L. O., *Engenharia, Mineração e Metalurgia*, 39, (231) 99-102 (1964).
- Carneiro, B. P., personal communication.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/114 Brésil

Usure de pipe-lines dans le transport du minerai de fer

par H. L. Tavares et al.

Le mémoire porte sur une étude de l'usure de tubes d'acier transportant du minerai de fer broyé en suspension aqueuse entreprise en vue de déterminer la viabilité d'un pipe-line de 350 km environ destiné au transport industriel de minerai. Vingt expériences ont été réalisées jusqu'ici pendant une année de travail. La méthode a consisté à insérer des tubes radioactivés, longs de 70 cm environ, dans des circuits expérimentaux de 1 inch de diamètre et d'une longueur de 20 m.

Pour la radioactivation, on a utilisé un petit réacteur nucléaire (TRIGA Mark I) et on a obtenu des activités spécifiques de l'ordre de 5Ci/g de ^{59}Fe . Chaque expérience a été conduite pendant 200 heures environ. Les échantillons ont été comptés dans des scintillateurs de NaI(Tl); les résultats des mesures ont servi à déterminer l'usure par référence à des étalons de masse connue irradiés en même temps que les tubes. Les expériences ont établi une relation entre la granulométrie et la durée de vie des tubes. La concentration du mélange, la vitesse de circulation et les techniques de broyage ont été aussi considérées comme facteurs de l'usure. Les effets de la corrosion n'ont pas été négligés, mais ils semblent être réduits. Une diminution du taux d'usure pendant le cours de chaque expérience a pu être imputée à l'arrondissement des grains causés par des collisions. Des photomicrographies ont été faites pour contrôler la forme des grains. Ces résultats permettent d'envisager une diminution progressive de l'épaisseur du pipe-line à partir de son origine, si des considérations d'ordre hydraulique et économique conduisent à des taux d'usure élevés. L'un des résultats caractéristiques donne un taux d'usure de 0,2 mm/an pour du minerai d'hématite fraîchement broyé (début du pipe-line) dans un tube d'acier (C: 0,22%; Mn: 0,48%; P: 0,019%; S: 0,013%; Si: 0,27%) avec une granulométrie de 90% au-dessous de 325 mesh (100% au-dessous de 200 mesh), la suspension contenant 50% de minerai en poids et circulant à 2,2 m/s.

A/114 Бразилия

Износ трубопроводов при перекачке железорудной пульпы

X. Л. Табарес et al.

В докладе описывается исследование износа стальных трубопроводов, по которым перекачивается железорудная пульпа, для установления срока службы трубопровода длиной около 350 км. В течение года было проведено 20 экспериментов. Искусственно активированные патрубки (длиной около 70 см) вставлялись в экспериментальные участки трубопровода, смонтированные из труб диаметром 25,4 мм и длиной 20 м. Для активации использовался небольшой реактор (TRIGA Mark-1), с помощью которого был получен изотоп Fe^{59} удельной активностью около 5 мкюри/г. Длительность каждого эксперимента составляла около 200 ч. Остаточная радиоактивность патрубков определялась на сцинтиллаторе колодезного типа из NaI (Tl); число отсчетов переводилось в величину износа массы путем сравнения со стандартами известных масс, облученных вместе с этими патрубками. Эксперименты позволили установить влияние granulometрии на продолжительность службы труб; кроме того, определялся общий износ в зависимости от концентрации пульпы, скорости ее перемещения и методов измельчения. Исследуются также эффекты истирания и коррозии в отдельности. Влияние коррозии оказалось небольшим. По мере продолжения эксперимента установлено уменьшение износа, что объясняется сглаживанием поверхностей частиц в результате их столкновений. Для проверки формы частиц проводилась микрофотография. Допускается возможность значительного уменьшения толщины стенок трубопровода в направлении потока, если экономические и гидравлические расчеты этой толщины строились с учетом повышенного износа. Согласно типичному результату экспериментов износ внутренней поверхности в начале стального трубопровода (0,22% C; 0,48% Mn; 0,019% P; 0,017% S; 0,27% Si) составляет 0,2 мм/год, если пульпа движется со скоростью 2,2 м/сек и состоит на 50% вес. из гематита, измельченного на 90% до минус 325 меш и на 10% до минус 200 плюс 325 меш.

A/114 Brasil

Desgaste de tuberías en el transporte de mineral de hierro

por H. L. Tavares *et al.*

La memoria analiza un estudio sobre el desgaste de tuberías de acero que transportan finos de mineral de hierro, en suspensión acuosa, con vistas a la viabilidad de una conducción de casi 350 km. Se han efectuado, hasta ahora, casi 20 experimentos durante un año de investigación. El método consistió en la inserción de tubos activados por irradiación (alrededor de 70 cm de longitud) en circuitos experimentales consistentes en tubos de 1 pulgada de diámetro y 20 m de longitud. Para estas activaciones se utilizó un pequeño reactor (TRIGA Mark I) y se obtuvieron actividades específicas de aproximadamente $5 \mu\text{c/g}$ de ^{59}Fe . Cada experiencia se realizó durante 200 horas aproximadamente. Las intensidades se midieron con contadores de centelleo de NaI (TI); los contajes se transformaron en pérdida de masa por comparación con patrones de

masa conocida, irradiados junto con los tubos. Las experiencias correlacionaron el efecto de la granulometría sobre la vida de los tubos; también se tuvo en cuenta en el desgaste total la concentración de la pasta, velocidad de transporte y técnicas de molienda. El estudio trata también de los efectos separados de la abrasión y de la corrosión. La contribución de la corrosión parece ser pequeña. Se encontró una disminución de la velocidad de desgaste en el curso de cada experimento debido a la suavización de los granos causada por los choques. Se efectuaron micrografías para comprobar la forma de los granos. Se espera una disminución significativa del valor de proyecto del desgaste de la tubería en la dirección del flujo si razones económicas e hidráulicas justificasen elevadas velocidades de desgaste. Un resultado típico es un desgaste de 0,2 mm/año de espesor erosionado en el comienzo de la tubería de acero (0,22% C-0,48% Mn-0,019% P-0,013% S-0,27% Si) si la pasta circula con 2,2 m/s llevando 50% en peso de hematites molida hasta un 90% menor que 325 mallas y un 10% entre 200 y 325 mallas.

Current status and future prospects for commercial radiation processing

By J. E. Machurek, G. R. Dietz and H. Stein*

The past eight years have seen the development of a growing number of commercial radiation applications. To regard the use of radiation as an industry is premature; however, the clear beginnings of industrial commercialization of radiation processing are at hand.

This presentation will discuss several commercial radiation applications in existence today, such as the production of items including cross-linked polyethylene wire, tubing and film, semi-conductor components, ethyl bromide and the sterilization of medical supplies. Possibly even more encouraging than the existing processes, however, are those which may be classed as "near-future" commercial processes. These include the radiation processing of wood-plastic materials, foods, coatings, improved semi-conductor devices, and others.

The AEC, in attempting to provide a sound basic technology for the development of a process radiation industry, has a special interest in and is supporting development of several of these applications. While our interests are primarily in the area of isotope utilization, electron accelerator applications are equally as important to complete the spectrum of processing systems.

EXISTING COMMERCIAL APPLICATIONS

The use of radiation in the United States for commercial processing is more widespread than one might at first realize, and encompasses many areas. The total annual sales volume of radiation-processed products in the United States is conservatively estimated at \$70 million and is growing rapidly. For this presentation presently known applications have been chosen for further discussion.

Cross-linked polyethylene

The production of radiation cross-linked materials is one of the most widespread uses for radiation.

Polyethylene wire insulation, shrinkable tubing and plastic film are by far the most important products.

Irradiated polyethylene, under the trade name "Irrathene", was introduced by the General Electric Company as early as 1954 as tape and film for electrical insulation. Several companies, now active in the production of wire insulation and shrinkable tubing, include the General Electric Company, Electronized Chemical Corporation, Raychem Corporation, Radiation Materials, Inc., Sequoia Division of Anaconda Wire and Cable, Suprenant, and Radiation Dynamics, Inc. Superior physical properties of irradiated polyethylene wire include its being half again as heat resistant as regular polyethylene, and its better stress characteristics.

Radiation cross-linked polyethylene film is also far superior in many respects to its unirradiated counterpart. The advantages of radiation produced film include high temperature performance, stress-cracking resistance, and shrink-fitting capabilities. Conventional polyethylene film melts below 125 °C, whereas irradiated material maintains its integrity up to its decomposition temperature at about 250 °C. In addition, the irradiated film has a five-fold increase in strength, can be stretched to twice its original size, and then control-shrunk for contour-fit packaging [1]. This latter characteristic makes the film ideal for use as a food wrap. The Cryovac Division of the W. R. Grace Company [2] is the major producer of polyethylene food wrap today. The ultimate use of the polyethylene dictates the required amount of radiation to induce adequate cross-linking. Generally, an optimum balance of properties is obtained by a dose of 15-20 megarads. At present, machine sources of electrons are used exclusively for the processing of polyethylene products because of the minimal penetration required.

Semi-conductor components

Electronized Chemical Corporation, a subsidiary of High Voltage Engineering Corporation, is processing well over a million semi-conductors per month as a service to a number of manufacturers of solid state

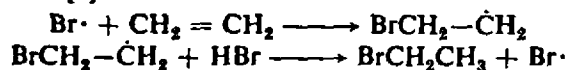
* US Atomic Energy Commission, Washington, D.C.

devices [3]. Radiation, as used in semi-conductor manufacturing, produces a controlled number of imperfections in a lattice via positive-ion proton implantations. This reduces the device's switching time. Machine irradiation costs for semi-conductor applications vary between 0.5 and 5 cents per unit, and often represent less than one per cent of the unit's selling price.

Ethyl bromide

The radiation-catalyzed production of ethyl bromide by the Dow Chemical Company was the first commercial radiation process for chemical production. Ethyl bromide, a volatile organic liquid used primarily as an intermediate for organic synthesis, has particular application in the production of pharmaceutical products.

The conventional aqueous process of reacting ethanol and hydrogen bromide yields water as a byproduct [4]. The outstanding advantage of the new process is that it produces a material virtually 100% pure, without side products or contaminants. The reaction mechanism has been postulated as follows [5]:



Simple and reliable operation with efficient use of gamma rays from a 2 000 curie cobalt-60 source makes the new Dow process more economical than conventionally produced ethyl bromide. In the new process, ethylene gas and liquid hydrogen bromide are fed to the bottom of a reaction vessel and flow upward about a core of cobalt-60. As the radiation-catalyzed reaction takes place, ethylene goes into solution as ethyl bromide [6]. *G* values in excess of 20 000 are obtained. Although in itself small, this application is expected to spark further attention to the use of isotopes to initiate or catalyze chemical reactions. It is of interest

that the development of this process is the result of seven years of research and development by Dow [7].

Medical supply sterilization

Medical supply sterilization has been adapted primarily to the processing of surgical sutures and disposable syringes and needles. Radiation-sterilization of sutures is accomplished upon the finished packaged product, eliminating both heat and aseptic handling procedures. Compared to a tensile strength loss of 12 to 22 per cent from heat sterilization, a loss of only 4 to 8 per cent results from radiation-processing. Thus irradiated sutures are 8 to 14 per cent stronger than heat sterilized sutures [8]. In addition, pliability is maintained. The final product is one which assures the surgeon of increased safety and reliability. Of the sutures sold in the United States today, approximately 80% are sterilized by radiation. Ethicon, Inc., a subsidiary of Johnson & Johnson, is the large volume producer of sterilized sutures, although companies such as Hospital Supply Company and Becton, Dickinson & Company also produce irradiated medical supplies. Radiation-sterilization of disposable syringes and needles has also been on the increase. As with sutures, costly aseptic handling procedures are eliminated.

Until recently, machine-radiation was used exclusively as the radiation source. Based upon a re-evaluation of technical aspects, however, Ethicon felt it advantageous to convert to cobalt-60, and is currently constructing a plant in Texas which will initially utilize 60 000 curies of cobalt-60. This plant will be utilized to sterilize not only sutures, but also other medical supplies. Ethicon has indicated that other isotopic installations for medical supply sterilization will follow.

Table 1 summarizes the foregoing commercial processes.

Table 1. Existing commercial applications

Process	Radiation source	Company	Volume
Cross-linked polyethylene wire insulation, shrinkable film	Machine	Raychem Corp. General Electric Co. Electronized Chemical Corp. Radiation Materials, Inc. Anaconda Wire & Cable Co. Suprenant Radiation Dynamics, Inc.	\$27 million/yr
Cross-linked polyethylene film	Machine	W. R. Grace Co.	1 500 tons/yr
Semi-conductor components	Machine	Electronized Chemical Corp.	20 million units/yr
Production of ethyl bromide	Cobalt-60	Dow Chemical Co.	400 tons/yr
Medical supply sterilization (United States)	Machine and cobalt-60	Ethicon, Inc. Hospital Supply Co. Becton, Dickinson & Co.	\$28 million/yr

PROXIMATE PROCESS APPLICATIONS

The aforementioned commercialized processes represent the initial returns on years of research investment. It can be expected that more substantial use of radiation will be realized with the proximate commercialization of the following processes, which represent only a few of the total potential applications under investigation:

Wood-plastic material

A new family of wood-plastic materials has been developed at West Virginia University under contract to the Atomic Energy Commission [9, 10]. The product, a wood-plastic combination, is produced by impregnating wood with a liquid monomer such as methyl methacrylate, then inducing polymerization by radiation. Various combinations of polymer and wood have been evaluated, including sugar maple, white pine, birch and white oak.

In general, the product produced:

- (a) can be made fire resistant;
- (b) is harder than natural wood by up to 900 per cent, hence more resistant to blows, scratches, or marring;
- (c) has a considerably higher compression strength;
- (d) has much improved static bending strength;
- (e) absorbs moisture more slowly and therefore has more dimensional stability (resistance to warping and swelling);
- (f) highlights the natural wood grain and color;
- (g) can be sawed, drilled, turned and sanded, giving a hard, beautiful, satin-smooth finish:

Probable markets include those for end-item or finished products. Typical applications include: Furniture (indoor and outdoor), floors, window frames, sills and doors, tool handles, decorative trim, structural beams, sporting goods, boat decks and fittings, shoe lasts, dies and jigs.

Processing technology and customizing characteristics for these wood-plastic materials has been steadily improved during the past two year development effort. Experience with impregnation procedures using various monomers (methyl methacrylate, hydroxy-ethyl methacrylate and polyvinyl acetate), varying radiation doses and catalytic additives have developed improved techniques having economic significance. For example, radiation doses required to induce the polymerization have been reduced by as much as 75% to 0.5 megarad. The process may be readily adapted for volume production of finished products by industry. Gamma energy from cobalt-60 is being used as a radiation source because of its high penetrability and independence from target shape. The processing of panels or veneers, however, may be better adapted to machine irradiation.

Food processing

There are two separate but co-ordinated programs within the United States related to food preservation [11-14]. The US Army's Quartermaster Corps effort has the major objective of developing selected radiation-sterilized (high dose) meat items as components of military rations. These products can be kept for several months and even years at room temperatures and yet be quite acceptable. The second part of the over-all national program, an extension of earlier Army work, has been supported by the US Atomic Energy Commission since 1960. Its prime objective is the development of radiation-pasteurized (low dose) fish and fruit products. These items, distributed under normal refrigerated conditions, exhibit a marked reduction of up to 75 per cent in fruit decay, or an extension of fresh fish "shelf-life" three to five times the normal storage life. A further objective of the AEC's program is the development of prototype commercial food irradiation facilities.

The Army's research is centered at laboratories in Natick, Massachusetts. Complete radiation support is offered in their Radiation Laboratory, a facility including a complete food preparation area, a 1.1 million curie cobalt-60 source, and a 24 MeV, 18 kW linear accelerator. Ham, pork, chicken and beef are meat items receiving greatest emphasis for development. Large scale troop acceptability tests performed during the past year indicate that all of these items are now acceptable for inclusion in the military ration. An even better product, however, is believed attainable.

Research in the AEC pasteurization program is being conducted at a number of universities and other laboratories throughout the country. Products showing the best radiation response include peaches, nectarines, oranges, strawberries and tomatoes in the fruit category, while marine products include soft-shell clams, haddock, halibut, crab, flounder and shrimp. Because of the lower doses involved in radiation pasteurization, generally less than 0.5 megarad, there are few if any problems in taste and texture changes. Significant advances in product development continue to be encouraging [15-19].

Several highlights of the over-all national program are noteworthy:

(a) On 8 February 1963, radiation-sterilized bacon, 4.5-5.6 megarad, was approved for unlimited public consumption. Acceptable radiation sources include cobalt-60, cesium-137, and electrons with energy of 5 MeV or less.

(b) On 21 August 1963, radiation-disinfection of wheat and wheat products was likewise approved. Acceptable radiation sources include cobalt-60 and cesium-137. Approval of electron irradiation with 5 MeV energy has been requested.

(c) Petitions for sprout-inhibition of potatoes (5 000-10 000 rad) and mold and decay control of oranges (75 000-200 000 rad) are currently being evaluated by the Food and Drug Administration.

(d) During the next 12-18 months, clearances will be requested for pasteurized fruits to include apples, pears, sweet cherries, peaches and nectarines, and tentatively for marine products such as halibut, haddock and related bottom species and shrimp. Requests for clearance of sterilized meats will include chicken and pork. Clearance for radiation processed onions for sprout control is also likely.

(e) Radiation facilities for food processing either in operation or under construction [20] include those for bulk or packaged grain products [21], an experimental on-ship irradiator [22], a mobile truck mounted irradiator [23], and a land based fish processing pilot plant [24]. All utilize cobalt-60.

(f) Marketing and economic studies on pasteurized fish and fruit products have indicated a price range acceptable to industry for the radiation application [25]. Nearly 60% of the US fishing industry could tolerate a radiation cost of 1 to 3 cents per pound, which can now be met, while fruit irradiation costs, neglecting savings in spoilage, should generally be 1 cent or less per pound.

The commercial application of radiation processed foods in the United States has great potential, and limited commercial activity is near at hand. Several food processing companies are actively engaged in developing preliminary design concepts of radiation facilities for specific products. The removal of legal restrictions through Food and Drug Administration clearances will provide a base of acceptable products for initial radiation applications. It is expected that these applications will be limited during initial commercial development, but then will gradually spread to a fuller spectrum of food products.

Curing of coatings

A radiation process, developed by High Voltage Engineering Corporation of Burlington, Massachusetts, has proved excellent for the curing of paint primers and coatings in building materials. Information related to this process is limited, due to proprietary interest. It is evident, however, that costs for production line curing of factory applied coatings compare favorably with those for conventional air drying or heat curing. The radiation curing costs range from 30 to 80 cents per thousand square feet. Realistic production levels using machine electron radiation are approximately 18 000 square feet per hour as against an industrial average of about 12 000 square feet per hour for conventional curing.

Improved semi-conductor devices

Fundamental Methods Associates, Inc., of New York, is developing a technique termed "transmutation doping" which produces unique semi-conductor components [26]. The semi-conductor material is transmuted by thermal neutrons from a reactor to produce electronically active "dopant" impurities at desired spacial locations within the semi-conductor crystal. Deposition of the dopant impurities is controlled by completely enclosing the semi-conductor within a "radiation die". This die is a thin box-like structure composed of thermal neutron-absorbing material (e.g., boron or cadmium) with a pattern of slits which permit neutrons to enter the semi-conductor in a geometry determined by the slit arrangement. A wide variety of both simple and complex devices, including many with unusual performance characteristics, can be fabricated at reasonable cost by this process. Diodes, transistors, micro-electronic circuits, solar cells, and thermoelectric elements are typical products. Doped configurations of unusual but desirable shapes can be produced, and wide barrier regions can be made. Fabrication of a cadmium radiation die can be performed at low cost and with considerable flexibility. The neutron transmutation doping technique should enable the preparation of silicon carbide devices, which cannot be doped by conventional methods. The "proof-of-principle" of this process has been firmly established and refined techniques are now being developed for the production of highly complex micro-electronic units.

Biodegradable detergents

Large accumulations of foam in some rivers of the United States and Europe have been attributed to the rapidly increasing use and poor biodegradation of present synthetic detergents. One solution to this problem has been offered by the Esso Research Engineering Company, which has developed a process for the radiation synthesis of a new "sodium alkane sulfonate" biodegradable detergent. This detergent, easily digested by bacteria in rivers and in sewage treatment plants, will alleviate foaming.

The synthetic detergent material in most common use is "tetrapropyl-benzene sulfonate", derived from petroleum. More than one billion pounds are produced yearly. Its superior cleansing ability and other advantages over soap in "hard" water have made it the dominant detergent. As populations increased, however, the use of synthetic detergents soared (80% of all cleansers now used in the US, and the foaming problem arose. In the US, some streams have been covered with foam and in certain heavily-populated sectors, such as parts of Long Island, New York, drinking-water from faucets has foamed. Foam is only a symptom of an over-all water pollution prob-

lem, about 90 per cent of which stems from the wide assortment of organic material usually found in rivers and sewage systems. Most of this polluting material is related to man's use and re-use of the water. Nevertheless, the blame has been placed on the visible suds, which can arise from very small quantities of detergents. In the US, national and state legislation banning synthetic detergents that are not biodegradable have been introduced. In the Federal Republic of Germany, a law to this effect has already been enacted. To surmount this problem, detergents must be developed which are not only biodegradable but which are also economical and have high cleansing characteristics. According to Dr. Charles L. Fleming, of Esso Research, their new detergent, the product of a radiation-induced sulfonation action, is made from a hydrocarbon fraction of "unequaled high quality which can be made available almost anywhere in the world in essentially unlimited quantities, and is inherently inexpensive" [27]. The new detergent is claimed to be superior in cleaning ability to the active ingredient in today's most widely used detergents. It is also said to be more versatile because greater solubility permits its use in both liquid and powder formulations. This new detergent is now being produced in pilot plant facilities by Esso Research. They selected cobalt-60 for the pilot study.

Textiles

The American Cyanamid Co. of Stamford, Connecticut, has succeeded in using radiation to improve the dyeability of polypropylene. The process consists of radiation grafting of chloromethylstyrene to polypropylene textile fibers. Such grafted fibers can be dyed by direct or acid dyes in non-aqueous baths using levels of graft of about 25 per cent by weight. This leads to covalent bonding arising from the reaction between the dye and the benzyl chloride group of the

graft. Dyeing in standard aqueous baths can also be achieved at even lower levels of graft (less than 10% by weight) if the grafted material is treated with a nucleophilic reagent, such as pyridine. This improvement in the dyeability of polypropylene greatly widens its potential application as a fiber. American Cyanamid claims that using this radiation process, polypropylene can be made as dyeable as wool at a cost of 5-10 cents per pound.

Polymerization of ethylene and copolymers

Intensive research has been conducted at Brookhaven National Laboratory for the past few years on the radiation polymerization of ethylene and copolymers. This radiation induced reaction can be made to proceed with a high degree of efficiency (G values up to 150 000). The polyethylene produced is of high molecular weight. At the doses employed, the material is non-crosslinked. Several companies have shown considerable interest in this process. Even more important, many copolymers of ethylene have been polymerized by radiation, the most important of which is a copolymer of ethylene and carbon monoxide. This material is characterized by a high density and can be easily cast into high clarity film.

High density polymers cannot be produced easily in conventional processes; therefore, copolymers starting with inexpensive raw materials such as ethylene and carbon monoxide are of great interest. The construction of a pilot plant is planned in the near future for the production of these materials in quantities sufficient for industrial evaluation. Table 2 summarizes the foregoing proximate process applications.

RADIATION SOURCES

Ionizing radiation for process application is obtained from either isotopes or machines. Cobalt-60 and

Table 2. Proximate process applications

Process	Principal radiation source	Potential use
Wood-plastic material	Cobalt-60 machine	Furniture, flooring, decking, sporting equipment, decorative trim, etc.
Food processing	Cobalt-60 machine	Preservation of food
Curing of coatings	Machine	Plastic-coated plywood panels, paint primer curing, etc.
Improved semi-conductor devices	Nuclear reactor	Diodes, transistors, multi-functional electronic components
Biodegradable detergents	Cobalt-60	Volume commercial detergent production
Textiles	Machine	Dyeability, mildex resistance, fire retardation, water resistance
Polymerization of ethylene and copolymers	Cobalt-60 Strontium-90	Production of commercial polymers

cesium-137 are leading contenders in the former category, while low-to-intermediate range (0.3 to 3.0 MeV) electron accelerators now constitute the mainstay of the machine industry. Their capabilities and characteristics are evaluated as follows:

Cobalt-60

A chief advantage of this reactor-produced isotope lies in its inherent ease of fabrication, containment and handling. Its relatively high gamma energy (1.33 and 1.17 MeV) and penetrability make it ideal for bulk processing. These factors, coupled with a 5.3 year half-life and its availability in large quantities at a reasonable cost make cobalt-60 the leading choice of isotope radiation sources for the next few years.

Cesium-137

Cesium-137, also a gamma emitter (0.67 MeV) depends on availability from the separation of gross reactor-produced fission-product waste. The advantage of its around 30-year half-life is offset by its lower gamma yield and penetrability, which necessitates a curie requirement of 4 to 5 times that of cobalt-60. In addition, cesium-137, most often used in a chloride form, is extremely soluble, creating a potentially difficult containment problem. Wide-scale use of cesium as a processing tool is dependent on achieving production and encapsulation costs approximately one-fifth that of cobalt. These costs, although not presently realized, are within the capability of proposed separation facilities.

A recent study conducted by the General Electric Co. under contract to the AEC indicates that purified fission products, such as cesium-137, could be produced at a cost of about \$0.10 per curie with a production throughput of 10 megacuries per year [28]. To this, costs of encapsulation must be added.

Strontium-90

Like cesium, strontium-90 is obtained from the chemical separation of spent reactor fuel elements. Being a β -emitter, strontium uses in industrial processing are limited by low penetrability. It must be encapsulated in thin walled materials. Consequently it is more suited to liquid or gas applications, such as in high pressure vessels, where most of the energy can be absorbed more conveniently and efficiently, resulting in smaller and less expensive pressure vessels. Strontium-90 is not well suited for the irradiation of bulk solids, nor can it compete economically with machine radiation for the processing of thin films and fabrics.

Sodium-24

This source is available only in conjunction with a liquid sodium-cooled reactor. This irradiation tech-

nique differs from other isotope sources in that the sodium must be continuously "recharged" by the $^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$ reaction as a result of its reactor cycling. Its 15-hour half-life does not present a problem, but a low specific activity and dose rate result in an increased dwell-time and source inventory. The highest energy gamma of 2.75 MeV makes in an excellent source for the processing of thick bulky items. Transportation of the product to and from the reactor site may present economic difficulties.

An advantage not to be overlooked is that the unique combination of an existing power reactor and isotope source could provide radiation energy at minimum cost. A case in point involves the sodium-cooled Nuclear Power Facility at Hallam, Nebraska. In January 1964, the Governor of Nebraska announced a resolution of the Board of Directors of Consumers Public Power District, Hallam, that the gamma ... "energy source for industrial utilization would be made available at the lowest possible cost" [29]. The radiation charge would not include amortization of the power plant, but would include the exceptionally low costs of incremental heat losses.

Spent fuel elements

Although once considered a logical choice as a process-radiation source, the use of spent fuel elements has largely been discounted. The control of the radiation field is difficult because of the variance in size, shape, specific activity, useful life and mixed spectrum. The use of spent fuel elements as a food irradiation source has not been authorized because of the small but measurable activity induced in the food. Private commercial use is therefore unlikely at this time.

Accelerators

Very intense beams of high-energy electrons can be produced by particle accelerators which convert conventional line-power to electron-power with good efficiency. The greatest advantage of the electron beam is the very high intensity radiation that can be produced. The radiation intensity and output available from some of these accelerators exceeds, by orders of magnitude, that from any other sources of radiation which might otherwise be considered for process-radiation. An impressive number of accelerators specifically developed as electron beam sources is now in use in this country and abroad [30]. Most of the electron beam accelerators used today (0.3 to 3.0 MeV range) are limited by their relative lack of penetration. Higher energy machines (linear accelerators), while providing an electron beam of higher penetrability, are significantly higher in cost and lower in reliability. Electron beams with energies up to 10 MeV (approximately 5 cm penetration) do not produce any practical difficulties with regard to induced activity [31].

X-rays

Electron beam conversion to X-rays provides an alternate solution to the penetrability problem, and offers advantages in high dose rates and partially directional beaming. Although adequate in laboratory use, X-ray units for practical commercial processing have not yet been demonstrated.

Choice of source

There has been a great deal of discussion in the past over the relative merits of isotopes and accelerators. The comparisons are largely invalid because of over-simplification. For example, a comparison of the superiority of machines over isotopes based on kilowatt output is misleading. The obvious advantages of isotopes include exceptional reliability, low maintenance and simplicity of operation, while accelerator advantages include ultra-high dose rates, flexibility of operation and directional output. There are several situations where only one source of radiation can logically be used, such as the use of isotopes in processes requiring high pressure reaction vessels, or the use of electron accelerators for the production of thin films or fabrics. For the most part the choice of a radiation source for processing is very dependent on the more subtle characteristics of both the application and the source. For instance, the fact that an isotope cannot be "turned off" is often cited as a disadvantage. However, this characteristic becomes a distinct advantage for chemical production processes which must operate reliably on a continuous 24-hour basis. A breakdown or stoppage in this type of process can often result in great economic loss. In summary, the radiation source must be "wedded" to the process application by considering the entire operation and not just the energy-input step. For these reasons generalized comparisons of isotopes and accelerators are meaningless. *The choice of the source can be made only with regard to the demands of a specific process.*

CONCLUSION

Although the process radiation industry is still in its early infancy, several processes are now a commercial reality, while others are close to it. Industrial firms as well as the Government are conducting research on the possible utilization of process radiation energy (see Tables 1 and 2). However, industry generally is not situated to establish solely with its own resources the technology necessary for a process radiation industry comparable in size to its potential for the principal reasons that:

(a) the technological development required is rather basic in nature and very wide in scope; thus it is not specific to the particular product interests of any one industry or organization;

(b) the research equipment and facilities needed to develop the required basic technology are novel in design, significant in cost, relatively expensive to operate, and beyond industrial capability to furnish the necessary specially trained and experienced personnel at this point in time.

Accordingly, the Process Radiation Development Program of the AEC is designed primarily not to develop specific new processes, but rather to fill the foregoing technological void, thereby accelerating private initiative in the growth of productive applications of ionizing radiation throughout the national economy.

REFERENCES

1. Ward, R. A., *Irradiated Polyethylene Comes of Age*, *Nucleonics*, 19, (8) 52 (August 1961).
2. *Radiation Processing of Chemicals*, *Chem. Eng. News*, 41, 80-91 (22 April 1963).
3. *Loc. cit.*
4. *Ethyl Bromide Process Uses Radiation*, *Chem. Eng. News*, 52 (19 November 1962).
5. Harmer, D. E., Beale, J. S., Pumpelly, C. T., and Wilkinson, B. W., *The Dow Ethyl Bromide Process: An Industrial Application of Radiation Chemistry*, *Industrial Uses of Large Radiation Sources*, II, 217, *Conference Proceedings*, Salzburg, Austria, May 1963.
6. *Chemical Week*, 28, 24 November.
7. *The Atom Runs a Chemical Plant*, *Business Week*, 144, 17 November 1962.
8. Artandi, C., and Van Winkle, W., Jr., *Electron-Beam Sterilization of Surgical Sutures*, *Nucleonics*, 86 (March 1959).
9. Kent, J. A., Winston, A., and Boyle, W. R., *Preparation of Wood-Plastic Combinations Using Gamma Radiation*, *Annual Report to the USAEC*, ORO-612 (1 September 1963).
10. *Irradiation Produces Whole New Family of Wood Products*, *Press Release*, *Isotopes Development*, No. 1, USAEC (7 January 1964).
11. Department of the Army, Office of the Quartermaster-General, *Revised Program: Food Preservation by Ionizing Energy*. Hearings before the Joint Committee on Atomic Energy (JCAE), *National Food Irradiation Research Program*, Part I, 147, 14-15 January 1960.
12. *National Food Irradiation Research Program*, Hearings before JCAE, Part II, 31 March 1960.
13. *A Review of AEC and Army Food Irradiation Programs*, Hearings before the JCAE, 6-7 March 1962.
14. *Review of the Army Food Irradiation Program*, Hearings before JCAE, 13 May 1963.
15. University of California, *Radiation Technology in Conjunction with Post-harvest Procedures as a Means of Extending the Shelf Life of Fruits and Vegetables*, *Annual Report No. TID-19206 to the USAEC*, 1 February 1962-30 January 1963.
16. Miyauchi, D., Eklund, M., Dassow, J., Spinelli, J., and Stoll, N., *Application of Radiation Pasteurization Processes*

- to Pacific Crab and Flounder, Annual Report No. TID-19585 to USAEC, November 1963.
17. Novak, A. F. and Liuzzo, J. A., *Radiation Pasteurization of Shrimp*, Annual Report No. ORO-615 to USAEC, January 1964 (in print).
 18. Nickerson, J. T. R. and Goldblith, S. A., *A Study of the Effects of Sub-sterilization Doses of Radiation on the Storage Life Extension of Soft-Shell Clams and Haddock Fillets*, Annual Report to USAEC, 30 April 1963 (in print).
 19. Slavin, J. W., and Ronsivalli, L. J., *Study of Irradiated Pasteurized Fishery Products*, Annual Report No. TID-19969 to USAEC, 29 November 1963.
 20. Dietz, G. R., *Development of Irradiation Facilities*, Internal Report of Division of Isotopes Development, USAEC, presented at Eighth Contractors' Meeting, Radiation Preservation of Foods Program, Natick, Massachusetts, 7-9 October 1963.
 21. *Cobalt-60 Bulk Grain Irradiator*, Study Report to USAEC, Report No. BNL-810-(T-312), 30 June 1963.
 22. *Shipboard Cobalt-60 Radiopasteurizer*, Study Report to USAEC, Report No. BNL-808-(T-311), 30 June 1963.
 23. *Conceptual Design Study of a Mobile Gamma Irradiator for Fruit Produce*, Final Report to USAEC, Report No. TID-18605, 31 May 1962.
 24. *Marine Products Development Irradiator Facility*, Internal Report, Division of Isotopes Development, USAEC, Report No. AN-147, 15 February 1964.
 25. Machurek, J. E., *Economic Aspects and Prospects of Commercialization of Radiation Pasteurized Foods*, presented at U.S. Army Eighth Contractors' Meeting, Radiation Preservation of Foods Program, Natick, Massachusetts, 7-9 October 1963.
 26. Klahr, C. N., and Cohen, M. S., *Fabrication of Semiconductor Devices by Neutron Transmutation Doping*, Annual Report to Division of Isotopes Development, USAEC, Contract AT(30-1)-3124, 31 December 1963 (in print).
 27. *Atomic Energy Process to Solve Foaming Problem is Reported by Esso Research*, Press Release of the Esso Research and Engineering Company (10 June 1963).
 28. La Rivière, J. R., Michels, L. R., Riches, H. C., Rohrmann, C. A., Smith, C. W., and Swift, W. H., *The Hanford Isotopes Production Plant Engineering Study*, General Electric Co. Report No. HW-77770, to USAEC (July 1963).
 29. *Hallam Radiation Program*, *Nuclear News*, 7 (3) 21 March 1964.
 30. *The Handbook of High Voltage Electron-Beam Processing*, 4, Bulletin P, High Voltage Engineering Corporation, Burlington, Massachusetts (1959).
 31. *Ibid.*

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АБХОТАЦІЯ—RESUMEN

A/198 Etats-Unis d'Amérique

Applications Industrielles des rayonnements: situation actuelle et perspectives d'avenir
par J. E. Maschurek et al.

Depuis une dizaine d'années des chercheurs du monde entier ont consacré beaucoup d'attention à la possibilité d'utiliser les rayonnements ionisants en quantités massives pour des processus industriels. A la suite de recherches qui ont duré des années et auxquelles ont participé un très grand nombre d'organismes, on commence maintenant à utiliser des procédés industriels fondés sur l'emploi des rayonnements.

Le mémoire décrit de manière assez détaillée les procédés déjà appliqués aux Etats-Unis. Il étudie aussi les applications futures des rayonnements, en particulier les procédés qui seront probablement utilisés avec succès d'ici quelques années. Parmi les applications déjà courantes, on peut citer la production de bromure d'éthyle, de pellicules en polyéthylène, de fils de polyéthylène réticulé et d'autres matériaux de même nature, ainsi que de semi-conducteurs, la stérilisation de fournitures médicales et l'inhibition de la germination des pommes de terre. Dans les cas où cela est possible, le mémoire fournit des données sur le volume de la production et ses incidences actuelles et futures sur le marché.

Parmi les procédés prévus pour l'avenir, le mémoire décrit: le traitement par les rayonnements de revêtements, de textiles et de matériaux mixtes bois-matériaux plastiques, la stérilisation de produits carnés, la pasteurisation de conserves de poissons et de fruits, le traitement de denrées alimentaires, les dispositifs à semi-conducteurs et d'autres applications spéciales. Le mémoire étudie différents types d'irradiateurs — pour le traitement de matières emballées, en vrac, liquides ou solides — et analyse notamment les paramètres de ces appareils et leur importance.

Le mémoire étudie également les sources de rayonnements sous l'angle de ces paramètres. Il analyse de manière assez détaillée les possibilités d'utilisation du cobalt 60, du césium 137 et du strontium 90, la production de ces radioéléments, leur mise en capsules et les prix de revient actuels et futurs. Il étudie la rentabilité actuelle et future des applications industrielles des rayonnements, compte tenu de tout ce qui précède, des plans actuels et des recherches envisagées pour l'avenir, notamment sur l'utilisation d'accélérateurs comme source de rayonnements.

L'industrie du traitement par rayonnements en est encore à ses débuts, mais commence à prendre corps. Il importe de bien comprendre les principaux facteurs qui interviennent dans cette industrie afin de prendre conscience des vastes possibilités qui s'offrent à elle.

A/198 США

Современное состояние и перспективы развития технологии промышленного применения излучений

Дж. Э. Мачурек et al.

За последнее десятилетие исследователи всего мира большое внимание уделяли изучению возможности применения массивных доз ионизирующего излучения в промышленных процессах. После многолетних исследований, проведенных множеством различных организаций, обработка облучением начинает применяться в промышленности.

В этом докладе детально обсуждаются методы обработки облучением, нашедшие применение в Соединенных Штатах. Перспективы развития также приняты во внимание, в том числе те методы обработки, которые, вероятно, будут успешно введены в практику в течение нескольких ближайших лет. К первой категории относятся производство этилбромидов, полиэтиленовой пленки, плетеной полиэтиленовой нити и сходных продуктов, полупроводников, стерилизация медицинских препаратов и ингибирование прорастания картофеля. По возможности приведены данные об объеме производства, о современном положении и будущих перспективах рынка сбыта.

Из числа перспективных методов обсуждаются радиационное отверждение покрытий, облучение текстильных материалов и сочетаний древесины с пластмассой, стерилизация мясных продуктов, пастеризация рыбы и фруктов, применение радиации в пищевой промышленности, в производстве полупроводниковых приборов и разные специальные процессы обработки облучением. Рассматриваются различные типы облучателей, например, для упакованных и неупакованных продуктов, для жидких и твердых грузов.

Обсуждаются также источники излучения с точки зрения их соответствия расчетным параметрам. Довольно детально обсуждаются также возможности применения, производство, заделка в капсулы и себестоимость — как современная, так и будущая — Co^{60} , Cs^{137} и Sr^{90} . Представлены существующие и планируемые экономические показатели процессов обработки облучением, полученные с учетом всех упомянутых выше соображений, существующие планы и будущие исследования, включая применение ускорителей атомных частиц как источников излучения.

Технология промышленного применения излучений, находящаяся еще в самой ранней стадии своего развития, начинает оформляться. Важно хорошо усвоить главные факторы, связанные с этой технологией, чтобы суметь пол-

ностью использовать ее большие потенциальные возможности.

A/198 Estados Unidos de América

Estado actual y perspectivas de los procesos comerciales de irradiación

por J. E. Machurek et al.

En los últimos diez años, investigadores de diversos países han estudiado con gran atención la posibilidad de utilizar cantidades masivas de radiaciones ionizantes para los tratamientos industriales. Después de años de investigaciones ejecutadas por un gran número de organizaciones, comienzan a ponerse en práctica dichos procesos comerciales de irradiación.

En la memoria se examinan con bastante detalle los tratamientos que se practican hoy día en los Estados Unidos. Se estudia también la posible comercialización de otros procesos, entre ellos los que darán probablemente resultados satisfactorios en los próximos años. En la primera categoría está comprendida la producción de bromuro de etilo, películas de polietileno, revestimiento para cables de polietileno reticulado y productos afines, semiconductores, la esterilización de suministros médicos y la prevención del rebrote de las patatas. En la medida de lo posible, se facilitan datos sobre el volumen de producción y las repercusiones actuales y futuras en el mercado.

Los procesos futuros que se examinan son el curado por irradiación de revestimientos, tejidos, combinaciones de madera y material plástico, la esterilización de productos cárnicos, la pasteurización de pescados y frutas, el empleo de las radiaciones en la industria de los productos alimenticios, los dispositivos a base de semiconductores y otros procesos especializados de irradiación. Se examinan varios tipos de irradiadores (por ejemplo, para irradiación de embalajes, sustancias a granel, líquidos y sólidos); se estudian asimismo los parámetros de diseño y su importancia.

También se consideran las fuentes de irradiación en relación con esos parámetros de diseño. Se estudian con bastante detalle las posibles aplicaciones del cobalto-60, del cesio-137 y del estroncio-90, su producción en forma encapsulada y su costo actual y futuro.

Se exponen los aspectos económicos, presentes y futuros, de los procesos de irradiación, teniendo en cuenta todas las cuestiones anteriormente examinadas, los planes actuales y las investigaciones orientadas hacia el futuro, incluido el empleo de aceleradores como fuente de irradiación.

Los procesos industriales de irradiación, si bien se encuentran en sus comienzos, empiezan a tomar forma. Es importante conocer a fondo los factores principales que gobiernan a esa industria para poder apreciar las vastas posibilidades que ofrece.

Engineering applications of nuclear explosives: project PLOWSHARE

By G. W. Johnson and G. H. Higgins*

Significant progress has been made in the continuing exploration of the application of nuclear explosives to engineering and scientific projects. Since its initiation in 1957, the Congress of the United States has appropriated about \$45 000 000 for this, the PLOWSHARE program. The principal activities to date have been devoted to:

(a) Developing understanding of the basic processes involved for nuclear detonations in a variety of environments;

(b) Development and test of explosives specially designed for the program;

(c) Assessment of safety and cost of a variety of projects in all parts of the world;

(d) Conducting field experiments with chemical and nuclear explosives; and

(e) Consideration of legal and diplomatic procedures to allow the use of perfected nuclear explosive techniques.

Generally, the goal of the PLOWSHARE program is to develop the demonstrated engineering capability of nuclear explosives to better the lot of man. To succeed, the nuclear approach must offer greatly reduced cost or, even better, uniqueness. Also, it first must be made abundantly clear in every case that the public health and safety will be assured.

Applications which offer increasing promise of success are:

(a) Excavation for water diversion, irrigation, or flood control; for canal and harbor construction; for highway and railroad construction; and for surface mining;

(b) Shattering rock to release natural gas from tight geological formations, to simplify mining or in-situ leaching, to aid recovery of hydrocarbons from shale, and perhaps even to release geothermal energy for use;

(c) Use of the nuclear characteristics of explosions for research purposes; and

(d) Possible release of oil by heating and shocking tar sand with an explosion.

These applications all involve underground explosions, but there are two general classes. For one class the explosives are placed at intermediate depths so that craters are formed by ejection and compaction of material. In the other class, the explosives are placed two or three times deeper so that the surface remains relatively undisturbed. Marked subsidence can sometimes occur even after these deeper detonations.

The experience reported in this paper is drawn from many sources. Most of the nuclear experience has been obtained from non-PLOWSHARE detonations conducted by the United States Government during the past 19 years.

UNDERGROUND CONTAINED EXPLOSIONS

The first contained explosion of 1.7 kilotons (kt) at a depth of 300 meters in tuff (the RAINIER event) was fired in September 1957 to determine whether nuclear explosives could be tested underground. The experiment demonstrated that such techniques could be successfully used. The detailed exploration of this event provided the first experimental information on the phenomenology of contained nuclear explosions and was reported to the Second Atoms for Peace Conference in Geneva in 1958. In the fall of 1958, additional events up to 20 kt each were fired. During the nuclear test moratorium from September 1958 to September 1961 there were no nuclear experiments, but with the resumption of testing in 1961 the experience has been extended from tuff, in which all earlier events occurred, to granite, salt, and a desert alluvium (lightly cemented sand and gravel). In addition, the yield range has been extended upward to about 200 kt in alluvium.

The general phenomenology of explosions is described in phases characterized by different time scales (see Fig. 1). For illustrative purposes, the initial conditions will be visualized as a 100 kt explosive in a canister 1 m in diameter, 3 m long, and weighing

* Lawrence Radiation Laboratory, Livermore, California.

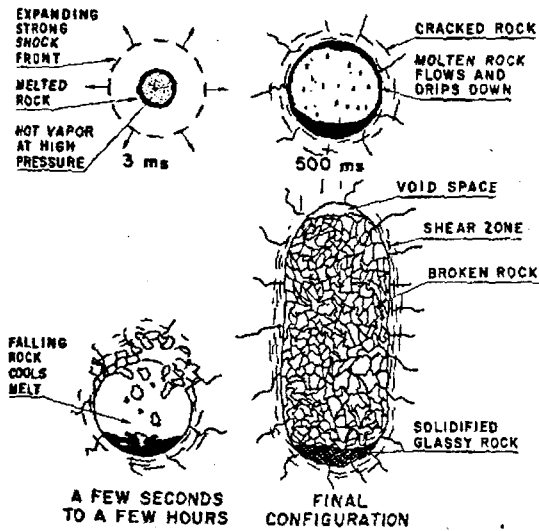


Figure 1. Nuclear explosion sequence

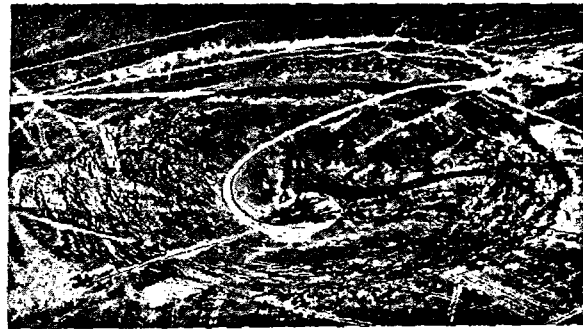


Figure 2. Typical subsidence crater

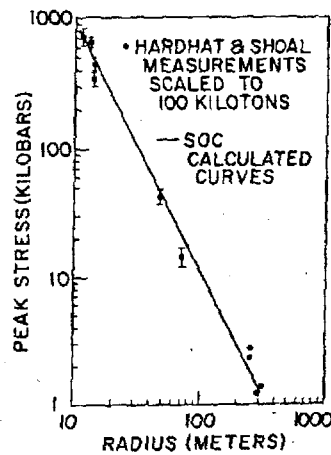
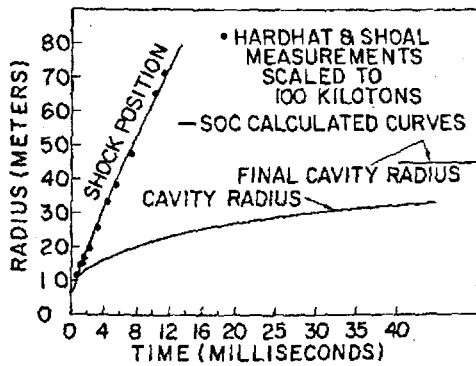


Figure 3. (a) Shock position and cavity radius for 100 kt nuclear explosion; (b) Peak stress, theoretical and experimental for 100 kt nuclear explosion

MEDIUM: GRANITE
YIELD: 5 ± 1 kt
DEPTH OF BURIAL: 286.2 m

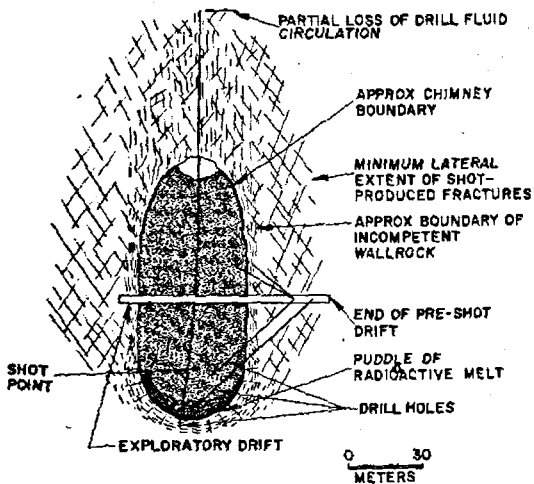


Figure 4. Resultant geologic cross section for 5 kt nuclear explosion in granite

MEDIUM: ROCK SALT
YIELD: 3.1 ± 0.5 kt
DEPTH OF BURIAL: 360.9 m

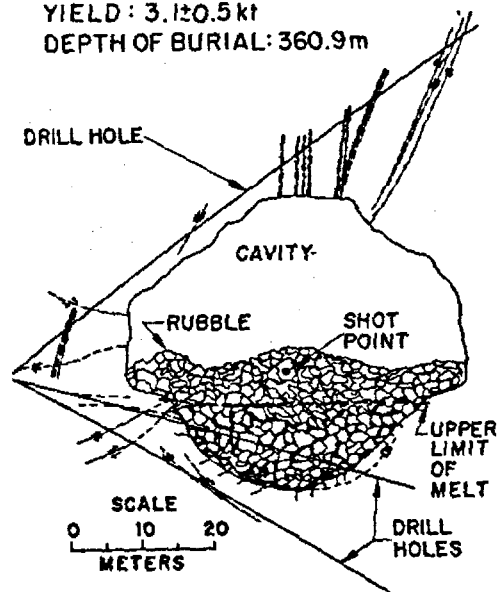


Figure 5. Resultant geologic cross section for 3 kt nuclear explosion in salt

5 metric tons, emplaced at the bottom of a hole drilled to a depth of 800 m.

Prompt energy release

The total energy is released in $<1 \mu$ s. A 100 kt explosion releases 4.2×10^{21} ergs. The initial energy density and corresponding temperature and pressure can be estimated by a method previously described in University of California Radiation Laboratory reports UCRL-5124 and UCRL-5626:

$$P = 1.15 \times 10^{15} \text{ dynes/cm}^2 = 1.1 \times 10^3 \text{ megabars}$$

$$T = 1.3 \times 10^7 \text{ }^\circ\text{K.}$$

Hydrodynamic phase, millisecond range

Under these conditions, a strong shock moves radially outward, vaporizing, melting, crushing, displacing, and cracking the medium in turn. The energy of the shock wave is thus deposited locally until all that remains is an elastic or seismic wave. The elastic wave reaches distances of 1 km in the order of 0.2 s. After the shock wave has passed, the high-pressure vaporized material expands slowly and a spherical cavity grows until the internal pressure is balanced by the lithostatic pressure (in this example, 1 200 kg/cm²). The cavity at this time (a few hundred ms) will be lined with about 6×10^4 metric tons of molten rock and will have an internal temperature of a few thousand degrees.

Quasi-static phase (seconds-minutes-hours)

The cavity persists for a variable time and then collapses to form a chimney. If the medium is initially relatively compact, the post-collapse disorder of the

individual blocks decreases the bulk density. Collapse progresses upward until the volume of the cavity is distributed between the fragments. Typical ratios of post-shot chimney bulk density to pre-shot bulk density vary around 0.75 in competent rock.

In case the medium is already disordered, as for alluvium, there is little or no decrease in bulk density with collapse. The cavity progresses upward until it reaches ground surface and a subsidence crater is formed (Fig. 2). Collapse typically starts a few seconds to a few minutes after the detonation, although in one case nearly 11 h passed before major collapse occurred. Cavities in very uniform plastic unfractured rock like halite collapse very slowly.

High-speed computer calculations provide a description of the shock wave and cavity expansions as a function of time. Precise description depends on the detailed properties of the medium. An idealized approximation is shown in Fig. 3 for a 100 kt event. Data scaled from two detonations are also shown.

The calculations and observations listed in Table 1 are quite consistent. Considerable experience has been gained by measurement of the shock wave progression, final cavity size, and chimney height.

Figure 4 shows a section of a collapse zone observed in granite; Fig. 5 shows a cavity in salt, and Fig. 6 is a photograph made in the cavity. Figure 4 is typical of collapse zones in both granite and tuff. The behavior of granite is of much more general interest than that of either tuff or salt for engineering application.

The size of the cylindrical rubble zone (chimney) can be estimated. If the cavity is formed by adiabatic expansion of high-pressure gas to lithostatic pressure, the cavity radii in all media must conform to the equation: $R_c = CW^{1/2}/(\rho h)^{1/4}$ (providing the initial

Table 1. Data from thirteen underground detonations^a

Medium	Event	Yield, <i>W</i> (kt)	Depth of burial, <i>h</i> (m)	Overburden density, ρ (g/cm ³)	Cavity radius, <i>R</i> (m)	Chimney height, <i>H</i> (m)	<i>C</i> ^b	<i>K</i> ^c
Tuff	RAINIER	1.7	274	1.9	19.8	117.7	79.0	5.9
	LOGAN	5.0 ^{+0.2} -0.4	283.5	1.8	28	134.1	77.9	4.8
	BLANCA	19.2 ± 1.5	301.1	1.8	44.2	301.1 ^d	80.1	6.8
	ANTLER	2.46 ± 0.25	402	1.9	19.8	90.5	76.7	4.6
	PLATTE	1.7 ± 0.15	191.4	2.2	21.6	81.6	81.9	3.8
Alluvium	MAD	0.43 ± 0.04	181.1	1.8	11.3	Unknown	63.4	—
	STILLWATER	2.7 ± 0.3	181.1	1.8	24.7	181.1 ^d	74.9	— ^d
	BRAZOS	7.8 ± 1.0	256.3	1.8	27.7	256.3 ^d	64.7	— ^d
Tuff/alluvium	CIMARRON	11.2 ± 2	304.8	1.8	32.6	304.8 ^d	70.5	— ^d
	HOOSIC	3.1 ± 0.3	187.1	1.8	25.9	187.1 ^d	76.1	— ^d
Granite	HARDHAT	5.0 ± 1.0 ^e	286.2	2.7	19.2	85.6	59.1	4.5
	SHOAL	12.5 ± 2.0 ^e	367.4	2.7	25.6 ^f	108.5 ^g	62.1	4.2
Rock salt	GNOME	3.1 ± 0.5	360.9	2.3	17.4	Minor collapse	63.6	—

^a Data for all events except SHOAL: Richards, W. D., Lawrence Radiation Laboratory, Livermore; unpublished work.

$$b C = R \frac{(\rho h)^{1/4}}{W^{1/2}}$$

$$c K = H/R.$$

^d Chimney growth interrupted by earth's surface.

^e Private communication, A. J. Chabai, Sandia Corporation, Albuquerque, New Mexico.

^f Determined on basis of temperature profile.

^g Determined from television monitoring of post-shot drill hole by Sandia Corporation.



Figure 6. Standing cavity of 3 kt nuclear explosion in salt

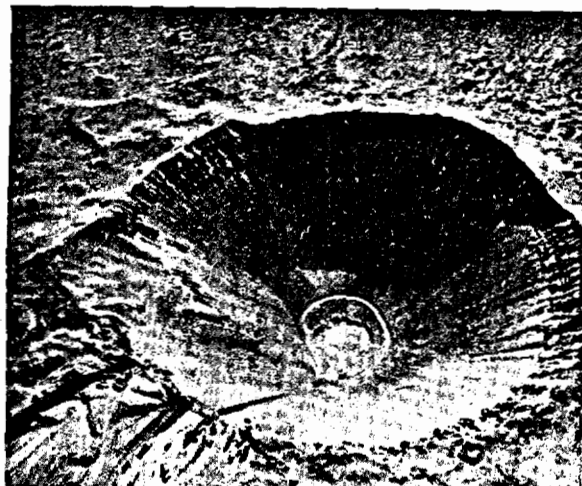


Figure 7. Crater formed by 100 kt nuclear explosion buried 635 feet deep in desert alluvium

energy deposited in the gas phase is proportionately the same for various media) where R_c = cavity radius in meters, C = constant, W = energy of explosions in kt (10^{12} cal), ρ = average overburden density in g/cm^3 , and h = depth of overburden in meters.

Table 1 contains values of C determined in several media under differing explosion conditions. In four rock types with widely variant properties the value of C observed for nearly 50 different detonations has deviated <23% from the mean value. Cavity growth is thus relatively independent of rock type and shock propagation.

The height of chimney collapse, if chimneys have equivalent shapes, is also simply described by the equation: $H = K R_c$ where H is the chimney height in meters. Values of K derived from observations on several nuclear experiments are also listed in Table 1.

These cavity and chimney parameters can be used to assess several potential applications. These are: breaking of rock in preparation for mining, both for recovery of ore and for leaching in place; creation of large-diameter permeable regions to enhance liquid and gas petroleum recovery, injection of unwanted fluids in semipermeable substrata, or recovery of geothermal heat.

Some of the technical questions associated with applications of contained explosions were investigated in salt with the GNOME experiment. The broad conclusions were that:

(a) Reasonably permeable regions were created in impermeable rock one or two cavity radii beyond the collapse region;

(b) The corrosive nature of fluids in the detonation chamber creates serious problems for the recovery of thermal energy;

(c) Elastic waves associated with detonations in an aseismic region traveled with unexpected amplitude and velocity; and

(d) The high-flux short-duration neutron source of the nuclear explosion could be used to make unique scientific studies.

The last two observations, along with the previous discovery of the new elements einsteinium and fermium in debris from the first thermonuclear detonation (MIKE, 1952), caused the PLOWSHARE program to be expanded to include scientific applications. Designs of special explosives with enhanced fluxes and minimum explosive energy are pointed toward exploration of very heavy transcurium element nuclides. Other areas of scientific application to which contributions have already been made are in earth science and neutron physics.

We intend in the near future to extend our experience to limestone, which represents a major component of the earth's natural surface structure. A second area to be investigated in the future will be the interaction of simultaneous detonations in close proximity to each other.

UNDERGROUND CRATERING EXPLOSIONS

Perhaps the most obvious and direct engineering application of nuclear explosives is that of excavation. In fact, the initial motivation for establishment of a PLOWSHARE program by Dr. Harold Brown in 1956 grew out of the need for sea-level canals. Continued research has improved the outlook for accomplishment of major projects with large savings in cost for projects involving water resource conservation and development, commerce (harbors and canals) and mining.

Excavation is accomplished by using the explosion to eject material to form a crater or a ditch; a circular crater would be provided by a single charge and a ditch by a row of charges fired simultaneously. The crater dimensions depend upon the nature of the medium, the yield, number and spacing of charges, and the depth of burst. Most of the experience has been

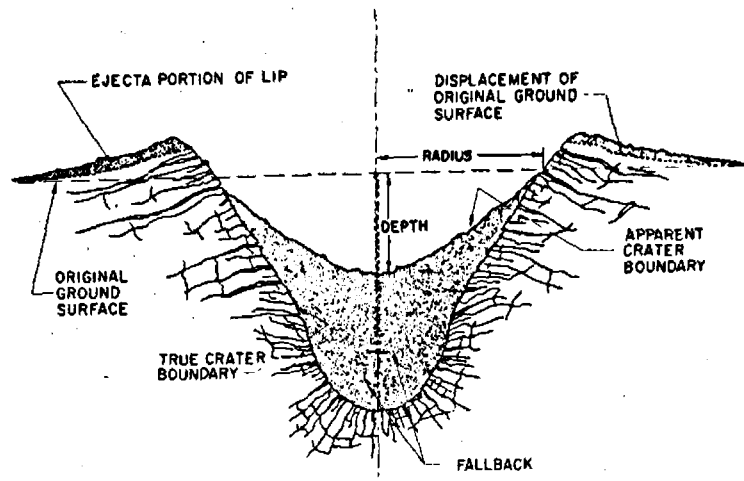


Figure 8. Cross section of typical crater formed by nuclear explosion

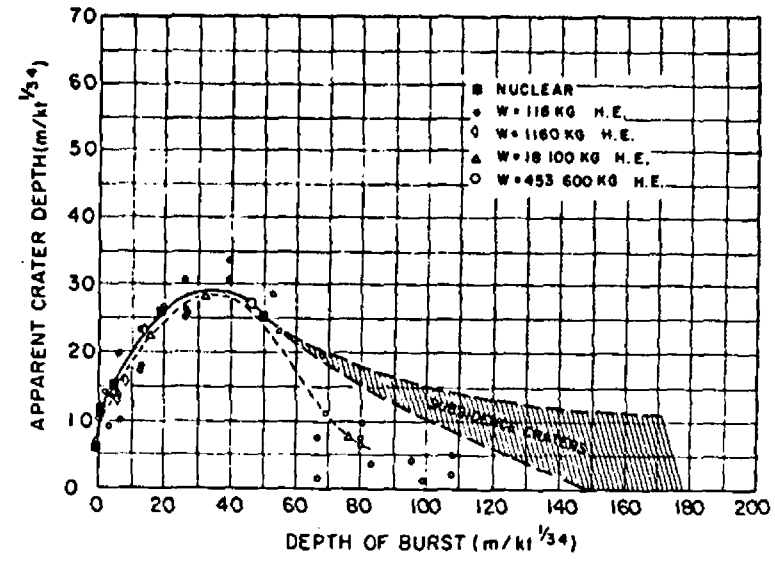


Figure 9. Crater radius dependence on depth of burst

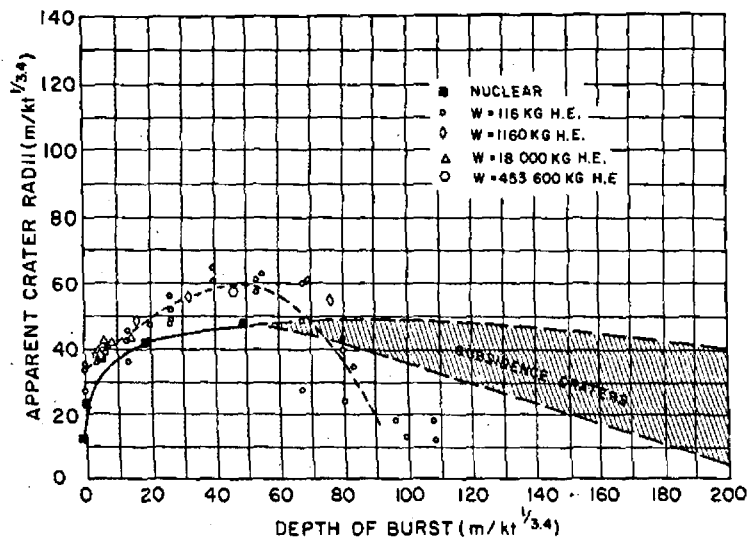


Figure 10. Crater depth dependence on depth of burst

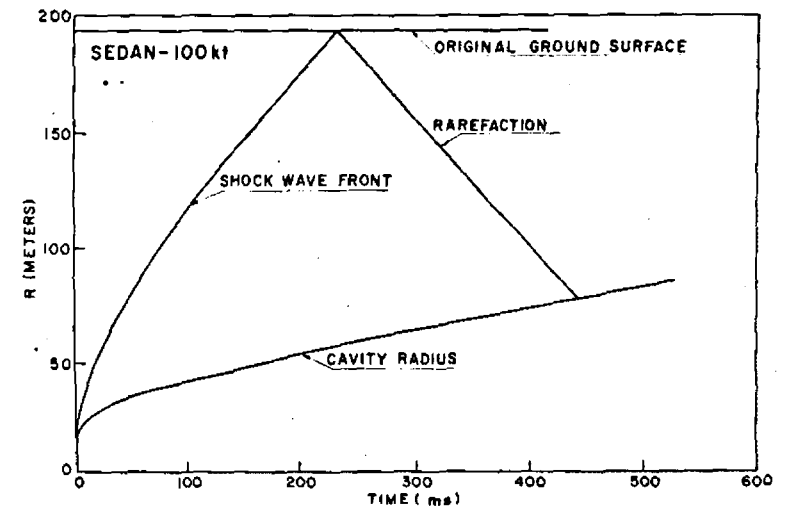


Figure 11. Reflection of the shock wave back to the cavity

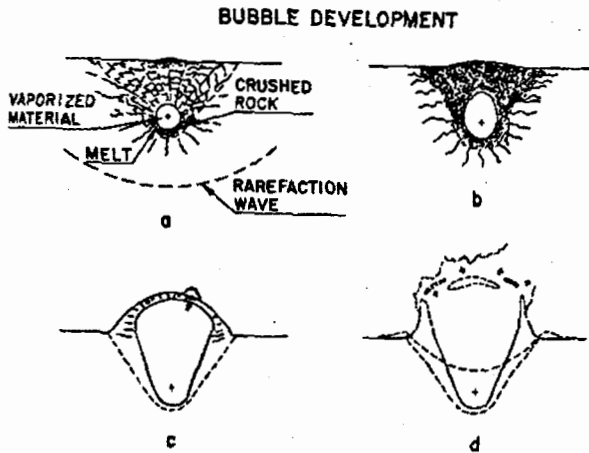


Figure 12. Sequence of cavity and bubble growth

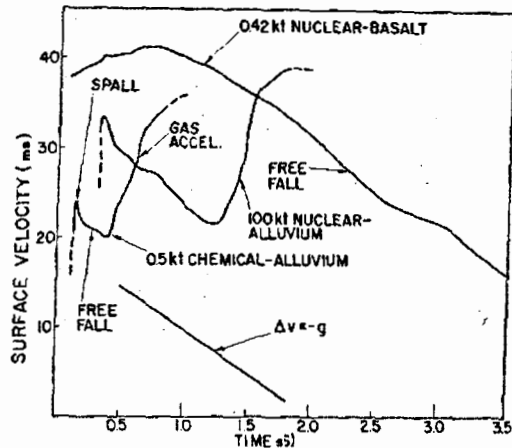


Figure 13. Spall, free fall, and gas acceleration phases of cratering

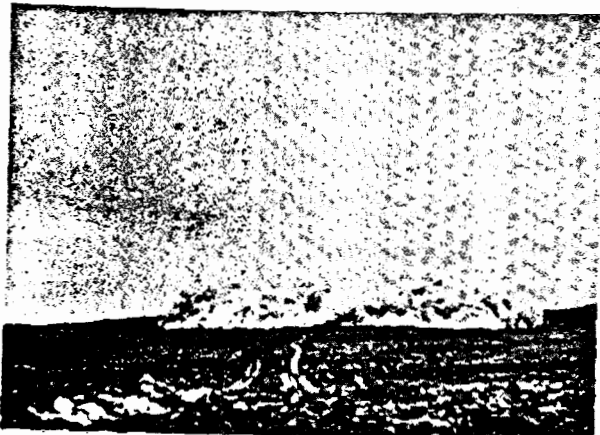


Figure 14. Cratering explosion at H+52 s; 0.42 kt at 34 meters in basalt (DANNY BOY)



Figure 15. Cratering explosion at H + 6 min; 100 kt at 193 meters in alluvium (SEDAN)

gained in desert alluvium; however, some limited work has also been accomplished in tuff and basalt. Figure 7 shows the crater produced in the 100 kt cratering experiment (SEDAN) after post-shot exploration was initiated 8 months after detonation.

In Fig. 8 is sketched a cross section of a typical crater produced by explosions emplaced at depths planned for PLOWSHARE excavations. Of most relevance, for excavation purposes, are the dimensions of the volume produced below the original ground-level surface, which is termed the apparent crater. Its dimensions are termed the apparent crater radius and depth. Below the crater surface is a large rubble zone composed of material that fell back into the crater. The original surface around the edge of the crater is displaced upward and ejecta are deposited on this surface; this region is termed the lip.

The dependence of crater dimensions on depth of burst was well established for Nevada desert alluvium (a lightly cemented sand and gravel). The results of

this work are plotted in Figs. 9 and 10, where the data are all corrected to 1 kt by an empirical scaling law. Shown on the same graphs are the results obtained with nuclear explosions; three experiments at 1.2 kt, one at 500 tons, and one at 100 kt. The data for all nuclear cratering shots are listed in Table 2. Except for the event slightly above the surface (1 m), the agreement between the scaled nuclear results and the high-explosives results suggest a similar dependence on depth of burst. Using the scaling law derived from chemical explosives, the observed crater depths for nuclear experiments lie approximately on the empirical curves, but the radii are 15 to 20% smaller.

Cratering experience in basalt, or other hard, dry rock, is quite limited. Only one nuclear explosion has provided any information in this area, a 0.42 kt experiment at a depth of 33.5 m conducted by the Department of Defense. In addition, there have been eight chemical explosions of 18 100 kg each in the same basalt structure in which the nuclear event was

fired, and a number of much smaller experiments. The results for basalt indicate that the crater dimensions will be 10 to 20% smaller than those observed for desert alluvium.

The mechanics of crater formation continue to be analyzed from a fundamental standpoint, and the following general picture has been established.

The early stages are as described for the deeply buried case, which ignores the presence of the free surface. The behavior of this surface, obviously, is the essence of the cratering process.

The first manifestation of the explosion on the surface is the arrival of the compressional shock wave at the surface. On reflection, a rarefaction wave propagates back toward the center of the explosion. This is illustrated in Fig. 11 for a 100 kt cratering event in alluvium. At some depth, the rarefaction, or tensile wave, exceeds the amplitude of the compressional wave and the medium breaks in tension to produce a spall. This zone then proceeds upward with a velocity characteristic of the total momentum imparted to the slab by the shock. A series of successively slower spalls may be generated.

In addition to compaction and spall, a third and most important mechanism becomes effective finally. This has been referred to as gas acceleration. The gases in the cavity continue to expand adiabatically and ultimately break through the overlying material to the atmosphere. This process provides a final acceleration to the material to form the crater. Several stages in a cratering explosion are illustrated in Fig. 12. The final phase in crater formation is fallback of the materials.

Figure 13 is a plot of the observed velocities showing spall and gas acceleration for the SEDAN event of 6 July, 1962. Results in basalt are shown to illustrate effects of different media. Differences may be due to large amounts of volatile material in the alluvium.

When the ejected material falls back to the surface, a large dust cloud is formed. This cloud, termed a base surge, moved radially for considerable distances. In addition, there may be a large central plume which

rises to high altitudes. For cratering events, two different kinds of cloud have been noted, one in dry rock in which no central plume was produced, and one in material of greater water content in which a plume did result (Figs. 14 and 15). The 0.42 kt event in basalt produced a low-lying cloud with no plume and the following stabilized dimensions: radius, 440 m; height, 300 m. In alluvium for the SEDAN 100 kt event, the base surge radius was about 5 500 m with a height of 1 000 m at 1 min after detonation, and the central plume ultimately rose to a height of 4 000 m.

In addition to the behavior of single charges in producing circular craters, an understanding of firing rows of charges to produce ditches for engineering applications is important. Cratering programs have been carried out with chemical explosives. Empirical information relative to the effects of varying charge spacing and depth on sizes and shapes of craters has been developed. Work conducted only in alluvium shows that smooth ditches result for charge spacings of 1.0 and 1.25 crater radii with multiple explosions of the same individual charge weights. As the charge spacing increases from 1.0 to 1.25, there is some reduction (about 15%) in ditch width and depth. Very little of the ejected material appears at the ends of the ditch. This is important because less cleanup will be required where adjacent canal sections join. Figure 16 shows a chemical explosion crater illustrating the point. The speculation is that this behavior results from a merging of the gas cavities underground to form a long cylindrical tube which expands radially about the channel axis.

There have not yet been any nuclear row-charge experiments. Both row- and single-charge experiments are planned.

The foregoing provides the base from which engineering applications have been assessed. To determine whether nuclear excavation technology can be applied with sufficient benefit to any specific project, a number of factors must be taken into account. Generally, only two classes of evaluation must be included; cost and

Table 2. Summary of nuclear cratering data from the Nevada test site

Shot name	Medium	Yield (kt)	Dimensions of apparent crater				
			Depth of burst (m)	Radius (m)	Depth (m)	Volume (m ³)	Lip height (m)
JANGLE S	Alluvium	1.2±0.1	-1.07 ^a	13.7	6.4	1260	—
JOHNNIE BOY . .	Alluvium	0.5±0.2	0.53	18.6	9.1	4080	~3.5
JANGLE U	Alluvium	1.2±0.1	5.2	39.6	16.2	2.83×10 ⁴	~2.4
TEAPOT ESS . . .	Alluvium	1.2±0.1	20.4	44.5	27.4	7.34×10 ⁴	~5.8
SEDAN	Alluvium	100±15	194.0	184.0	97.5	5.04×10 ⁶	4.6-30.5
DANNY BOY . . .	Basalt	0.42±0.08	33.5	32.6	18.9	2.75×10 ⁴	4.6-9.1
NEPTUNE ^b	Tuff	0.115±0.015	30.5	30.5	10.7	1.68×10 ⁴	—

^a Detonated 1.07 m above surface.

^b Neptune was detonated 30.5 m beneath a 30° slope.

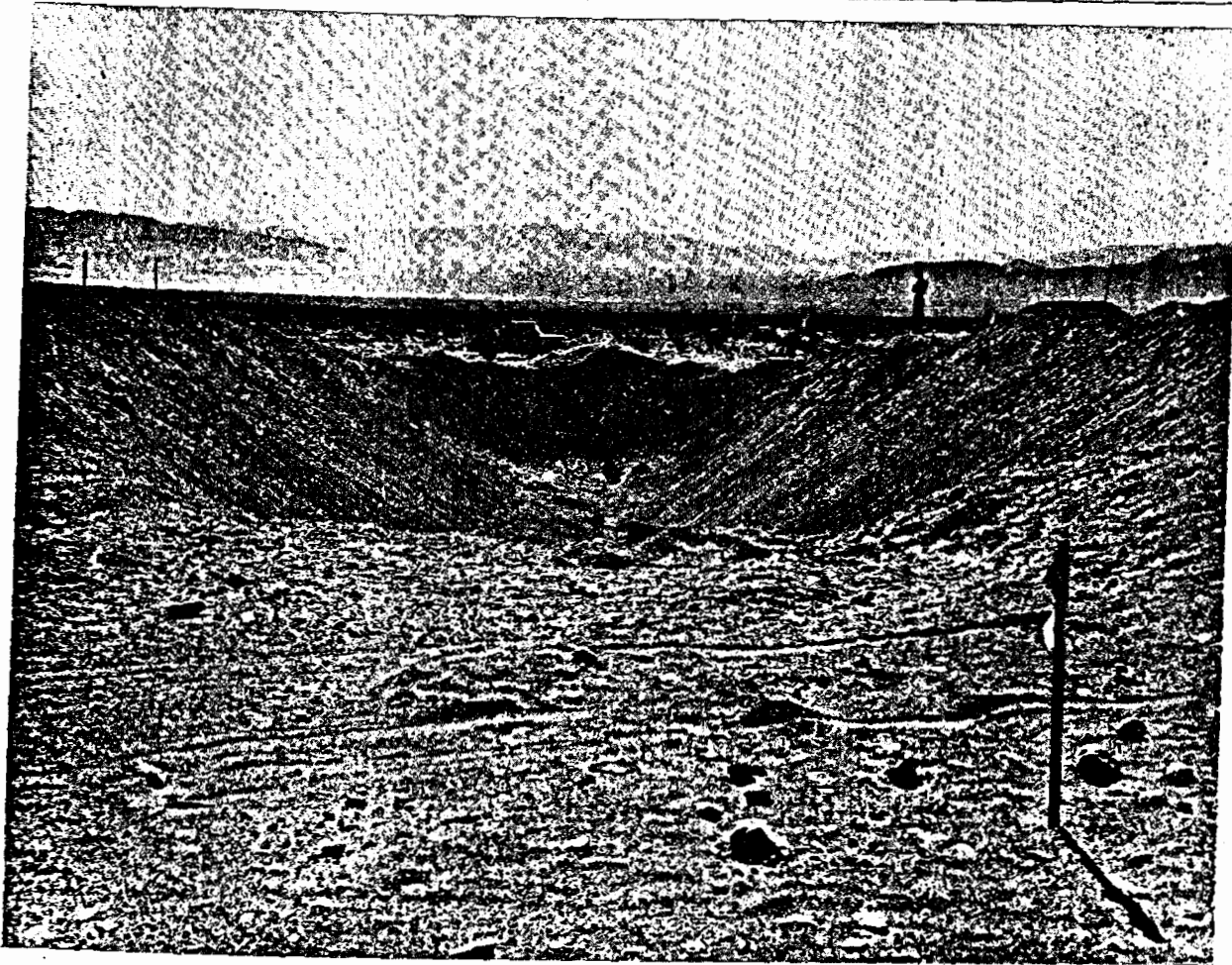


Figure 16. End-on view of a ditch produced by a row of chemical explosives

safety. These are not independent because measures which assure public health and safety affect the cost to varying degrees. There will be situations in which a given project cannot be seriously considered because safety risks override benefits. However, many major worthwhile projects can be accomplished within accepted guidelines of safety with several-fold reductions in cost.

In any real project the cost factors include:

- (a) Charges for the explosives, their logistics, and services of firing;
- (b) Drilling costs for emplacement of charges;
- (c) On-site surveys to establish topographical, geological, ecological, hydrological, and meteorological information;
- (d) Provision of access roads, camps, and logistic support;
- (e) Relocation and later return of people prior to and after the detonations; and
- (f) General engineering and construction to complete the project after the excavation is complete.

The nuclear approach will be profitable in any given

situation if an estimate of all of the above factors is more favorable than the estimate for conventional methods. To aid such estimates on proposed excavation projects, the AEC has recently released charges for thermonuclear explosives of two magnitudes; \$350,000 for 10 kilotons and \$600,000 for 2 megatons. These charges include the nuclear explosive and the related firing services. Interpolation may be made from Fig. 17 to approximate the charges for intermediate yields. The explosives being designed particularly for future excavation projects will have no more than a few kilotons of fission yield. When properly emplaced this should result in very small amounts of radioactivity being vented and appearing in the fallout pattern as indicated below. The explosive in a canister will have an approximate diameter of 91 centimeters for yields of 10 to 200 kilotons, and of 122 centimeters for yields up to 2 megatons.

Extensive nuclear test experience provides bases for recognition and positive control of the safety problems associated with nuclear excavation. The principal identified areas are: (a) radioactivities, (b) ground shock, and (c) air blast.

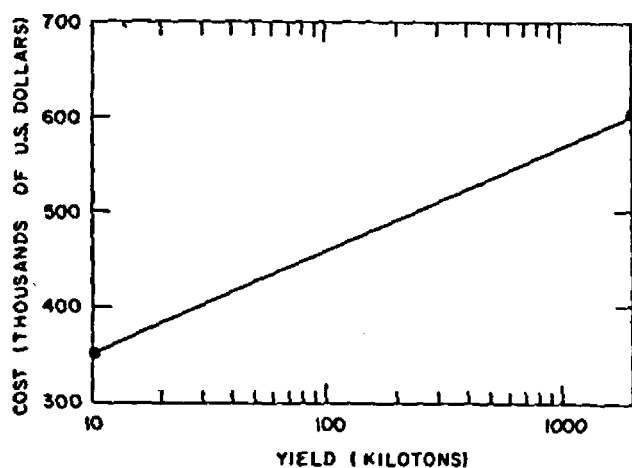


Figure 17. Projected charges for thermonuclear explosives

Radioactivities distributed by deeply buried explosions are largely incorporated into fused slag. This makes most nuclides unavailable to ground-water leaching. Further, ion exchange processes incorporate soluble species onto clay particles. These factors, along with improved explosives, lead to the conclusion that major projects can be carried out and that monitored workers can resume activities in craters and detonation areas within a week or two. General activities of residents can be resumed within about a year. A fallout pattern for a proposed highway and railroad excavation requiring two sequential megaton row charges is shown in Fig. 18. Radiation levels should be compared to exposure of 0.5 r recommended by the ICRP for members of the public. To illustrate the present and projected advances in technology, Fig. 19 shows fallout patterns from three 100 kt events. Pattern A is similar to that of Project SEDAN. Development of devices with less fission yield, and the use of special emplacement techniques could now reduce the levels to those indicated in pattern B. Future device development and emplacement techniques will reduce the radioactivity to the levels shown in pattern C, about 100-fold less than for SEDAN.

Ground shock from various detonations in a com-

pressible (tuff) and brittle (granite) rock are shown in Fig. 20. Damage to residential structures would not be expected where particle velocities were < 8 cm/s. More resistant structures and equipment such as used in construction work might withstand as much as 80 cm/s without damage.

The air blast originating from an excavation travels by two paths. The first is the direct wave traveling along the lowest layers of the atmosphere. The second arcs upward and is refracted back toward the earth's surface about 200 km from the explosion source. Curves indicating expected intensities for various yields, wind direction, and paths are shown in Fig. 21. Very large windows might be broken by a 2.5 millibar overpressure. Doors and weak structural members might be damaged by 10 to 15 millibar overpressure.

The safety problems associated with fallout, ground shock, base-surge, and air blast are subject to control. The control conditions involve selection of minimum yield for each single detonation, temporary population evacuation, selection of appropriate meteorology, and monitoring after the explosions.

As a consequence of experience gained in design and test of nuclear explosives over the past 20 years, and in view of the more recent assessments of potential engineering and scientific applications, there is no doubt that many useful projects can be planned for accomplishment in the near future. Depending upon the nature, location, and magnitude of the specific undertaking, the use of nuclear explosives can result in major savings in cost and may, in some cases, result in the recovery of petroleum products or mineral resources which would not otherwise be economically recoverable. To put this powerful and cheap source of energy to work for the benefit of man will require continuing effort in development of the technology, the demonstration of its capabilities, and the recognition of its applicability to the solution of major problems in human welfare.

A list of references will be provided upon written request to the authors.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АБХОТАЦІЯ—RESUMEN

A/291 Etats-Unis d'Amérique

Applications des explosifs nucléaires dans le génie civil — Projet PLOWSHARE

par G. W. Johnson et G. H. Higgins

L'étude des applications constructives que pourraient recevoir les explosifs nucléaires, entreprise aux

Etats-Unis par la Commission de l'énergie atomique en 1957, s'est poursuivie, et des progrès substantiels ont été réalisés, notamment dans la mise au point d'explosifs beaucoup plus « propres ». Grâce à ceux-ci, les domaines d'application possibles seront étendus et les coûts se trouveront abaissés à cause de la réduction des dépenses à consacrer aux coûteuses matières fissiles. On a réalisé plusieurs expériences nucléaires qui fournissent une base technique meilleure pour évaluer

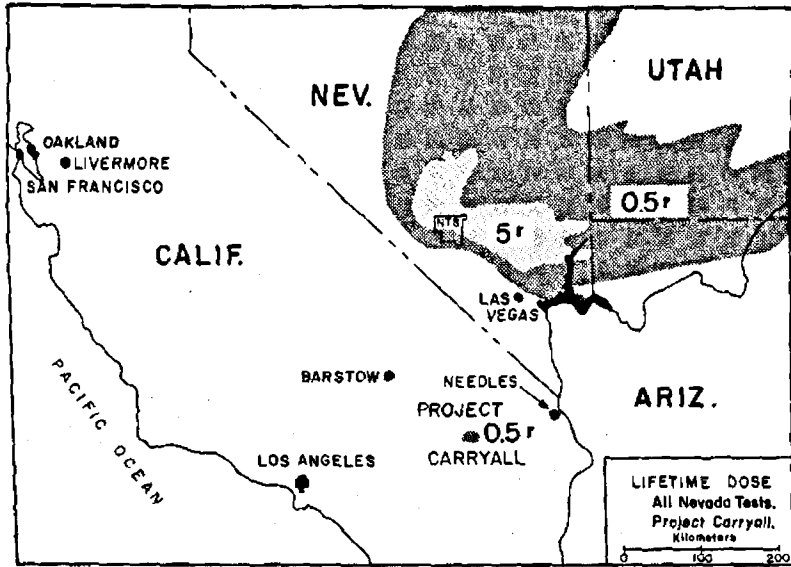


Figure 18. Comparison of fallout from the Nevada test site and projections for fallout from Project CARRYALL

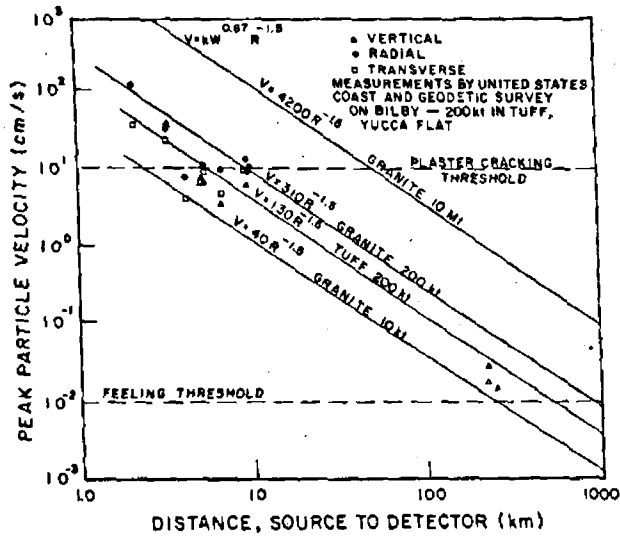


Figure 20. Threshold of feeling and plaster cracking from nuclear explosives

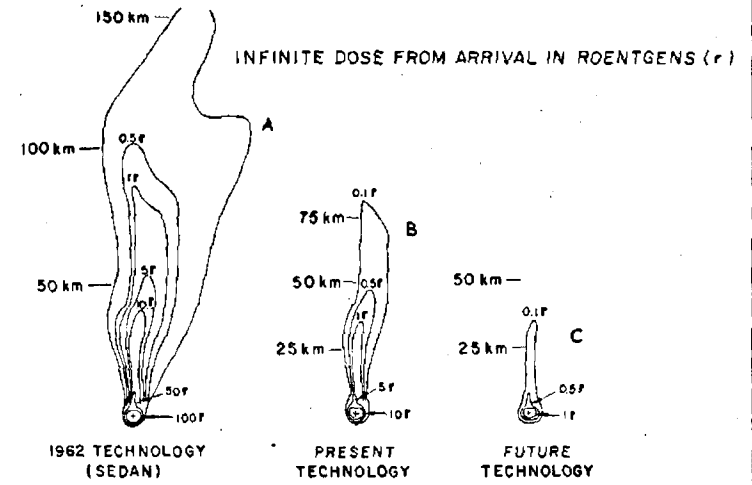


Figure 19. Present and future reduction in fallout due to improved explosive technology

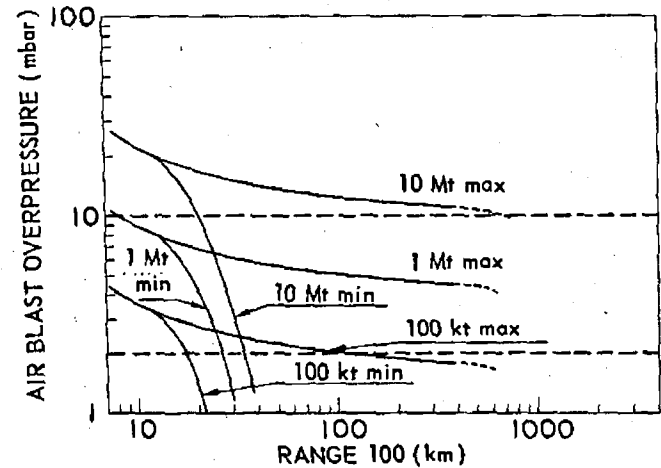


Figure 21. Air-blast overpressure damage ranges

à la fois la possibilité pratique et le coût de projets envisagés.

Ces connaissances nouvelles ont confirmé la possibilité pratique et les avantages économiques de travaux d'excavation nucléaire, de certaines applications minières souterraines, de l'augmentation de la production des nappes de gaz naturel, et de la production d'isotopes pour la recherche.

Le perfectionnement des explosifs nucléaires a conduit à une réduction impressionnante des retombées auxquelles pourraient donner lieu des travaux d'excavation. Les zones qui devaient être temporairement interdites se limiteraient à celles qui doivent être contrôlées pour éviter les dangers résultant de la projection de matières et de poussières et d'ondes de choc aériennes et souterraines.

Des expériences de formation de cratères par explosion nucléaire à 420 tonnes dans le basalte et à 100 kilotonnes dans des alluvions désertiques (mélange de sable et de graviers légèrement liés), ainsi qu'un programme complémentaire sur les explosifs chimiques, ont été réalisés. Ils ont confirmé les lois de gradation et donné de nouveaux renseignements importants sur la libération et la distribution de la radioactivité. La formation du nuage initial, l'enflement de la base et certains autres effets ont été différents dans les deux milieux et cela a affecté dans une certaine mesure la distribution des retombées. On a recueilli dans les deux cas des données sur les distributions partielles de certains radioéléments tels que ^{137}Cs , ^{90}Sr et ^{131}I et sur le champ de rayonnement total. Dans le cas où des pâturages actifs se trouvent à proximité, ^{131}I est un produit de fission qui requiert une attention toute particulière et un contrôle spécial durant la saison du pacage.

Le coût et la possibilité pratique du creusement de canaux au niveau de la mer ont été revus à la lumière de l'ensemble des données nouvelles. Du fait des progrès dans la technique des explosifs et de la réduction de la radioactivité, la nouvelle étude fait paraître ces projets plus réalisables et moins coûteux que ne le faisait l'étude de 1960. D'autres projets prometteurs plus modestes sont à l'étude et sont décrits dans le mémoire.

Pour perfectionner encore la technique, on prévoit de nouvelles expériences de creusement de cratères. Ces expériences comprennent l'explosion de rangées de charges destinées à creuser des tranchées dans des roches dures et l'explosion de charges uniques plus puissantes dans diverses formations présentant un intérêt. On progresse dans une étude théorique de longue haleine tendant à mettre au point des modèles mathématiques de la création de cratères.

Des explosions nucléaires contenues ont été réalisées dans quatre milieux: tuf, granit, alluvions désertiques et sel gemme. Ces explosions ont été réalisées à des fins variées. Les puissances ont varié d'une fraction de

kilotonne à plusieurs centaines de kilotonnes. L'expérience accumulée, en liaison avec la théorie, a permis de comprendre assez bien nombre des processus fondamentaux qui entrent en jeu. A la suite de cette expérience, l'utilisation d'explosifs nucléaires pour briser les roches dans certaines applications minières semble attrayante d'un point de vue à la fois technique et économique. La connaissance des zones de fracture et de la formation de cavités a également conduit à envisager favorablement des techniques qui pourraient permettre une augmentation de la production de puits de gaz de pétrole.

Les techniques de rétention et de récupération rapide des isotopes libérés par une explosion offrent la possibilité, par l'utilisation d'engins explosifs convenables, d'obtenir, et peut-être d'extraire par exploitation minière, de nouvelles espèces d'isotopes.

A/291 США

Использование ядерных взрывов в строительных целях — проект „Плаушер“

Д. У. Джонсон, Г. Х. Хиггинс

Исследование возможных применений ядерных взрывчатых веществ для строительства крупных сооружений началось в Соединенных Штатах по инициативе комиссии по атомной энергии в 1957 году, работы продолжаются и достигнут значительный прогресс. Важные успехи были достигнуты в разработке более «чистых» взрывчатых устройств. Это расширит диапазон возможного применения и приведет к созданию более дешевых систем, так как для них требуется меньшее количество дорогостоящих делящихся веществ. Было проведено несколько ядерных взрывов, что позволило получить более совершенную технологическую основу и тем самым оценить техническую осуществимость и затраты для задуманных проектов.

Благодаря этим исследованиям возросла уверенность в том, что применение ядерных взрывов возможно и экономически выгодно для выемки большого количества грунта в гаванях и в рудниках, для увеличения продуктивности газовых месторождений, а также для производства изотопов для исследований.

Дальнейшее развитие ядерных взрывчатых устройств привело к существенному сокращению радиоактивных выпадений, ожидаемых при их использовании для земляных работ. Уменьшается площадь земельных участков, которые придется временно вывести из употребления; теперь она ограничивается только теми районами, которые должны находиться под контролем во избежание опасности, обуславливающей

мой выбросом материалов во время взрывов, пылью, воздушной взрывной волной и сотрясениями земли.

Были произведены опыты по созданию ядерных кратеров при мощности взрывов 420 т в базальте и 100 кт в пустынных наносных породах (слабо цементированный песок и галька); осуществляется также расширенная дополнительная программа с использованием химических взрывчатых веществ. Эти опыты подтвердили законы пропорционального отношения и дали важную новую информацию по выбросу и распространению радиоактивности. Образование раннего облака, разрыв грунта и некоторые другие эффекты были различными в этих двух средах и повлияли в значительной степени на распределение выпадений. Для обоих случаев была проведена регистрация частичного распределения определенных изотопов, как, например, Cs^{137} , Sr^{90} и J^{131} , а также общего радиационного поля. Когда поблизости находятся территории, употребляемые как пастбища, необходимо особенно тщательно следить за появлением продукта деления J^{131} , осуществлять специальный контроль в кормовой сезон.

Размеры затрат и техническая осуществимость предполагаемой постройки каналов на уровне моря были пересмотрены в свете новых данных. Благодаря усовершенствованиям в технологии взрывчатых устройств и уменьшению радиоактивности проекты, при новом изучении, кажутся более выполнимыми и дешевыми, чем это было определено в 1960 году. В настоящем докладе рассмотрены также другие активно изучаемые перспективные проекты меньшего объема.

Для дальнейшего развития технологии намечены дополнительные опыты по созданию кратеров. Эти опыты состоят в закладке ряда зарядов для экскавации канав в скальной породе и единичных взрывах с большим выходом в различных средах, представляющих интерес. Некоторый прогресс был достигнут в продолжающихся крупных теоретических работах по созданию расчетных моделей явления образования кратеров.

Сдержанные ядерные взрывы были произведены в четырех средах: туф, гранит, пустынный аллювий и соль. Взрывы были произведены с различными целями. Выходы варьировались от долей килотонны до сотен килотонн. Весь накопленный опыт, подкреплённый теорией, позволил довольно хорошо изучить большинство основных процессов, происходящих при этом. Благодаря накопленному опыту использование ядерных взрывчатых устройств для вскрытия мешающей пустой породы в некоторых горных работах оказывается технически и экономически заманчивым. Знание зон растрескивания и образования полостей тоже позволило положительно оценить методы, которые могут увеличить продуктивность нефтяных газовых скважин.

Методы удержания и быстрого извлечения изотопов после взрывов дают возможность путем выбора соответствующих конструкций взрывных устройств, получить и, возможно, извлечь через шахты новые виды изотопов.

A/291 Estados Unidos de América

Usos constructivos de los explosivos nucleares: el proyecto PLOWSHARE

por G. W. Johnson y G. H. Higgins

La exploración de posibles usos constructivos de los explosivos nucleares, iniciada en los Estados Unidos por la Comisión de Energía Atómica en 1957, ha continuado, y se han hecho grandes progresos en este campo. Se han alcanzado grandes adelantos en la producción de explosivos mucho más perfectos. Esto aumentará la lista de posibles usos y entrañará precios más bajos puesto que se reducirá la cantidad invertida en los costosos materiales fisibles. Se han llevado a cabo varios experimentos nucleares, los cuales han mejorado nuestros conocimientos tecnológicos, que a su vez han servido de base para determinar la posibilidad y costo de los proyectos que se desea acometer.

Los efectos del mejoramiento de nuestros conocimientos han sido un aumento de la confianza en la posibilidad y ventajas económicas de las excavaciones nucleares, algunos adelantos en la minería subterránea, un aumento en la producción de gas, y la producción de isótopos para la investigación.

Los nuevos adelantos en el campo de los explosivos nucleares han dado como resultado una gran reducción de la precipitación radiactiva que cabe esperar de los proyectos de excavación. Las zonas terrestres que tenían que ser temporalmente evacuadas han sido reducidas a aquellas que deben ser controladas para evitar daños causados por el desecho de materiales, polvo atómico, explosiones atmosféricas o temblores de tierra.

Se han llevado a cabo experimentos para abrir cráteres por medio de explosiones nucleares de 420 t en basalto y de 100 kт en aluvión del desierto (grava y arena ligeramente unidas), como también un proyecto suplementario de explosivos químicos de gran alcance. Estos han confirmado los cálculos hechos a escala y han suministrado información importante acerca de la liberación y distribución de la radiactividad. La formación de la nube primitiva, la nube de base y otros efectos son diferentes en los dos medios y afectan grandemente la distribución de la precipitación radiactiva. En ambos casos se comprobó la distribución de isótopos específicos, como ^{137}Cs , ^{90}Sr y ^{131}I , así como el campo total de radiación. En los casos en que tierras de pasto se encuentren cerca, se ha comprobado que el ^{131}I , producto de

fisión, requiere una atención y control especial durante la estación de pastoreo.

El costo y la posibilidad de la construcción de canales al nivel del mar han sido determinados de nuevo usando la nueva información. Debido a los progresos en la técnica de los explosivos y en la disminución de la radiactividad, los proyectos parecen más prácticos y menos costosos después de este nuevo estudio que lo que parecía en 1960. Otros proyectos prometedores, aunque más pequeños, están en estudio y son descritos en el documento.

Con el fin de aumentar nuestros conocimientos se han planeado más explosiones experimentales para abrir cráteres. Estas incluyen hileras de cargas para formar zanjas en rocas duras y detonaciones aisladas de mayor efecto en varias regiones de interés. Se está haciendo algún progreso en el constante esfuerzo para perfeccionar modelos matemáticos que describan fenómenos relacionados con la apertura de cráteres.

Se han provocado explosiones nucleares subterrá-

neas en cuatro clases de rocas: tobas, granito, aluvión del desierto y sal. Estas explosiones se han hecho por varias razones. Los productos han variado desde una fracción de kilotonelada a cientos de kilotoneladas. La experiencia acumulada, unida a la teoría, ha permitido una mejor comprensión de muchos de los procesos básicos relacionados con estas explosiones. Como consecuencia de esta experiencia adquirida, el uso de explosivos nucleares en minería para romper rocas utilizables, parece atractivo desde el punto de vista técnico y económico. El conocimiento de zonas de fractura y formaciones de cavidades ha conducido al estudio de procedimientos que puedan aumentar la producción de pozos de petróleo.

Las técnicas de confinamiento y rápida recuperación de los isótopos de una explosión ofrece la posibilidad, usando aparatos explosivos diseñados convenientemente, de obtener y posiblemente de recobrar nuevas especies de isótopos por medio de la minería.

Радиационно-термический крекинг (РТК) нефти, нефтепродуктов и углеводородных газов

А. С. Полак

Как показано в ряде работ¹⁻³, совместным действием радиации и тепла удается осуществить процесс так называемого радиационно-термического крекинга (РТК) углеводородов. Такой процесс может проходить со скоростями, равными скоростям чисто термических процессов, но при температурах на 150—200°С ниже, чем при термическом крекинге (ТК), либо при равных температурах, но с существенно более высокими выходами. Это обусловлено действием радиации, которая снимает активационный барьер инициирования цепной реакции, являющегося наиболее энергоемкой стадией в термическом процессе. Излучение вносит изменение только в инициирование реакции, поэтому легко видеть, что превышение выходов РТК над выходами ТК будет зависеть от мощности дозы источника излучения и отношение скоростей будет падать с ростом температуры, причем чем больше интенсивность излучения, то есть чем больше скорость радиационного инициирования реакции, тем при большей температуре мы еще будем наблюдать превышение выхода РТК над ТК.

Необходимо отметить, что создаваемые излучениями центры инициирования в значительной части являются «горячими», а распределение их является термодинамически неравновесным.

В настоящей работе дан обзор наших исследований процесса РТК в различных экспериментальных условиях и на различном углеводородном и нефтяном сырье. Процесс РТК исследовался при работе в проточных установках с использованием:

- быстрых электронов (800 кэВ) от линейного ускорителя;
- смешанного γ - β -излучения ядерного реактора.

Изучалось влияние температуры, давления, мощности дозы на выходы продуктов РТК.

1. ОБЛУЧЕНИЕ БЫСТРЫМИ ЭЛЕКТРОНАМИ НА ЛИНЕЙНОМ УСКОРИТЕЛЕ

1. РТК на проточной установке в неравномерном температурном и падающем дозном поле⁴

Облучение производилось электронами с энергией ~ 800 кэВ, мощность дозы по ацетиленовой дозиметрии равнялась $2 \cdot 10^{16}$ эВ/сек в расчете на 1 мл паров при нормальных условиях. Для опытов была сконструирована проточная установка⁵, принципиальная схема которой приведена на рис. 1.

Количество превращенного сырья определялось по разности между объемами жидкости, подававшейся в реактор, и жидкости, конденсировавшейся в холодильнике.

Объем образовавшегося газа измерялся газовыми часами. Газообразные продукты анализировались на содержание водорода и углеводородов C_1 — C_8 хроматографическим методом.

Таблица 1. Характеристика исходного нефтяного сырья

Сырье	n_D^{20}	d_4^{20}	Бромное число	Сульфидирующиеся продукты, об. %
Бензин прямой гонки, конец кипения 140°С	1,3886	0,6880	0,63	13,6
Краснодарский газовый бензин	1,3872	0,6750	1,7	14,2
Бензин прямой гонки, конец кипения 200°С	1,4121	0,7420	0,5	14,8
Фракция, конец кипения 200°С, выделенная из сырой татарской нефти	1,4115	0,7420	0,7	16,4
Средний газойль, конец кипения 363°С	1,4758	0,8615	3,0	31,8

В жидких продуктах реакции и в исходном сырье определялись: удельный вес, показатель преломления, содержание непредельных углеводородов методом электрометрического титрования¹⁰, фракционный состав световых нефтепродуктов. Суммарное содержание ароматиче-

чения (РК) при соответствующих температурах. Результаты сравнивались с термическим крекингом (ТК). РТК протекает при температурах, значительно более низких, чем термический крекинг. Наибольший интерес в этой серии опытов представляет рост содержания непредельных

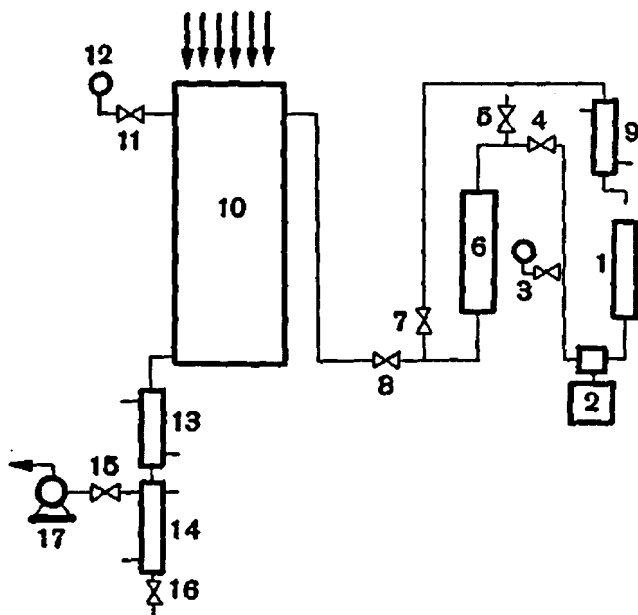


Рис. 1. Схема проточной установки:

1 — мерная емкость; 2 — насос НРЖ; 3, 12 — манометры; 4, 5, 7, 8, 11, 15, 16 — вентили; 6 — испаритель; 10 — реактор; 9, 13 — холодильники; 14 — газосепаратор; 17 — газовые часы

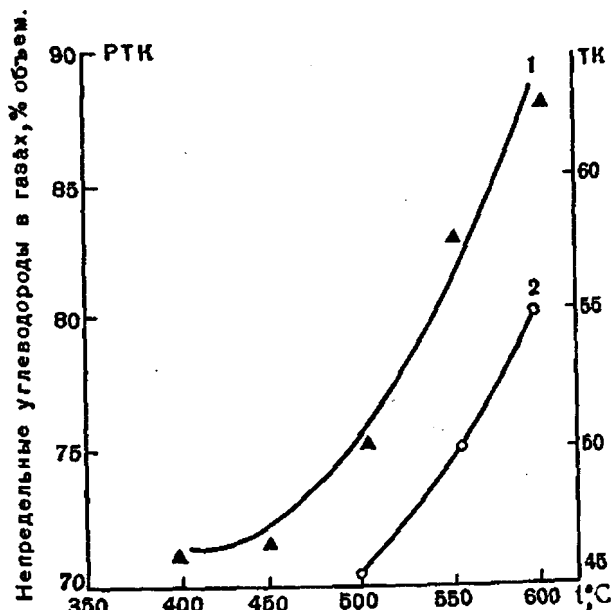


Рис. 2. Рост содержания непредельных углеводородов во фракции $C_2 - C_4$ РТК (1) и ТК (2) в зависимости от температуры

ских и непредельных углеводородов в жидких продуктах находилось методом сульфирования по Катвинкелю.

В качестве сырья РТК использовались различные нефтяные дистиллаты, характеристика которых представлена в табл. 1.

углеводородов во фракции $C_2 - C_4$, показанный на рис. 2. Из рисунка видно, что процент непредельных при РТК очень круто растет с температурой, превышая 80%, в то время как в термическом крекинге он достигает всего лишь 50—55%.

Таблица 2. Выход газообразных продуктов ТК и РТК бензина прямой гонки с концом кипения 140° С при различных температурах

Выход газообразных продуктов, см ³ /г, пропущенного сырья										
Процесс	°C	Всего газа	H ₂	CH ₄	C ₂ H ₄	C ₂ H ₆	C ₃ H ₆	C ₃ H ₈	C ₄ H ₁₀ Σ _{i+n}	C ₄ H ₈
РТК	400	28,7	2,8	10,1	2,8	3,0	0,7	2,1	2,5	0,9
	500	72,0	6,3	19,8	7,4	15,4	1,2	8,5	4,6	3,4
	600	206	15	58	16,9	43,2	3,9	26,2	15,1	13,1
ТК	400	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	500	1,6	0,3	0,5	0,06	0,2	0,02	0,04	0,22	—
	600	97	7,2	25,6	8,0	21,6	1,6	1,2	7,2	4,8

n-Гептан

Опыты по РТК n-гептана (как и других видов сырья) проводились при температурах от 400 до 600° С. Была установлена зависимость образования газообразных продуктов от температуры для РТК и выделена составляющая, обусловленная иницирующим действием излу-

Прямогонный бензин с концом кипения 140° С и краснодарский газовый бензин

Зависимости выхода газообразных продуктов РТК в 1 см³/г пропущенного сырья от температуры (рис. 3) для этих бензинов по характеристикам аналогичны таким же зависимостям для n-гептана. На примере бензина с концом кипения

140° С видно, что состав газообразных продуктов РТК богаче по содержанию олефиновых углеводородов, чем при ТК, что подтверждается данными табл. 2.

Были исследованы также и другие виды сырья.

Прямогонный бензин с концом кипения 200° С; фракция с концом кипения 200° С, выделенная из сырой нефти месторождения Татарской АССР

При исследовании РТК тяжелых бензинов показано также возрастание с температурой

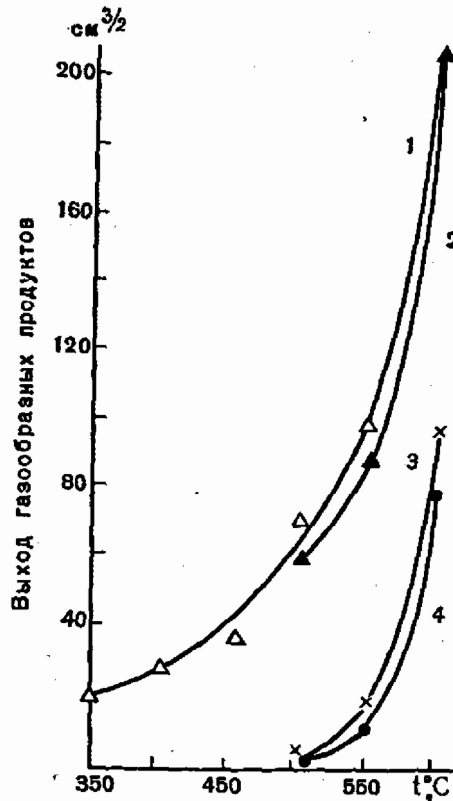


Рис. 3. Зависимость выходов газообразных продуктов РТК и ТК бензина прямой гонки с концом кипения 140° С и краснодарского газового бензина от температуры:

1 — РТК бензина с концом кипения 140° С; 2 — РТК краснодарского газового бензина; 3 — ТК бензина с концом кипения 140° С; 4 — ТК краснодарского газового бензина.

процесса выходов газообразных продуктов, включая олефиновые углеводороды (рис. 4).

Выходы газообразных продуктов и распределение в них непредельных соединений при температурах, являющихся максимальными в наших опытах, приведены в табл. 3.

Средний газойль (интервал выкипания 250—363° С)

При РТК паров среднего газойля возрастание выходов газообразных продуктов аналогично таковому для РТК легких видов сырья, как это показывает рис. 5 и табл. 4.

2. РТК низкооктанового бензина прямой гонки в равномерном температурном поле ¹¹

Конструкция реактора в опытах с неравномерным температурным полем была такова, что непосредственно под входным окошком, через которое вводили электроны и где была максимальная интенсивность излучения, температура была почти на 200° С ниже температуры большей части длины реактора (принимавшейся при расчетах за температуру опыта). Это обстоятельство, конечно, снижало наблюдаемые выходы продуктов РТК и значительно искажало действительную температурную зависимость.

С целью получения более однозначных экспериментальных данных нами была проведена дополнительная серия опытов на электронном ускорителе по РТК низкооктанового прямогонного бензина (с концом кипения 140° С) в реакторе с равномерным температурным полем, для чего использовался реактор новой конструкции со свинцовой баней (рис. 6). В новом реакторе входное окно располагалось в глубине его, что предотвращало охлаждение бериллиевой фольги и искажение температурного поля под входным окном реактора. Применение большой массы расплавленного свинца в качестве теплоносителя позволило получать высокие температуры и обеспечивать интенсивный теплообмен и равномерный нагрев паров сырья во всем объеме реактора.

Таблица 3. Выход газообразных продуктов ТК и РТК

Сырье	Процесс	°С	H ₂	CH ₄	C ₂ H ₆	C ₃ H ₈	C ₂ H ₄	C ₃ H ₆	C ₄ H ₁₀	$\frac{C_4H_{10}}{\sum_{i=1}^n}$	C ₄ H ₈
Бензин прямой гонки, конец кипения 200° С	РТК	550	6,7	30,0	8,5	20,0	3,6	10,9	2,4	6,1	
	ТК		2,0	9,8	2,7	6,0	0,6	2,7	0,9		
Фракция, конец кипения 200° С, выделенная из сырой татарской нефти	РТК	550	9,5	30,6	13,0	36,6	1,2	13,0	2,4	9,5	
	ТК		2,2	8,7	3,9	9,1	0,2	3,2	1,5		
Краснодарский газовый бензин	РТК	600	18,8	41	18,8	36,0	18,7	30,0	31,9	11,4	
	ТК		6,8	13,0	4,8	15,0	0,72	9,0	9,1		3,4

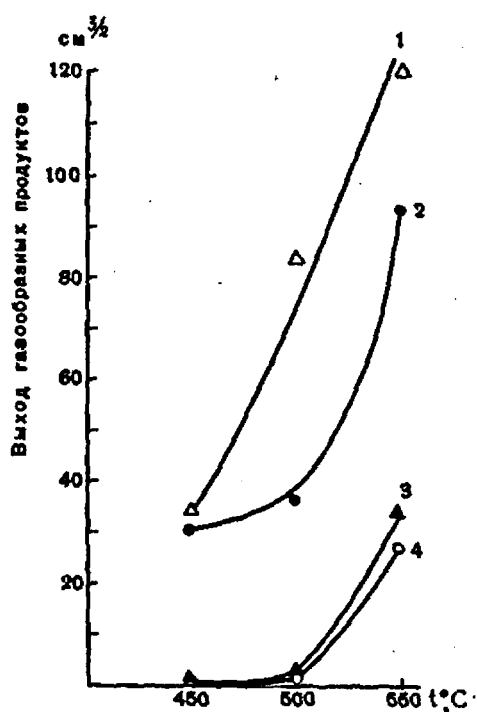


Рис. 4. Зависимость выходов газообразных продуктов РТК и ТК бензина прямой гонки с концом кипения 200°С и фракции с концом кипения 200°С (выделенной из сырой татарской нефти) от температуры:
1 — РТК фракции; 2 — РТК бензина; 3 — ТК фракции; 4 — ТК бензина (все четыре фракции с концом кипения 200°С)

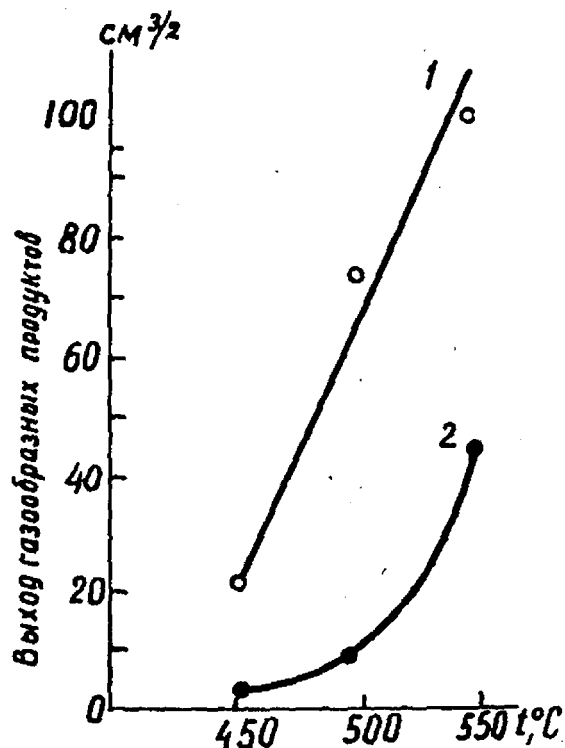


Рис. 5. Влияние температуры на выход газообразных продуктов РТК (1) и ТК (2) бензина средней фракции

Таблица 4. Выход газообразных продуктов ТК и РТК среднего газойля при различных температурах

		Выход газообразных продуктов, см ³ /г, пропущенного сырья								
Процесс	°С	Всего газа	H ₂	CH ₄	C ₂ H ₆	C ₂ H ₄	C ₂ H ₂	C ₃ H ₈	C ₃ H ₆	C ₄ H ₁₀ Σ _{i+n}
РТК	450	22,6	5,7	3,9	1,0	8,5	1,0	3,6	0,6	1,0
	500	72,5	5,5	11,8	7,9	21,8	3,1	11,8	0,8	6,3
	550	100	3,0	19,9	13,5	33,6	4,0	16,6	—	9,9
ТК	450	2,7	0,34	0,81	0,3	0,85	0,05	0,17	0,07	0,05
	500	7,4	0,5	2,0	1,0	2,7	0,2	0,8	—	0,2
	550	43	1,9	13,1	5,8	15,6	1,5	4,9	—	2,3

При проведении экспериментальных исследований на реакторе новой конструкции предполагалось уточнить следующие вопросы:

1. Глубину превращения прямогонного бензина с концом кипения 140°С.

2. Выход газообразных продуктов реакций в зависимости от температуры процесса.

Как видно из рис. 7, глубина превращения в опытах с новым реактором почти в два раза

Таблица 5. Характеристика исходного сырья (бензиновая фракция карадагского конденсата, конец кипения 200°С)

n _D ²⁰	d ₄ ²⁰	Молекулярный вес	Иодное число	Сера, %	Групповой состав, вес. %		
					ароматина	нафтеновые	парафиновые
1,4139	0,7435	94,5	0,258	0,0125	11,27	29,56	59,17

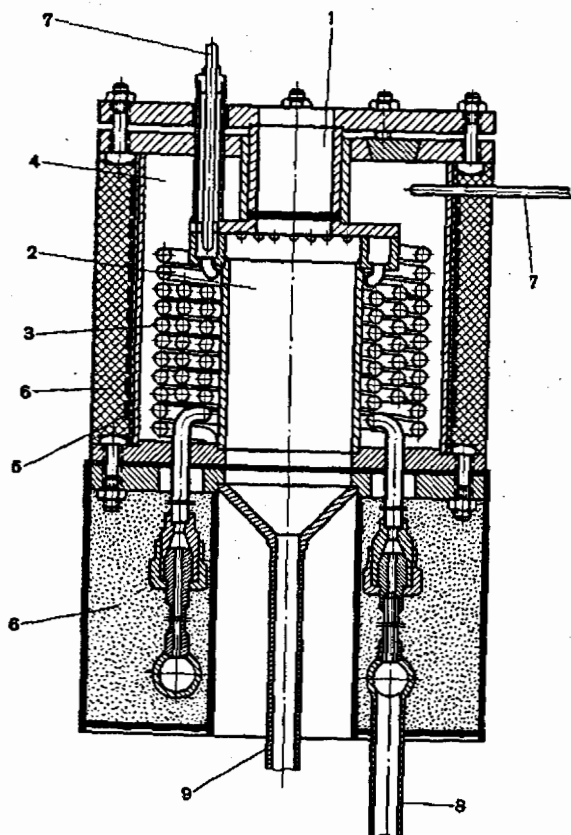


Рис. 6. Схема реактора с равномерным температурным полем:

1 — бериллиевое окно; 2 — реакционный объем; 3 — змеевики для подачи сырья; 4 — свинцовая баня; 5 — электроннагреватель; 6 — изоляция; 7 — термопары; 8 — коллектор для подачи паров из испарителя в реакционный объем; 9 — выход продуктов из реактора

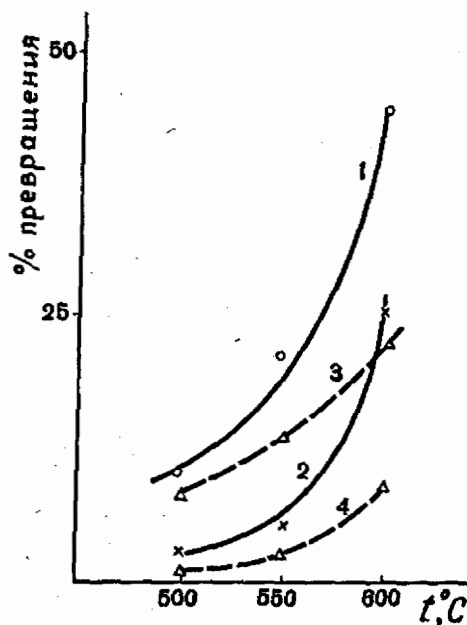


Рис. 7. Глубина превращения бензина прямой гонки с концом кипения 140° С в зависимости от температуры процесса: 1 — РТК в реакторе с равномерным температурным полем; 2 — ТК в том же реакторе; 3 — РТК в реакторе с неравномерным температурным полем; 4 — ТК в том же реакторе

Таблица 6. Состав газообразных продуктов РТК в зависимости от температуры

Состав газа	H ₂	CH ₄	C ₂ H ₆	C ₂ H ₄	C ₃ H ₈	C ₃ H ₆	C ₄ H ₁₀ Σ _{i+n}	C ₄ H ₈	C ₅ H ₁₂ Σ _{i+n}
480	11,2	42,1	13,4	25,2	2,8	—	5,3	—	—
530	7,4	43,5	10,6	20,2	1,6	12,2	2,2	0,9	1,3
570	6,6	54,7	6,5	19,4	0,7	8,6	4,3	0,6	1,2

выше, нежели в реакторе с равномерным температурным полем.

Рис. 8 показывает, что и выход газообразных (в том числе и олефиновых) углеводородов значительно превосходит таковой в опытах со старым реактором.

3. Облучение на ядерном реакторе

Для проведения РТК в канале ядерного реактора была специально сконструирована проточная установка¹², схема которой при-

Таблица 7. Выход газообразных продуктов РТК в зависимости от температуры процесса, см³/г

°C	Газ	
	C ₂ H ₄	C ₃ H ₆
480	5,6	—
530	36,4	21,8
570	93,0	41,4

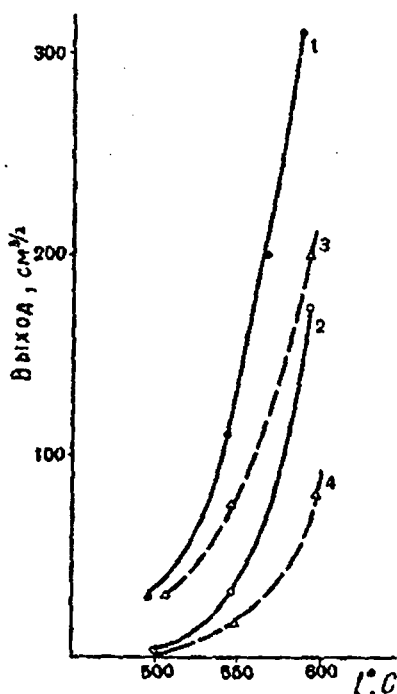


Рис. 8. Зависимость выходов газообразных продуктов РТК и ТК бензина на прямой гонке с концом кипения 140°C от температуры:

1 — РТК в реакторе с равномерным температурным полем; 2 — ТК в том же реакторе; 3 — РТК в реакторе с неравномерным температурным полем; 4 — ТК в том же реакторе

Таблица 8. Характеристика жидких продуктов РТК при различных температурах при $P=1 \text{ атм}$

$^{\circ}\text{C}$	n_D^{20}	d_4^{20}	Молекулярный вес	Иодное число	непрельзные, %
480	1,4190	0,7458	94,3	15,9	5,9
530	1,4309	0,7569	100,1	15,8	6,2
570	1,4880	0,8459	127,7	28,3	14,2

ведена на рис. 9. Установка рассчитана для горизонтального канала ядерного реактора и на ней можно проводить процессы в проток при температурах $40-600^{\circ}\text{C}$ и давлении $1 \div \pm 30 \text{ атм}$; причем давление задается собственными парами вещества. Установка обеспечена автоматическим регулированием и контролем температуры и давления и автоматическим отбором газообразных продуктов на хроматограф. Электрообогреватель обеспечивает равномерность температурного поля внутри реакционной зоны.

Перед началом работы установку вводили в канал реактора, проверяли герметичность напуском в систему CO_2 . После выхода на тре-

Таблица 9. Выход газообразных углеводородов, вес. $\%$, на сырьё

Процесс	Температура процесса, $^{\circ}\text{C}$	Общий газ	Этилен	Пропанен
ТК	570	11,0	2,0	1,8
РТК	570	68,0	14,0	12,5
Пиролиз	770	52,2	17,0	нет

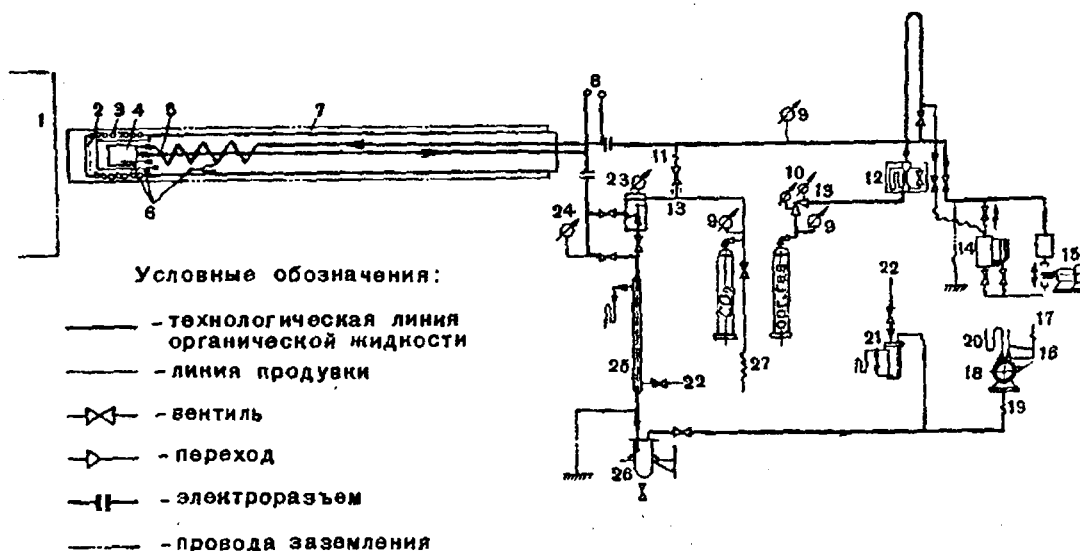


Рис. 9. Технологическая схема установки:

1 — активная зона; 2 — фильтр V_2C ; 3 — электронагреватель; 4 — реакционная зона; 5 — токопроводящая трубка-испаритель; 6 — термопары; 7 — канал реактора; 8 — электропитание; 9, 24 — образцовые манометры ($P = 1 \div 60 \text{ атм}$); 10 — редуктор ($с 0-150$ до $0-60 \text{ атм}$); 11 — воздушник; 12 — реометр с капилляром ($P = 100 \text{ атм}$); 13 — капилляр; 14 — сырьевой багон ($1,5 \text{ л}$); 15 — жидкостный насос; 16 — термометр ($0-50^{\circ}\text{C}$); 17 — в вентиляцию; 18 — газосчетчик типа 1-ГСБ-400; 19 — линия на отбор пробы к хроматографу ХТ-2М; 20 — U-образный дифференциальный манометр ($P = 600 \text{ мм вод. ст.}$); 21 — гидрозатвор ($P = 600 \text{ мм вод. ст.}$); 22 — проточная вода; 23 — регулятор давления «до себя»; 25 — холодильник; 26 — газосепаратор; 27 — продувка

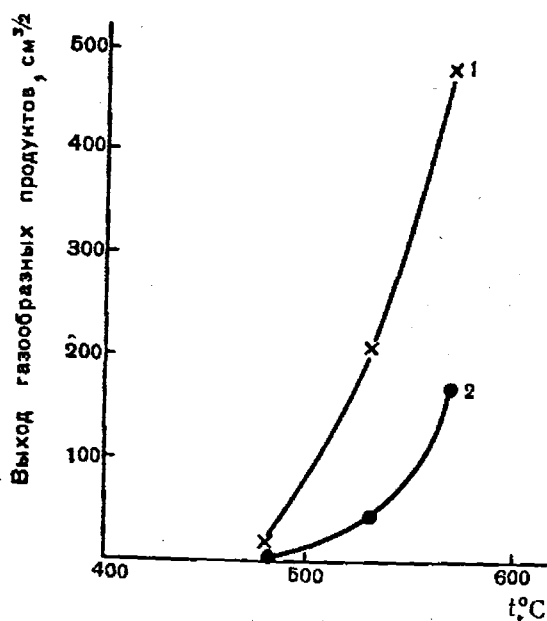


Рис. 10. Зависимость выходов газообразных продуктов РТК и ТК фракции бензина с концом кипения 200°С от температуры при $P=1$ ат.м.;
1 — РТК; 2 — ТК

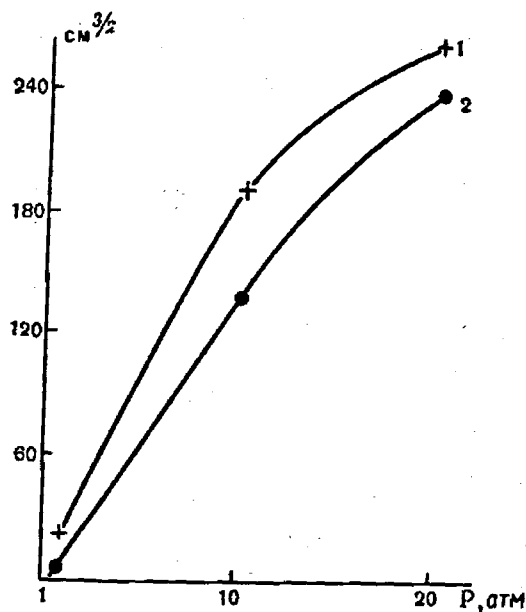


Рис. 11. Зависимость выходов газообразных продуктов РТК и ТК фракции бензина с концом кипения 200°С от давления при 480°С:
1 — РТК; 2 — ТК

Таблица 10. Состав газообразных продуктов ТК и РТК в зависимости от давления при 480°С

Состав газа	Давление атмосферное					
	1		10		20	
	ТК	РТК	ТК	РТК	ТК	РТК
H ₂	—	11,2	5,5	4,2	4,0	4,2
CH ₄	—	42,1	54,2	45,2	56,3	53,4
C ₂ H ₆	—	13,4	11,4	13,8	13,8	9,7
C ₂ H ₄	—	25,2	9,3	9,5	5,8	8,1
C ₂ H ₂	—	28,0	3,7	7,2	6,2	6,0
C ₃ H ₈	—	—	10,9	13,4	9,0	11,5
i-C ₄ H ₁₀	—	—	0,6	1,0	0,8	0,7
n-C ₄ H ₁₀	—	5,3	2,3	3,2	2,2	2,8
C ₄ H ₈	—	—	0,6	0,8	0,6	0,8
C ₄ H ₆	—	—	0,9	1,1	0,8	1,2

буемый температурный режим в установке создавалось заданное давление парами сырья, прокачиваемого с постоянной скоростью. Облучение проводилось быстрыми нейтронами и γ -излучением; медленные нейтроны отсекались фильтром из карбида бора. Мощность дозы по ферросульфатному дозиметру в пересчете на пары при нормальном давлении и температуре составляла $\sim 10^{15}$ эв/см²·сек. После окончания опыта конденсат сливался в тарированную емкость, и вся система продувалась CO₂.

Термический крекинг проводился на той же установке, в тех же условиях температуры и давления, но вне канала реактора. Методика

Таблица 11. Характеристика жидких продуктов ТК и РТК

°С	P, атм	Вид процесса	n_D^{20}	d_4^{20}	Молекулярный вес	Иодное число	Непредельные, %
480	1	РТК	1,4120	0,7458	94,3	15,9	5,9
		ТК	1,4220	0,7557	95,1	29,8	11,2
	10	РТК	1,4335	0,7635	103,6	25,4	10,4
		ТК	1,3480	0,7684	103,7	22,7	9,3
	20	РТК	1,4175	0,7417	105,8	23,1	9,1

анализа сырья и продуктов реакции тождественна описанной выше.

РТК бензиновой фракции карадагского конденсата с концом кипения 200°С

Характеристика сырья представлена в табл. 5. Для выяснения степени активизации проведено облучение исходного сырья в запаянных кварцевых ампулах в течение двух часов в нейтронном потоке $\sim 4 \cdot 10^{12}$ нейтр/см²·сек. Спустя 9 дней после облучения при вскрытии ампулы наведенная активность бензина не превышала фона.

Зависимости выходов газообразных продуктов для ТК и РТК от температуры при атмосферном давлении (рис. 10) по своему характеру аналогичны полученным ранее при работе на электронном ускорителе^{6,11} и кобальтовом источнике¹³. Состав газообразных продуктов РТК под действием смешанного γ - n -излучения приведен в табл. 6.

Из сопоставления результатов табл. 6 и 2 можно видеть, что вклад нейтронного излучения не отражается на составе газообразных продуктов. Из табл. 6 видно также, что с повышением температуры процент непредельных углеводородов в газовой смеси понижается; однако их абсолютный выход, как это видно из табл. 7, растет.

В табл. 8 представлены характеристики жидких продуктов РТК при различных температурах и атмосферном давлении.

Если сравнивать результаты РТК с результатами пиролиза этого же сырья (табл. 9), то видно, что общий выход газовых продуктов РТК при 570° С в 1,2 раза выше, чем при пиролизе при 700° С, а сумма непредельных — в 1,5 раза выше¹⁴.

Кинетическая обработка результатов дает значение для величины суммарной энергии активизации чисто термического процесса $60 \pm \pm 2,5$ ккал/моль в согласии с литературными данными; энергия активизации чисто радиационного процесса (условно определяемого по разности между скоростями РТК и ТК) равна 23 ± 3 ккал/моль. Последняя величина хорошо согласуется с полученными ранее на других источниках излучения и для других видов сырья^{5, 6, 11, 12}. Условный радиационно-химический выход продуктов РТК (определяемый по разности скоростей РТК и ТК в молекулах на 100 эв поглощенной энергии излучения) равен 10^4 — 10^5 молекул на 100 эв в зависимости от температуры.

Влияние давления на процесс РТК

Общий выход газообразных продуктов растет с увеличением давления, причем линейно в области от 1 до 10 атм. Выход продуктов РТК превышает выход продуктов ТК (рис. 11).

В газообразных продуктах с увеличением давления наблюдается снижение процентного содержания непредельных соединений (табл. 10).

Аналогичное явление отмечалось и в работах^{8, 13}. Выход непредельных соединений достигает максимального значения при средних давлениях 1—3 атм, а затем уменьшается.

При повышении температуры до 530° С с увеличением давления наблюдается уменьшение отношения выходов РТК/ТК. Действительно, если при $P = 1$ атм $W_{РТК}/W_{ТК} = 4,5$, то при 10 атм это отношение уже всего 1,2.

С повышением давления существенно изменяется состав жидких продуктов (табл. 11).

Некоторые перспективы процесса РТК

В наших работах показано, что выходы непредельных газов достигают ~ 55% на сырье, а содержание их в газах РТК до 70%; содержание жидких непредельных в конденсате до 45 вес. %. Общая глубина превращения за один проход ~ 75%. Радиационно-химический

выход 10^3 — 10^5 молекул на 100 эв в зависимости от мощности, температуры и давления. Оптимальные условия РТК по выходам и глубинам превращения для различных видов сырья лежат в области 400—600° С, 1—3 атм в зависимости от мощности дозы.

Однако такие показатели процесса далеко не являются предельными. Увеличение выходов может быть получено прежде всего за счет увеличения мощности дозы, так как в довольно широких и пока еще не изученных сверхпределах $G \sim \sqrt{I}$, причем наклон соответствующих кривых зависит от температуры процесса. Очевидно, что при каких-то больших мощностях дозы число иницирующих центров, генерируемых излучением, возрастает настолько, что их рекомбинация помешает дальнейшему возрастанию выходов интересующих нас продуктов РТК. Тем не менее на основании имеющихся данных можно высказать достаточно уверенное предположение, что увеличение мощности дозы до 6 — $8 \cdot 10^{16}$ эв/см³ приведет к дальнейшему увеличению выходов и некоторому снижению температуры процесса.

Существенное значение для увеличения выходов и степени направленного превращения исходного сырья имеют чисто технологические параметры процесса, как это показано нами прямыми экспериментами. Так, осуществление температурного поля, удовлетворяющего кинетическим и радиационным особенностям процесса, привело к увеличению выходов без изменения всех прочих параметров РТК. Важное значение имеет также структура дозного поля, длина и другие характеристики коммуникаций, гидромеханики потока, скорость перемешивания и т. д. Даже частичный и далеко не оптимальный учет этих факторов позволил, не изменяя энергетических затрат на излучение и на нагрев, значительно увеличить выходы и содержание в продуктах РТК целевых продуктов (заметим, что нагрев производится за счет отходящего тепла реактора).

Предварительные ориентировочные расчеты показывают экономическую эффективность РТК по сравнению с пиролизом в трубчатых печах. Кроме того, РТК позволяет в краткие сроки окупить затраты на строительство ядерного реактора, особенно если использовать крекируемые углеводородные пары как теплоноситель (более выгодный по своим теплофизическим свойствам, чем CO₂ и другие газы).

Необходимо указать, что РТК оказывается экономически эффективным не только на стадии самого процесса крекинга, но и на стадии газоразделения в силу более простого состава газа, причем состав газа можно изменять в определенных пределах при рациональном выборе параметров процесса. Резкое уменьшение по сравнению с пиролизом саже- и смолообразования также является существенной положительной особенностью РТК. В то же время на процесс РТК расходуется очень малая часть мощности

энергохимического реактора, порядка нескольких процентов, что позволяет использовать его как для других радиационно-химических процессов на основе полученного в РТК сырья, так и в качестве источника электрической и тепловой энергии.

Поэтому представляется эффективным с технологической точки зрения строить нефтеперерабатывающий и нефтехимический комбинаты на базе энергохимического реактора, служащего источником излучений для радиационно-химических процессов и источником энергетического питания нефтехимических процессов, осуществляемых этим комбинатом на основе различных продуктов РТК.

ЛИТЕРАТУРА

1. Л. С. Полак, А. В. Топчиев и Н. Я. Черняк. Доклады АН СССР, 119, 307 (1958).
2. А. В. Топчиев, Л. С. Полак, Н. Я. Черняк, В. Е. Глушнев, И. В. Верещинский и П. Я. Глазунов. Доклады АН СССР, 130, 789 (1960).
3. А. В. Топчиев, Л. С. Полак, Н. Я. Черняк, В. Е. Глушнев, П. Я. Глазунов, И. В. Верещинский, Н. П. Сыркис, А. Х. Брегер, Б. И. Вайнштейн. Радиоактивные изотопы и ядерные излучения в на-

- родном хозяйстве СССР, I, М., Гостоптехиздат, 1961, стр. 206.
4. А. В. Топчиев, Л. С. Полак, Н. Я. Черняк, В. Е. Глушнев, И. В. Верещинский и П. Я. Глазунов. Range Radiation Sources in industry, Vienna, conference proceedings, v. 2, 131-138 (1960).
 5. P. J. Lucchesi, B. L. Targum, R. B. Long, D. L. Raeger and J. P. Longwell. Ind. Eng. Chem., 50, No 6, 879 (1958).
 6. А. В. Топчиев, Л. С. Полак, В. Е. Глушнев, В. Т. Попов, В. Д. Тимофеев, П. Я. Глазунов и Г. Г. Рябчикова. Нефтехимия, II, № 2, 196 (1962).
 7. G. O. Schenk, G. Follidiak and W. Meder. Naturwissenschaften, 48, 571-572 (1961).
 8. Панченков и др. Изв. Высш. школы. Нефть и газ, № 12, 99-101 (1961).
 9. П. Я. Глазунов, Ю. А. Колбановский и В. Д. Тимофеев. Труды II Всесоюзного совещания по радиационной химии. М., Изд-во АН СССР, 1962.
 10. Н. В. Миловидова, Б. М. Раппопорт. Труды ВНИГИ, вып. VI, 137 (1954).
 11. Л. С. Полак, В. Е. Глушнев и Г. Г. Рябчикова. Нефтехимия (в печати).
 12. А. К. Ахундов, Г. С. Карумидзе, Г. М. Красавцева и В. Т. Попов. Атомная энергия, 14, вып. 4 (1963).
 13. В. Д. Тимофеев. Нефтехимия, 3, № 1 (1963).
 14. Р. Г. Исмаилов, З. А. Султанов и Т. М. Иванова. Изв. Высш. школы. Нефть и газ, № 12, 91 (1958).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/389 USSR

Radiation-thermal cracking of crude oil stocks and hydrocarbon gases

by L. S. Polak

The use of ionising radiation (γ , e^- , γ -n) makes it possible to pyrolyse liquid and gaseous hydrocarbons in the vapour phase, because irradiation lowers the activation barrier to the initiation of the process, and the temperature (some 200 °C lower than that at which common cracking processes proceed) creates the necessary conditions for primary-radical decomposition and development of the chain reaction.

It is shown that ordinary radiolysis of hydrocarbons enters the chain-reaction phase around 250 °C or, in the presence of a catalyst, around 150 °C.

The aim of radiation-thermal cracking (RTC) is to obtain unsaturated monomeric raw materials for petro-chemical synthesis and polymerisation.

RTC of various types of crude oil, fractionates and gaseous hydrocarbons was studied.

The dependence of the yield of end-products and the raw-materials conversion depth on the dose rate, duration of stay in the reaction zone, temperature and pressure was studied in order to establish the optimum conditions for the process.

It is shown that the unsaturated gas yield is equiva-

lent to about 55% of the raw materials, and that their content in RTC gases is around 70%; the proportion of liquid unsaturated compounds in the condensate is nearly 45% by weight. The over-all conversion depth in a single pass is about 75%. The radiation-chemical yield is approximately 10^3 - 10^5 molecules per 100 eV, depending upon the dose rate, temperature and pressure. The optimum conditions for RTC as regards yields and conversion depths for various types of raw material range from 400 to 600 °C at 1-3 atm, depending on the dose rate.

Preliminary estimations suggest that RTC is economically sounder than pyrolysis in tube furnaces.

A/389 URSS

Craquage radio-thermique du pétrole, des produits pétroliers et des hydrocarbures gazeux

par L. S. Polak

L'utilisation des rayonnements ionisants (γ , e^- , γ -n) permet de réaliser la pyrolyse des hydrocarbures liquides et gazeux en phase vapeur, car le rayonnement enlève la barrière d'activation à l'amorçage du processus, et la température (inférieure d'environ 200 °C à la température habituelle du craquage) crée les condi-

tions nécessaires à la décomposition des radicaux primaires et au développement de la réaction en chaîne.

On montre que la radiolyse ordinaire des hydrocarbures prend le caractère d'une réaction en chaîne à environ 250 °C ou, en présence d'un catalyseur, vers 150 °C.

Le but du craquage radio-thermique (CRT) est d'obtenir des produits monomères non saturés pour la synthèse pétrochimique et la polymérisation.

On a étudié le CRT de divers types de pétrole brut, de fractions pétrolières et d'hydrocarbures gazeux.

Pour trouver les paramètres optimaux du CRT, on a étudié le rendement en produits et le degré de transformation de la matière première en fonction de l'intensité de la dose, du temps de séjour dans la zone de réaction, de la température et de la pression.

On montre que les rendements en gaz non saturés représentent environ 55% de la matière brute, et que leur teneur dans les gaz de CRT atteint jusqu'à environ 70%. Le condensat a une teneur en liquides non saturés allant jusqu'à environ 45% en poids. Le degré total de transformation en un passage est d'environ 75%. Le rendement radiochimique est d'environ 10^3 à 10^6 molécules pour 100 eV, selon l'intensité, la température et la pression. Les conditions optimales du CRT pour ce qui est du rendement et du degré de transformation pour différents types de matière brute correspondent à des températures de 400 à 600 °C, et à des pressions de 1 à 3 atm, selon l'intensité de la dose.

Des calculs préliminaires montrent l'intérêt économique du CRT par rapport à la pyrolyse en appareils tubulaires.

A/389 URSS

Craqueo térmico radiativo del petróleo crudo y de los hidrocarburos gaseosos

por L. S. Polak

La utilización de las radiaciones ionizantes γ , e^- , γ -n) permite realizar la pirólisis de los hidrocarburos

líquidos y gaseosos en su fase de vapor, puesto que la radiación suprime la barrera de activación para la iniciación del proceso, mientras que la temperatura (unos 200 °C inferior a la necesaria en un proceso ordinario de craqueo) crea condiciones propicias para la descomposición de los radicales primarios y el desarrollo de la reacción en cadena.

Se demuestra que la radiólisis normal de los hidrocarburos adquiere carácter de reacción en cadena a los 250 °C aproximadamente mientras que en presencia de un catalizador ocurre a unos 150 °C.

La finalidad del craqueo térmico radiativo (CTR) es la obtención de hidrocarburos monómeros en bruto no saturados para la síntesis de los derivados del petróleo y la polimerización.

Se ha estudiado el CTR de diferentes formas de petróleo crudo, de los productos de la destilación fraccionada y de los hidrocarburos gaseosos.

Para encontrar los parámetros óptimos del CTR se ha estudiado la relación entre la cantidad de los derivados obtenidos y el grado de la transformación del petróleo, por una parte, y la intensidad de la dosis, tiempo de exposición, temperatura y presión, por otra.

Se demuestra que la proporción de los gases no saturados alcanza un 55 % del peso total de la materia prima, mientras que su contenido en los gases de CTR alcanza el 70 % aproximadamente: la proporción de los productos líquidos no saturados en los residuos alcanza hasta el 45% del peso. El grado total de la transformación en un ciclo es de cerca del 75%. La relación entre el número de moléculas y la energía de la radiación es de unas 10^3 - 10^6 moléculas por 100 eV, según la potencia, temperatura y presión. Las condiciones óptimas del CTR en relación con el rendimiento y el grado de transformación para diferentes tipos de materias primas están comprendidas entre 400 y 600 °C, 1 y 3 atm, según la intensidad de dosis.

Los cálculos preliminares ponen de manifiesto un buen rendimiento del CTR en comparación con la pirólisis en hornos tubulares.

Algunas aplicaciones de los elementos radiactivos como trazadores en obras públicas

por M. del Val*, A. Plata* y J. M. Serratosa**

DETERMINACIÓN DE LA POSICIÓN DE MEDIDORES DE TENSIÓN («VENTILGEBER») EN LOSAS DE HORMIGÓN

Uno de los métodos de medida directa de las tensiones en cuerpos sólidos, desarrollado recientemente por Glötzl [1], consiste en equilibrar las tensiones originadas en el sólido mediante una presión de aceite, actuando ambas sobre una membrana.

En la figura 1 puede verse una fotografía de uno de estos medidores de tensión («Ventilgeber»), y en la figura 2 un esquema de su funcionamiento. La tensión en el hormigón σ actúa sobre una cámara elástica estanca llena de aceite; esta tensión se transmite a una membrana que apoya sobre una base pulida, quedando entonces cerrada la válvula. Para hacer la medida se aumenta paulatinamente la presión de aceite p , que actúa sobre el otro lado de la membrana; en el momento que p es mayor que σ se produce una ligera separación de la membrana permitiendo el retorno del aceite bombeado, e impidiendo el aumento de la presión de aceite. Utilizando una membrana suficientemente flexible y un caudal reducido de aceite, se puede lograr un estado de equilibrio entre p y σ .

Para las medidas de tensiones en losas de hormigón de pavimentos de carreteras, estos medidores de tensión van incluidos dentro de las losas, generalmente en un plano perpendicular al eje de la carretera. Sin embargo, durante el extendido y distribución del hormigón, se pueden producir desplazamientos de la posición del medidor, por lo que es necesario determinarla exactamente después de construída la losa. Interesa medir, por tanto, las inclinaciones respecto al plano perpendicular al eje principal de las tensiones (eje de la carretera). La posición debe determinarse con una precisión de $\pm 5^\circ$. La determinación de esta inclinación de la cámara elástica se ha llevado a cabo por un método basado en la fijación a la misma de dos fuentes radiactivas puntuales y medida posterior de la actividad de éstas desde la superficie.

Método experimental

Para la determinación de la inclinación de la cámara elástica del «Ventilgeber» se fijaron, en las aristas superior e inferior de la misma, dos fuentes radiactivas puntuales de un emisor de rayos gamma, localizándose la desviación con respecto al plano vertical, por medio de un contador de centelleo con un colimador de una apertura muy estrecha.

Las experiencias se llevaron a cabo colocando la placa en un cajón con arena, simulando el hormigón, y con análogas dimensiones a las de éste en la carretera. Las fuentes empleadas fueron de ^{131}I , que emite rayos gamma de 0,36 MeV de energía. Se realizaron experiencias con inclinaciones de la cámara con respecto a la vertical de 0, 3, 5, 10, 15, 20, 25, 30 y 35° , estando ésta a una profundidad, dentro de la caja de arena, incluso mayor que la que tiene generalmente en la losa de hormigón de la carretera. Las medidas se llevaron a cabo desplazando al contador de centelleo junto con el colimador de plomo sobre la superficie de la caja de arena, de la forma indicada en la figura 3, con saltos de 5 mm. Los resultados obtenidos están representados en los gráficos de la figura 4, en los que las abscisas indican los desplazamientos relativos del contador de centelleo a escala natural, y las ordenadas la velocidad de recuento en cuentas por segundo, leída en el integrador.

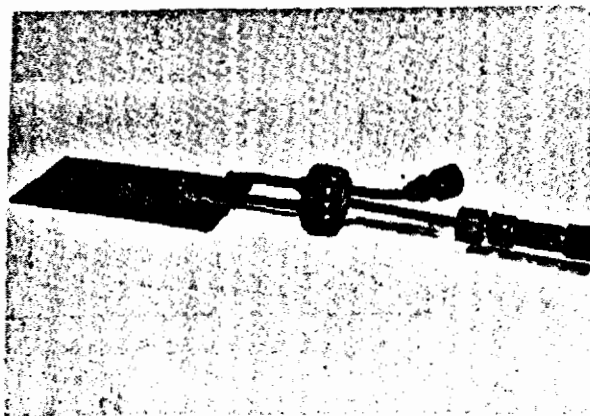


Figura 1. Fotografía de un medidor de tensiones «Ventilgeber»

* Junta de Energía Nuclear.

** Centro de Estudios y Experimentación de Obras Públicas, Madrid.

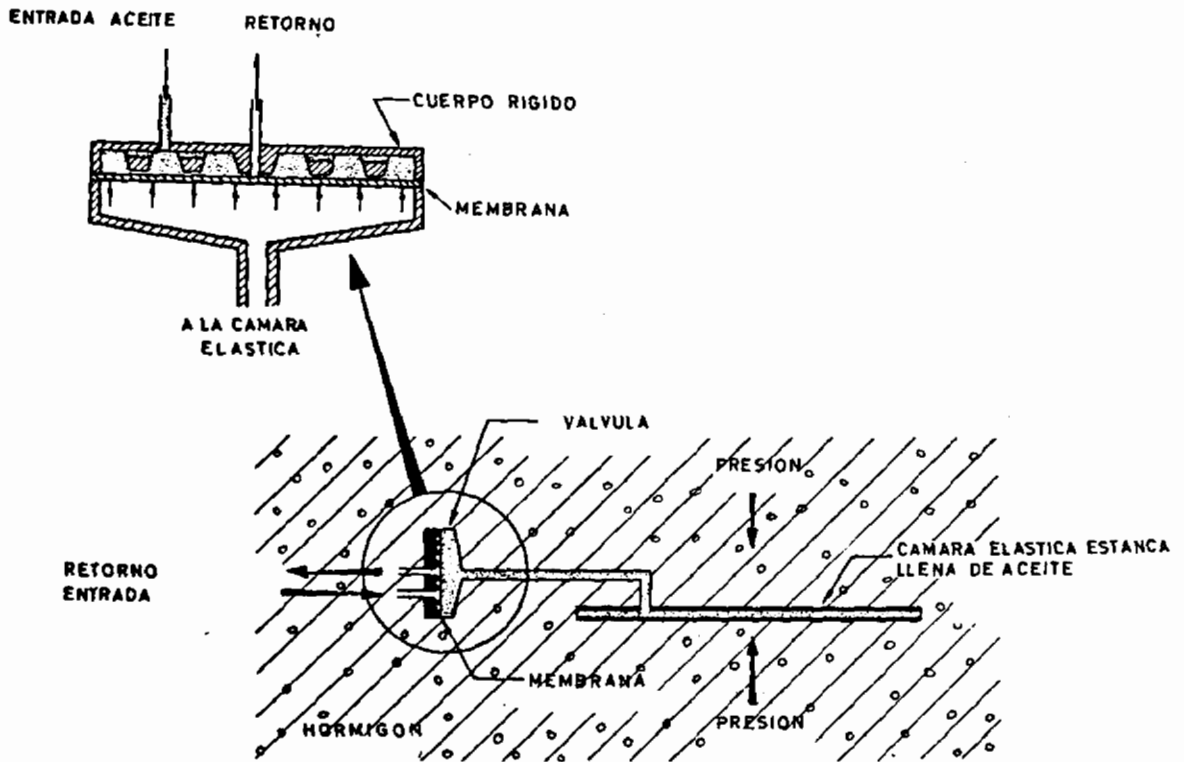


Figura 2. Esquema del funcionamiento de un medidor de tensiones

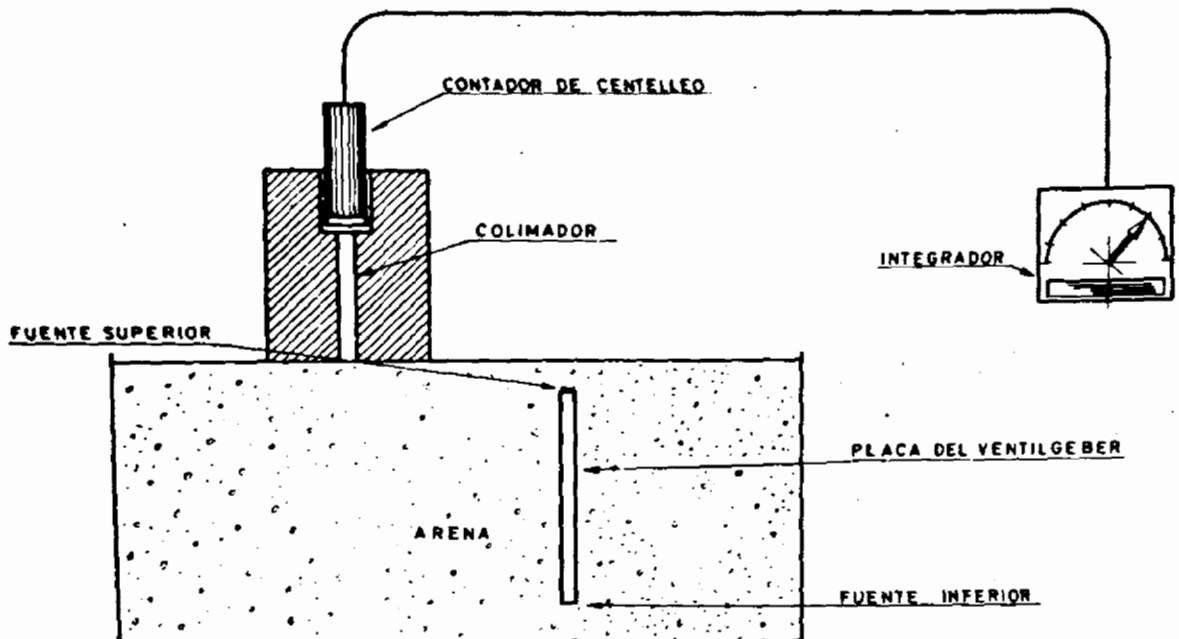


Figura 3. Esquema del método de medida de la inclinación del medidor de tensiones

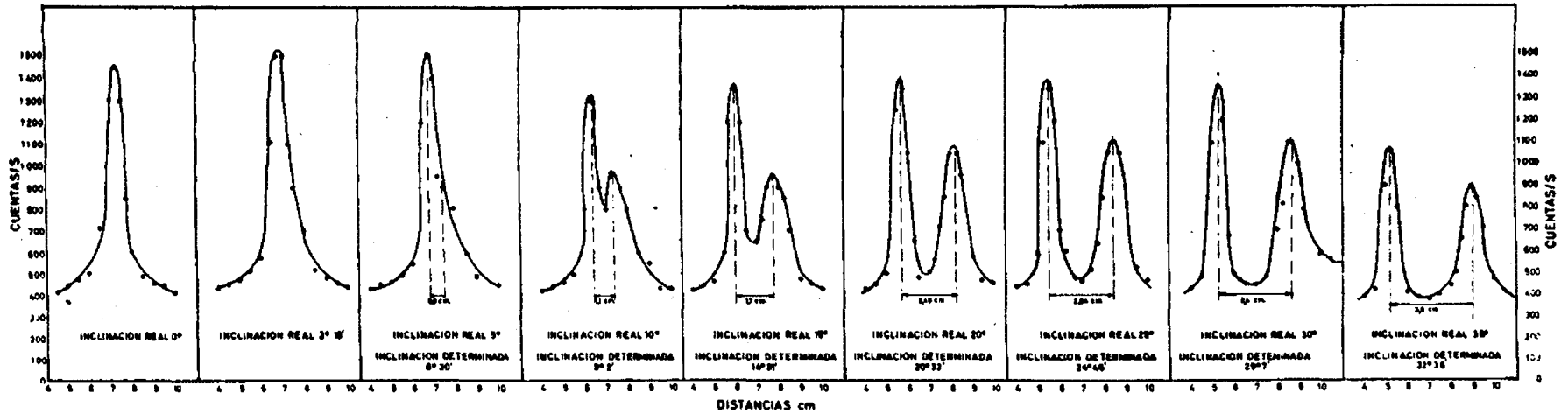


Figura 4. Resultados de las medidas para distintas inclinaciones de la placa del medidor de tensiones. Distancia entre las dos fuentes de 7 cm

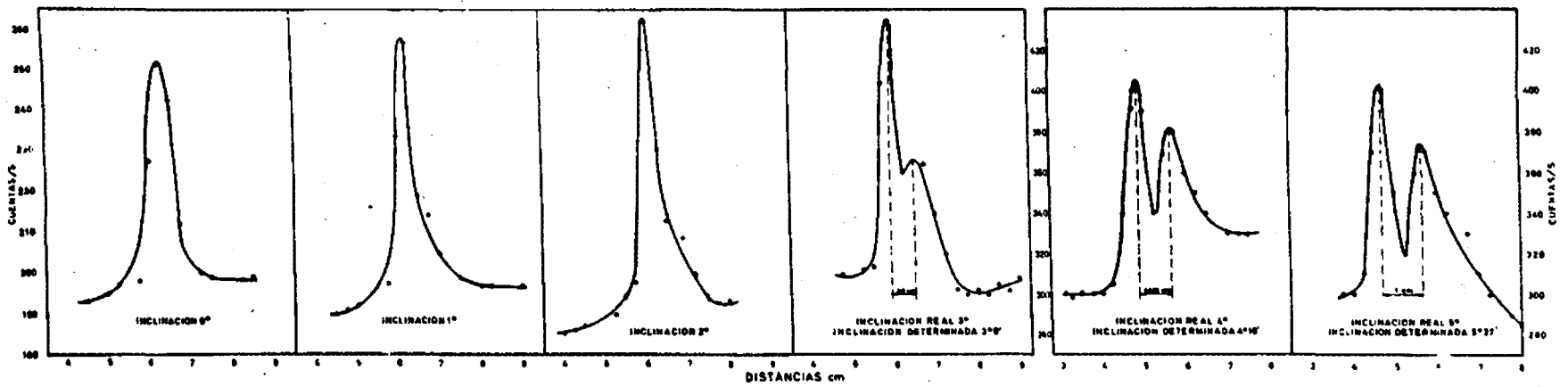


Figura 5. Resultados de las medidas para distintas inclinaciones de la placa del medidor de tensiones. Distancia entre las dos fuentes de 11 cm

Si se analizan estas curvas se observa que, cuando la cámara elástica del « Ventilgeber » se encuentra en un plano vertical, la curva obtenida tiene una forma simétrica, presentando un máximo cuando la rendija de colimación se encuentra precisamente en ese mismo plano. A medida que se va inclinando dicha placa, la curva se va haciendo cada vez más asimétrica y para una inclinación mayor de 10° aparecen ya dos picos, correspondientes a cada una de las fuentes radiactivas. La separación de estos dos picos debe coincidir perfectamente con la de los planos verticales donde se encuentran las fuentes radiactivas. Por tanto, conociendo dicha separación y la distancia a que se encuentran las dos fuentes radiactivas (en nuestro caso 7 cm), puede determinarse fácilmente el seno del ángulo de inclinación de la cámara elástica del « Ventilgeber » y, con ello, dicho ángulo. En las gráficas adjuntas se indican los valores de dichos ángulos obtenidos experimentalmente y que concuerdan con los ángulos reales con un error generalmente inferior a 1° .

Puesto que la sensibilidad del método aumenta con la separación entre las dos fuentes radiactivas, las experiencias se repitieron colocando dichas fuentes en los extremos de una pletina de 11 cm de longitud, soldada a la cámara elástica del « Ventilgeber ». La fuente radiactiva inferior se hizo entonces unas quince veces mayor que la superior, para compensar la mayor absorción en la arena y distancia de aquella. Los resultados obtenidos (figura 5) indican que, en estas condiciones, es posible determinar con bastante exactitud inclinaciones de la cámara elástica desde 3° en adelante y que, incluso, una inclinación de 1° puede ya adivinarse observando la asimetría de la curva obtenida.

Para que los errores cometidos en la determinación de la inclinación de la cámara elástica del « Ventilgeber » sean pequeños, deben cuidarse las condiciones experimentales de medida, especialmente en lo que se refiere a los siguientes puntos:

- i) La superficie sobre la cual se desliza el contador de centelleo colimado debe ser horizontal, lo cual puede controlarse por medio de un nivel;
- ii) La dirección del desplazamiento del contador de centelleo debe ser perpendicular al eje longitudinal del « Ventilgeber ». Para ello es necesario conocer la posición de dicho eje; esto puede solucionarse sin la menor dificultad fijando al « Ventilgeber » una tercera fuente radiactiva en el extremo del mismo opuesto a la placa y localizando la posición de esta inclinación del eje longitudinal del « Ventilgeber » respecto al eje de tensiones. También interesa conocerla para la corrección de los valores observados;
- iii) Las fuentes radiactivas deben ser lo más puntuales posible;
- iv) La rendija del colimador debe ser estrecha y en forma de cuña. Esto último para aumentar la sensibilidad de la medida.

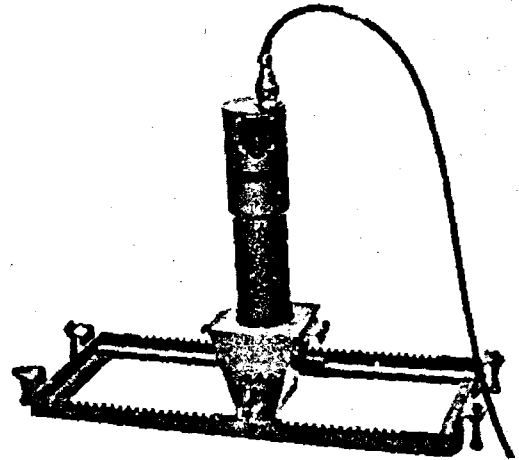


Figura 6. Colimador y dispositivo de desplazamiento utilizado para las medidas en la carretera

Basándose en la experiencia adquirida a través de estas experiencias de laboratorio se ha construido el equipo necesario para llevar a cabo las medidas en carretera en buenas condiciones experimentales. Este equipo (figura 6) consiste en un colimador de plomo, con rendija de colimación en forma de cuña, al cual se ajusta el contador de centelleo, y un soporte metálico para efectuar el desplazamiento de éste sobre la carretera con saltos de 5 en 5 mm. Este soporte se apoya sobre cuatro puntos de altura regulable por medio de unos tornillos, lo que permite la nivelación del mismo. Las experiencias realizadas en la carretera con estos dispositivos han dado resultados satisfactorios.

LOCALIZACIÓN DE PLACAS DE REFERENCIA PARA LA MEDIDA DEL ASIENTO SITUADAS DEBAJO DEL FIRME DE LA CARRETERA

La medida del asiento que se produce en el tiempo por la acción del tráfico en el firme de una carretera se realiza mediante unos dispositivos (figura 7) que permiten obtener una medida diferencial entre una placa metálica de referencia anclada sobre la explanada, inmediatamente debajo de la estructura de la carretera y otra placa situada en la superficie.

La placa de referencia ha de situarse y anclarse convenientemente antes de extender y construir las distintas capas del firme. Una vez verificada esta extensión, el firme tiene que ser perforado en la posición donde se encuentra la placa para realizar en ésta un taladro roscado, que sirve para la fijación del vástago, tal como se observa en la figura 7. Es, por tanto, necesario conocer exactamente la posición de la placa de hierro. Pero, con frecuencia, la placa se desliza de la posición en que se había colocado, al llevar a cabo la extensión del material que constituye el firme, siendo entonces muy difícil y laboriosa su localización.

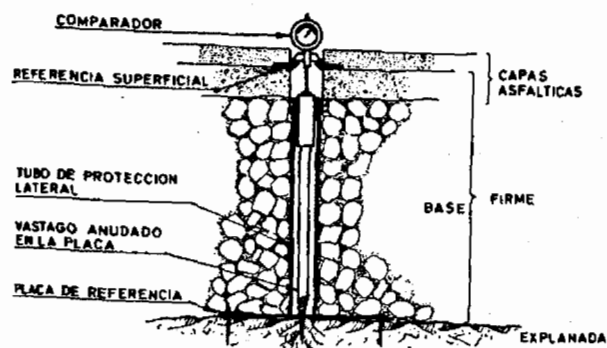


Figura 7. Esquema del dispositivo utilizado para la medida del asiento de firmes de carreteras

La localización de estas placas se ha llevado a cabo en la carretera fijando al centro de las mismas una fuente radiactiva puntual de unos 100 o 200 microcurios de ^{131}I . La fuente se ha preparado depositando sobre el centro de la placa el material radiactivo en solución líquida, y, después de evaporación a sequedad, éste se ha recubierto con una capa de adhesivo «Araldite». La posición de la placa marcada se ha determinado, después de construido el firme, utilizando un contador de centelleo, un colimador con orificio de colimación en forma de rendija y un soporte para desplazamiento de ambos, empleados para determinar la inclinación de los «Ventilgeber» (figura 6).

La posición exacta del centro de la placa se ha obtenido de la siguiente forma: se comienza por localizar *grosso modo* la posición de la placa. Con la rendija longitudinal del colimador en posición normal respecto al sentido del desplazamiento, se da una primera pasada determinando la posición de máxima velocidad de recuento. En este punto se traza una recta según el sentido de la rendija del colimador. Sobre esta recta y con la rendija de nuevo en posición normal al desplazamiento, se da una segunda pasada y en el punto de máxima velocidad de recuento se vuelve a trazar otra recta, según la dirección de la rendija. La intersección de ambas nos da el punto de la carretera bajo el que se encuentra el elemento radiactivo y, por tanto, el centro de la placa.

CONTROL DE LA DOSIFICACIÓN DEL LIGANTE EN RIEGOS ASFÁLTICOS CON TRAZADORES RADIATIVOS. ENSAYOS DE LABORATORIO

Los tratamientos superficiales constituyen las capas de rodadura bituminosa más sencillas que se pueden aplicar a la superficie de las carreteras. Como ya es sabido, los riegos consisten en la aplicación de una capa de ligante bituminoso y su recubrimiento por una capa de gravilla, que queda retenida por el ligante después de haberla apisonado. Para que el riego se comporte adecuadamente es por tanto necesario que, supuesta una buena elección de cantidad de ligante y cantidad y tamaño de la gravilla, la distribución de

ambos sobre la superficie de la carretera sea lo más uniforme posible.

Para ejecutar el riego en las mejores condiciones técnicas, se dispone de los camiones regadores y de los distribuidores mecánicos de gravilla. Es evidente que, aunque hay que cuidar ambas distribuciones, la del ligante tiene mayor importancia por no ser posible su corrección una vez ejecutado su riego.

Los camiones regadores o distribuidores se componen esencialmente de un tanque o cisterna de almacenamiento y calefacción, un sistema de alimentación de la barra donde van montados los difusores y del propio conjunto de barra y difusores.

En la uniformidad del riego hay que distinguir entre la distribución transversal y la longitudinal. La falta de uniformidad transversal se debe, aparte de un mal diseño de la barra, a un defecto de funcionamiento de la misma o de los difusores. La falta de uniformidad longitudinal tiene su origen en no mantener la velocidad del camión constante por descuido del conductor o mal funcionamiento del mecanismo de control de la misma.

El control de la ejecución de un buen riego debe comenzar por la inspección del camión regador para comprobar primeramente que el sistema de alimentación, bomba o compresor, funciona correctamente y que los manómetros y los cuenta-revoluciones marcan correctamente. A continuación, es preciso comprobar la barra y los difusores. Todos y cada uno de ellos deben dar el mismo caudal lo que se verifica recogiendo, en recipientes previamente tarados, las cantidades vertidas por cada uno de ellos en un tiempo determinado, trabajando todos ellos simultáneamente, es decir, en las mismas condiciones en que se va a efectuar el riego.

Verificado el camión regador, es el momento de comenzar con el verdadero control del riego. Los métodos utilizados hasta ahora para estudiar la uniformidad de distribución transversal y longitudinal se basan en la toma de muestras del ligante, durante el extendido del mismo, por medio de bandejas o tiras de papel, determinándose por simple pesada la cantidad de ligante recogido. Estos métodos son bastante complicados y no siempre pueden llevarse a cabo en condiciones experimentales adecuadas. Por este motivo, hemos tratado de poner a punto un método, basado en el empleo de ligante marcado con un núclido radiactivo, emisor de rayos gamma, que permita estudiar la distribución de éste *in situ*, de forma no destructiva y sin los inconvenientes de los métodos convencionales.

Método experimental

Descripción

La dosificación del ligante en riegos asfálticos se ha estudiado en el laboratorio, utilizando ligante al cual se ha añadido aceite de oliva marcado con ^{82}Br . El

aceite de oliva es soluble en el ligante, siendo fácil obtener una buena uniformidad de mezclado de ambos por simple agitación. Para llevar a cabo dicho estudio, se han simulado las condiciones de la carretera preparando probetas de la capa de macadam en recipientes metálicos circulares de 50 cm de diámetro y de 20 cm de profundidad (figura 8).

Sobre el macadam se han extendido capas de ligante radiactivo y gravilla, con dosificaciones variables. Las medidas de radiactividad se han efectuado con un contador de centelleo con cristal de INa(Tl) , conectado a un integrador. Con objeto de poder referir las medidas de radiactividad a una zona bien delimitada de la capa radiactiva, el contador de centelleo se ha provisto de un colimador de plomo, con el objeto de impedir que las radiaciones emitidas desde las zonas circundantes a la misma puedan influir en las medidas. Se emplearon dos tipos de colimadores construidos con ladrillos de plomo. En estos colimadores, que llamaremos *A* y *B*, las alturas de la protección de plomo eran de 12,5 y 5 cm, respectivamente. La superficie en ambos casos era un cuadrado de 5×5 cm. En estas condiciones, se ha determinado la velocidad de recuento registrada por el contador de centelleo en función de las dosificaciones de ligante radiactivo y gravilla, manteniendo fijo el contador de centelleo con su colimador y haciendo desplazar por debajo del mismo la probeta con la capa de ligante radiactivo para tomar medidas en diferentes puntos de ésta.

Las experiencias de laboratorio se han encaminado, principalmente, a estudiar las posibles causas de error que pueden afectar a las medidas y a encontrar, de acuerdo con éstas, las condiciones experimentales óptimas para llevar a cabo las medidas en la carretera. Se han estudiado las siguientes causas de error:

a) Influencia de la cantidad de gravilla. La gravilla puede afectar la medida por absorción de las radiaciones;

b) Influencia del espesor de la capa de ligante y gravilla. Puesto que la medida tiene que efectuarse en la carretera con el colimador de plomo descansando sobre la superficie de la misma, una variación en el espesor de la capa dará lugar a una modificación en la velocidad de recuento registrada por el contador, tanto mayor cuanto menor sea la distancia de éste alla capa;

c) Falta de homogeneidad en el marcado del ligante asfáltico;

d) Contribución al recuento de las radiaciones emitidas por las zonas circundantes al colimador de plomo en función del espesor de éste.

Estudio de la influencia de la gravilla en la medida

Para estudiar la influencia de la cantidad de gravilla añadida en la medida de la radiactividad de la capa

de ligante, depositada sobre la base de macadam, se han preparado muestras de dicha capa sobre las probetas circulares, en unas condiciones similares a como se efectúa en la carretera, es decir, con dos riegos de betún y dos adiciones de gravilla. Los riegos de betún se han realizado con betún fluidificado RC3, fluidificado a su vez con petróleo, al cual se había añadido previamente aceite de oliva radiactivo, para dar una actividad específica inicial de unos $250 \mu\text{C}/\text{kg}$. La homogeneidad de la mezcla se ha conseguido después de unos minutos de agitación, comprobándose mediante la medida de la actividad de pequeñas muestras tomadas en diferentes partes del recipiente donde se realizó el mezclado. La extensión del ligante se ha llevado a cabo utilizando una pistola pulverizadora. La cantidad total de betún radiactivo añadido en cada probeta se ha determinado, de una forma aproximada, por diferencia de pesadas de la pistola antes y después de efectuar dicha adición y ha oscilado entre 500 y $2000 \text{ g}/\text{m}^2$.

Con cada probeta se han realizado cuatro medidas de radiactividad: 1) después del primer riego de betún radiactivo; 2) después de la adición de la primera capa de gravilla; 3) después del segundo riego de betún; 4) después de adicionar la segunda capa de gravilla. En todos los casos, la gravilla se ha compactado fuertemente, tal como se hace en la carretera. Los resultados obtenidos a través de estas medidas están reflejados en la tabla 1, donde se indican las velocidades medias de recuento, en cuentas/segundo, registradas en cada caso por el contador de centelleo. Dichas velocidades de recuento, representan el valor medio de una serie de lecturas efectuadas a lo largo de dos diámetros perpendiculares de cada probeta con la geometría indicada en la figura 8. Todas estas medidas han sido corregidas en cuanto a tiempo, de acuerdo con la curva de desintegración del ^{82}Br , la cual se ha determinado paralelamente con una muestra de betún radiactivo. En la tabla se observa que la influencia de la adición de gravilla en la velocidad de recuento obtenida es prácticamente despreciable.

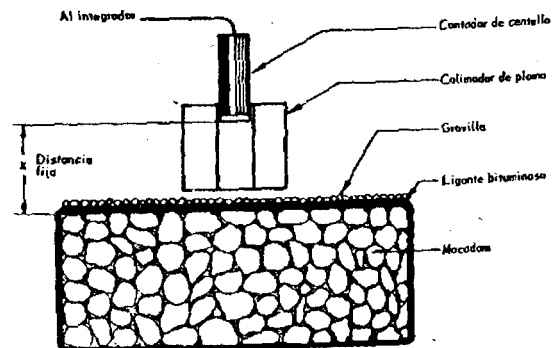


Figura 8. Esquema de la disposición experimental utilizada en las medidas de la dosificación del ligante

Estudio de la influencia del espesor de la capa radiactiva

Cuando el espesor de la capa compuesta por el betún radiactivo y la gravilla varía, debido a una desigual distribución de la gravilla o a una compactación no uniforme, resulta evidente que las velocidades de recuento registradas, para una misma dosificación del ligante cuando el colimador de plomo descansa sobre la superficie de la carretera, se modificarán en una magnitud tanto mayor cuanto menor sea la distancia del contador de centelleo a la superficie de la capa. Con capas más gruesas, el recuento registrado disminuye debido, en primer lugar, a aumentar entonces la distancia entre el punto medio de la capa y el contador de centelleo (variación según la inversa del cuadrado de la distancia) y, en segundo lugar, por aumentar la autoabsorción de las radiaciones emitidas por el ⁸²Br. No obstante, esta segunda causa puede considerarse casi despreciable frente a la primera, dada la elevada energía de las radiaciones emitidas por el ⁸²Br.

Para estudiar la magnitud del error que puede cometerse como consecuencia de la variación del espesor de la capa radiactiva, se ha hecho una serie de medidas en las cuales se han puesto bajo el contador de centelleo, a diferentes distancias, muestras de betún radiactivo de la misma actividad y de unos espesores variables, entre los límites máximos previsible de

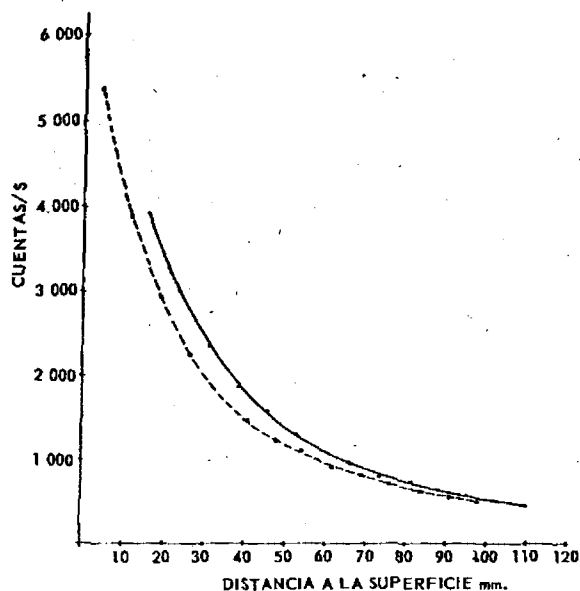


Figura 9. Variación de la velocidad de recuento en función de la distancia entre el contador de centelleo y la superficie de la capa radiactiva para dos valores del espesor de ésta. Línea de trazos: 2 cm; línea continua: 4 cm

variación del espesor de la capa en la carretera. Los resultados obtenidos a través de estas medidas están reflejados en la gráfica de la figura 9, donde se ha representado la velocidad de recuento en función de

Tabla 1. Valores medios de los recuentos efectuados con cada una de las probetas tras la sucesiva adición de capas de betún radiactivo y gravilla

N.º	Probeta		Cuentas/segundo				Variación (%)
	Orden	Riego Dosificación (kg/cm³)	Colimador	Ligante sólo	Ligante más gravilla		
1.	1.º	Ligante	A	316	328	3,7 (+)	
		Gravilla	B	1 866	1 858	0,4 (-)	
	2.º	Ligante	A	—	732	—	
		Gravilla	B	—	4 060	—	
2.	1.º	Ligante	A	452	488	7,7 (+)	
		Gravilla	B	2 647	2 733	3,2 (+)	
	2.º	Ligante	A	794	760	4,4 (-)	
		Gravilla	B	4 626	4 751	2,7 (+)	
3.	1.º	Ligante	A	426	454	6,4 (+)	
		Gravilla	B	2 291	2 521	9,6 (+)	
	2.º	Ligante	A	727	714	1,8 (-)	
		Gravilla	B	4 159	4 105	1,3 (-)	
4.	1.º	Ligante	A	498	505	1,4 (+)	
		Gravilla	B	2 689	2 846	5,7 (+)	
	2.º	Ligante	A	758	719	5,3 (-)	
		Gravilla	B	4 179	4 098	2,0 (-)	
5.	1.º	Ligante	A	474	501	5,5 (+)	
		Gravilla	B	2 628	2 696	2,6 (+)	
	2.º	Ligante	A	737	737	0,0 (-)	
		Gravilla	B	4 213	4 300	2,0 (+)	

la distancia entre el contador de centelleo y la superficie de la capa radiactiva, para un cambio del espesor de éste de 2 a 4 centímetros. Se observa cómo el error disminuye a medida que se hace mayor la distancia. No obstante, ésta es la causa de error más importante a que está sujeto el método, pero puede subsanarse, en una buena extensión, si los valores de las dosificaciones de betún se hacen referir a una superficie grande de capa (por ejemplo, 1 m² o más), tomando medidas en una gran cantidad de puntos y determinando el valor medio de estas medidas, tal como se indicará más adelante al hablar del método propuesto para las medidas en carretera.

Medidas efectuadas con cantidades variables de betún radiactivo

Debido a la imposibilidad de poder conocer, de una forma exacta, la cantidad de betún radiactivo añadido a las probetas cuando dicha adición es realizada con la pistola pulverizadora, el estudio de la variación de la velocidad de recuento registrada por el contador en función de dicha cantidad de betún se ha llevado a cabo colocando sobre las probetas de macadam una bandeja metálica, en la que se han hecho adiciones sucesivas de pequeñas cantidades de betún. Después de cada adición se ha medido la radiactividad de la capa en trece puntos de la misma, distribuidos uniformemente. Los resultados obtenidos están indicados en la figura 10, donde se representa el valor medio de las trece medidas efectuadas después de cada adición de betún en función de la cantidad total de betún de la capa en g/m². Dichos resultados indican claramente la existencia de una proporcionalidad entre la velocidad de recuento y la cantidad de betún, como era de esperar.

Por último, con la bandeja llena de betún, en una cantidad equivalente a 4 000 g/m² se ha adicionado una cierta cantidad de gravilla, correspondiente a una dosificación de 20 kg/m² y se ha repetido el recuento,

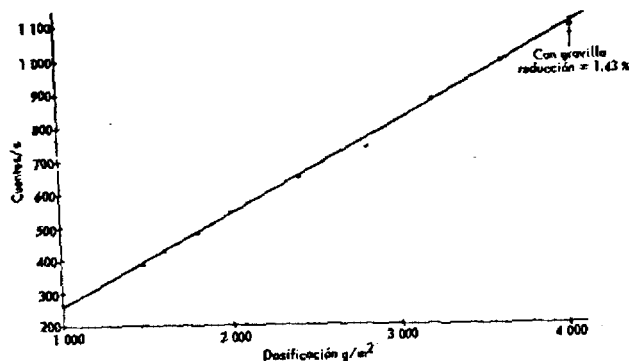


Figura 10. Curva de calibración que representa la velocidad media de recuento en función de la dosificación del ligante. Obsérvese la pequeña influencia que tiene la adición de la gravilla

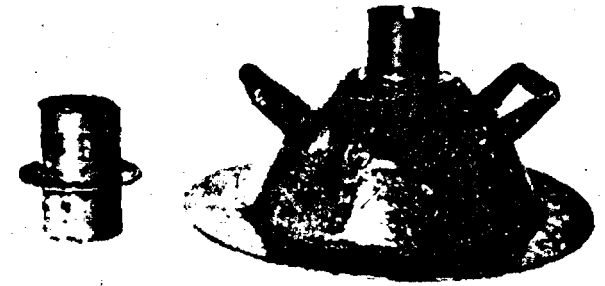


Figura 11. Fotografía del colimador para la medida de la dosificación de ligante en carretera

en los trece puntos citados. El resultado indicó que el recuento medio obtenido después de la adición de gravilla fué sólo de 1,43 % menor que sin dicha gravilla. Esta variación de recuento, como era de esperar después de las medidas descritas más arriba, es tan pequeña que se encuentra dentro de las desviaciones estadísticas propias de estas medidas.

Método propuesto para las medidas de dosificación en la carretera

Dado el gran volumen de ligante que se maneja corrientemente en los riegos asfálticos, las determinaciones en la carretera deben efectuarse en condiciones que permitan un marcado del ligante con la mínima cantidad de trazador radiactivo. Por este motivo, las medidas de radiactividad deben realizarse con una eficacia de recuento lo más elevada posible, para que los errores cometidos por la estadística de recuento sean pequeños. Esto se consigue si se cumplen las siguientes condiciones:

- El cristal de centelleo de INa activado con Tl que se utilice debe ser de gran tamaño;
- El colimador de plomo debe poseer una gran apertura a fin de que la superficie de capa radiactiva vista por el contador de centelleo sea grande;
- La distancia del contador de centelleo a la superficie radiactiva debe ser lo más pequeña posible. Por otro lado, según se ha demostrado más arriba, la influencia de las diferencias de espesor de la capa radiactiva es menor cuanto mayor es la distancia anterior. El compromiso se resuelve empleando en la práctica distancias entre 4 y 8 centímetros.

Teniendo en cuenta estas consideraciones, se ha construido un colimador de plomo (figura 11) de características adecuadas para su utilización en la carretera. Este colimador tiene interiormente forma de tronco de cono y la superficie de capa radiactiva que abarca, colocado sobre la carretera, es de 314 cm².

Utilizando este colimador y un cristal de centelleo de 2×2 pulgadas, las medidas de dosificación de ligantes asfálticos pueden llevarse a cabo con una actividad específica de ligante inferior a $0,2 \mu\text{c}/\text{kg}$. El calibrado del contador de centelleo se lleva a cabo simulando la capa asfáltica por medio de una caja metálica de forma

circular que se deposita sobre el macadam, una vez llena del ligante marcado.

BIBLIOGRAFÍA

1. Glötzi, F., *Der Bauingenieur*, 33, 190-195 (1958).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/497 Spain

Some applications of radioactive tracers in civil engineering

By M. del Val et al.

As part of a programme of collaboration between the Junta de Energía Nuclear and the Centro de Estudios y Experimentación de Obras Públicas, Spain, to solve certain problems relating to the study and control of road surfacing, some tracer experiments have been carried out as follows.

Location of buried strain-gauges ("Ventilgeber")

Using two small iodine-131 sources, securely fixed to the "Ventilgeber" elastic chamber, it is possible to determine its inclination to the main tension axis (road axis), while inserted in concrete slabs in the road. The inclination has a great influence upon the strain measurements in concrete, so that its determination is of a great importance. Although the inclination of these devices is originally known, this can change while the concrete is being spread and distributed over the road surface.

Location of hidden metallic parts used to determine the settling of the road surface

In order to measure road settling, it is necessary to locate the centre of small rectangular metallic plates, which are placed under it prior to road surfacing. After the surface has been laid, a small rod, an essential part of the measuring device, must be screwed into each plate.

The location of the centre of the plate can be determined by applying a small radioactive source to it beforehand. A scintillation counter appropriately collimated is then used to find the centre.

Control of the rate of asphalt spraying for road surfacing

Several laboratory tests have been carried out to study the distribution of bituminous binders in the top surface layer. Uniformity in binder spraying is of great importance, since the ratio binder/gravel has a decisive influence upon the layer's performance.

A method has been developed that enables the determination of the above-mentioned uniformity to be made while the road is being sprayed. Binder labelled with (^{82}Br) brominated olive oil is used to determine the amount of binder per unit surface on the road by measuring its radioactivity with a scintillation detector which is appropriately collimated.

A/497 Espagne

Quelques applications des radioisotopes comme indicateurs dans les travaux publics

par M. del Val et al.

Dans le cadre d'un programme entrepris en collaboration par la Commission de l'énergie atomique et le Centre d'études et d'expérimentation des travaux publics du Ministère des travaux publics, des expériences ont été faites avec des radioindicateurs pour résoudre certains problèmes ayant trait à l'étude et au contrôle des revêtements de routes. Ces expériences ont été les suivantes:

Détermination de la position des appareils de mesure des tensions

A l'aide de deux sources radioactives à l'iode 131 fixées à des emplacements déterminés de la chambre élastique des appareils de mesure, on peut déterminer l'inclinaison de ces appareils par rapport à un plan perpendiculaire à l'axe principal des tensions (axe de la route), lorsqu'ils se trouvent à l'intérieur de la couche de béton recouvrant la route. La connaissance exacte de cette inclinaison est très importante parce qu'elle a une influence sur la mesure de la tension du béton. En effet, la position primitive des appareils de mesure est parfaitement connue, mais elle peut être modifiée au cours du coulage et de la mise en place du béton.

Localisation des pièces cachées servant à contrôler l'affaissement du revêtement des routes

Il faut localiser le centre des plaques métalliques rectangulaires placées à la base du revêtement d'une route en vue de mesurer l'affaissement éventuel de ce revêtement si l'on veut pouvoir fixer à ces plaques une pièce qui fait partie du dispositif de mesure de

l'assiette. On a pu le faire exactement en plaçant à ce centre une petite source radioactive et en déterminant sa position, depuis la surface de la route, à l'aide d'un compteur à scintillation et d'un collimateur appropriés.

Contrôle de l'épandage d'asphalte sur les routes

On a procédé à divers essais en laboratoire pour étudier la distribution du liant bitumeux dans la couche de roulement en asphalte déposé à la surface des routes. L'uniformité de l'épandage du liant a une grande importance, étant donné que les proportions relatives du liant et des gravillons ont une influence décisive sur le comportement de la couche de roulement. Les expériences de laboratoire ont permis de mettre au point une méthode pour vérifier cette uniformité sur la route: on ajoute et on mélange au liant, pour le marqueur, une quantité déterminée d'huile d'olive au brome 82.

On calcule la quantité de liant déposée sur la route par unité de surface en mesurant sa radioactivité avec un compteur à scintillation pourvu d'un collimateur spécial.

A/497 Испания

Некоторые применения меченых атомов в гражданском строительстве

М. дель Валь et al.

В качестве части общей программы работ Комиссии по атомной энергии Испании и Центра экспериментальных исследований для общественных работ с целью решения некоторых вопросов, касающихся изучения и контроля за состоянием поверхности дорог, были проведены эксперименты с использованием меченых атомов.

Эксперимент с зарытыми тензодатчиками

Используя два небольших источника J^{131} , надежно прикрепленных к эластичной камере тензодатчика, можно определять ее отклонение после того, как она установлена в бетонных плитах дороги, с учетом основной оси напря-

жения (оси дороги). Определение отклонения необходимо для измерения напряжения бетона, в связи с чем использованный метод имеет большое значение. Хотя первоначальное отклонение известно, оно может изменяться в процессе строительства, когда бетон разносится и распределяется по поверхности дороги.

Эксперимент по определению положения скрытых металлических частей, используемых для измерения осадки дорожного покрытия

Для того чтобы измерить осадку дорог, необходимо определить положение центра небольших прямоугольных металлических пластин, которые помещаются под поверхность дороги до ее настила. После настила поверхности в них необходимо ввинтить небольшие стержни, являющиеся важной частью измерительного прибора.

Местонахождение центра пластины может определяться с помощью прикрепленного к ней небольшого радиоактивного источника. После этого для определения центра пластины используется сцинтилляционный счетчик, коллимированный соответствующим образом.

Эксперимент по контролю скорости распространения асфальта по поверхности дороги

Были проведены лабораторные испытания метода контроля распространения битумных связывающих комплексов в верхней части поверхностного слоя. Равномерность распространения связывающего комплекса является весьма важным фактором, поскольку соотношение между связывающим комплексом и гравием оказывает решающее влияние на совершенство слоя.

Был разработан метод, позволяющий определять указанную равномерность в процессе нанесения асфальта на дорогу. Связывающий комплекс, меченный бромистым оливковым маслом ($Bг^{82}$), использовался для определения количества связывающего комплекса на единицу поверхности дороги путем измерения его радиоактивности с помощью сцинтилляционного детектора, коллимированного соответствующим образом.

Новые изотопы и систематика нуклидов

И. П. Селинов

ПЕРСПЕКТИВА ОТКРЫТИЯ НОВЫХ ИЗОТОПОВ И СИСТЕМАТИКА НУКЛИДОВ

При рассмотрении вопроса о новых применениях изотопов представляется уместным обсудить и возможность получения новых изотопов, так как некоторые из них могут оказаться полезными при решении различных научных и практических задач. Для успешности поисков новых нуклидов весьма существенно верное предсказание времени жизни и типа распада, позволяющие выбрать наилучшую методику исследования. Однако в связи с еще недостаточными сведениями о деталях структуры атомных ядер теория ядра не может надежно предсказать время жизни многих неизвестных нуклидов, особенно в области далеких трансурановых элементов, где трудно предсказать не только периоды полураспада, но и наметить область β -устойчивости изотонов.

Поэтому в докладе рассматривается также вопрос о принципах построения и закономерностях рациональной систематики нуклидов, на основе которой можно предсказать β -устойчивые изотопы трансактиноидов и время жизни некоторых еще не открытых изотопов уже известных элементов.

В настоящее время на карте изотонов много белых пятен, и в близком будущем, несомненно, можно ожидать открытия большого числа новых изотонов у известных и неизвестных элементов. Можно отметить, что уже открыты почти все β -радиоактивные изотопы, окаймляющие область стабильных нуклидов, и поэтому в будущем нельзя ожидать обнаружения новых стабильных изотонов. Все стабильные изотопы уже открыты. У известных радиоактивных элементов также открыты почти все β -устойчивые α -радиоактивные нуклиды. β -Радиоактивных нуклидов уже получено больше тысячи, но в будущем, несомненно, будет открыто еще много этих изотонов. Область β -радиоактивных нуклидов ограничивается со стороны β^- -радиоактивных изотонов мгновенно распадающимися нейтроноустойчивыми ядрами, а со стороны β^+ - и ϵ -радиоактивных изотонов — ядрами, обладающими протонной и двухпротонной радиоактивностью. Трудно провести точную границу области β - α -радиоактивных нуклидов, но по

приблизительному подсчету у известных элементов еще может быть открыто несколько тысяч новых β -радиоактивных изотонов.

Теоретические расчеты некоторых авторов показывают, что характерной особенностью многих новых β -радиоактивных нуклидов будет испускание из основного или возбужденного состояния нуклидов и α -частиц. С приближением к границе области β -радиоактивных изотонов у β^- -радиоактивных нуклидов будут, вероятно, найдены новые случаи испускания нейтрона после β -распада, а у нейтронодефицитных нуклидов наряду с α -распадом будет открыт ряд ядер с запаздывающей протонной радиоактивностью, уже найденной у Al^{25} и у ряда неидентифицированных изотопов различных элементов (а также, возможно, и с двухпротонной радиоактивностью).

Для открытия нуклидов, далеко расположенных от области β -устойчивости, надо изыскать новую методику их получения и регистрации. Как видно из таблицы изотонов, граница области известных β -радиоактивных изотонов довольно далеко отходит от стабильных изотонов у элементов Br, Kr, Rb и Sn, Sb, Te, J, Xe, Cs, так как эти нуклиды получаются при несимметричном делении урана и тория. Для получения некоторых новых β^- -радиоактивных изотонов, вероятно, можно будет использовать более симметричное деление ядер под действием частиц большей энергии. Универсальным же методом получения всех β^- -радиоактивных изотонов был бы нейтронный синтез этих нуклидов при облучении элементов мощным нейтронным потоком в сочетании с экспрессным методом идентификации короткоживущих нуклидов. До настоящего времени этот метод был применен только для открытия изотопов трансурановых элементов. Автором предложены эксперименты для обнаружения аналогичным способом новых относительно долгоживущих β^- -радиоактивных изотонов и у стабильных элементов (например, Ti^{52} и др.). Однако для получения более короткоживущих нуклидов нужно преодолеть большие трудности, связанные с их выделением и измерением.

Для нейтронодефицитных нуклидов этот метод нельзя использовать, для получения их применяется два других метода: облучение тяжелыми многозарядными ионами и расщепление ядер частицами большой энергии. Использо-

зование этих методов с применением электромагнитного разделения радиоизотопов и измерением их характеристик непосредственно после облучения позволит открыть большое число новых нуклидов. Намечены опыты в этом направлении с использованием специального сепаратора радиоизотопов, установленного непосредственно на пучке протонов большой энергии, и с применением методики исследования миллисекундных активностей, уже испытанной при изучении короткоживущих изомеров Ge^{73} , Te^{116} и др.

Большой интерес представляет задача открытия новых нуклидов ¹ еще неизвестных трансактинидных элементов с атомными номерами $Z > 103$. Возможно, что некоторые нейтронодефицитные изотопы удастся получить посредством облучения мишеней тяжелыми ионами. Но нейтроноизбыточное большинство β -устойчивых изотопов этих элементов можно получить только с использованием потоков нейтронов большей плотности, которые в принципе могут быть осуществлены различными способами. При проведении этих исследований могут оказаться полезными некоторые закономерности систематики нуклидов, рассмотренные в следующих разделах доклада.

Несомненно также, что наряду с поисками новых изотопов для теории ядра и для практических применений большое значение имеет проведение исследований по окончательной идентификации ряда известных нуклидов и более детальное изучение их характеристик и сечений ядерных реакций, по которым они образуются. Эти исследования очень облегчаются при использовании обогащенных изотопов. Из опыта работы автора и сотрудников по идентификации изотопов²⁻⁶ можно заключить, что успешное проведение исследований на обогащенных изотопах лимитируется в ряде случаев недостаточной химической и изотопной чистотой используемых материалов. Это обстоятельство следует учесть при разработке технологии производства обогащенных изотопов.

Для идентификации изотопов и поисков новых изотопов могут быть использованы как теоретические расчеты, так и некоторые закономерности систематики нуклидов. Так, например, периоды полураспада T у большинства аналогичных (по системе нуклидов) изотопов имеют близкие значения или изменяются с десятичной периодичностью⁷. Кроме того, значение T у изотопов одинаковой четности (по M и N) у одного и того же элемента закономерно уменьшается с удалением от области β -устойчивости⁸. Эта закономерность была, например, успешно использована автором с сотрудниками при открытии новых изотопов Sb , Te и других элементов²⁻⁶. Оказывается, что значение T у изомеров тоже подчиняется определенным периодическим закономерностям, что позволило, в частности, обнаружить⁵ изомер Sn^{113} . Используя эти закономерности в значе-

ниях T , а также данные по массам и другим свойствам, можно в большинстве случаев предсказать время жизни новых изотопов, расположенных вблизи уже известных нуклидов.

По мере расширения области известных изотопов будут раздвигаться и границы неизвестных нуклидов, для которых можно предсказать значение T и другие свойства.

Рассматриваемая ниже система нуклидов позволяет легко проследить закономерности в изменении свойств нуклидов, и потому ее удобно применять при поисках новых нуклидов. Кроме того, она дает компактную и наглядную сводку наиболее достоверных данных о свойствах изотопов и может быть широко использована как справочник при изучении и применении изотопов. Ее можно рекомендовать также в качестве учебного пособия, дающего представление о всем многообразии известных ядер как о единой системе нуклидов. В этой системе характеристики отдельных нуклидов (массовое число, тип превращения, время жизни и др.) легче понять и запомнить, так как более отчетливо видна связь их с общими закономерностями в свойствах ядер.

ПЕРИОДИЧЕСКАЯ СИСТЕМА НУКЛИДОВ

Отмечая, что основным путем для проникновения в глубь ядра является получение по возможности более точных экспериментальных данных об отдельных ядрах, автор модели ядерных оболочек Гепперт-Майер заметил: «Можно надеяться, что на таком пути выявятся многообразные корреляции и закономерности в этих данных, которые укажут какие-то элементарные законы, которым подчиняется строение ядра»⁹. Действительно, систематика свойств ядер, наиболее непосредственно связанных со структурой ядра: масс 2β -устойчивых изотопов и отношение числа нейтронов (N) и протонов (Z) в них — позволяет установить простые и отчетливые закономерности. Так как эти закономерности имеют периодический характер, то и основанная на них систематика изотопов может быть названа «периодической системой нуклидов». В настоящее время разработка систематики нуклидов представляется особо актуальной, так как «современное состояние ядерной физики очень похоже на состояние химии до создания квантовой механики»⁹, и для развития детальной теории ядра нужно выявить специфические особенности в массах, распространенностях, типах превращения, энергии распада, времени жизни, структуре уровней и других свойствах отдельных нуклидов и их взаимную связь в системе атомных ядер.

До описания этой системы надо упомянуть, что в связи с соблазнительной аналогией с периодической системой элементов в течение почти всей истории ядерной физики предлагались

многочисленные периодические системы атомных ядер. Однако они не получили признания и не нашли применения, так как в большинстве случаев были столь произвольными и претенциозными, что не способствовали разработке систематики нуклидов и приводили к дискредитации самой проблемы построения системы ядер. Поэтому возможно, что предложение еще одной периодической системы изотопов может быть встречено с некоторым предубеждением и недоверием.

Однако систематика полученных за последнее время значений масс и других свойств нуклидов показывает столь очевидные периодические закономерности, что вряд ли можно сомневаться в их истинности. При отсутствии данных о детальной структуре ядер степень достоверности рассматриваемой системы нуклидов определяется как отчетливостью и надежностью периодических закономерностей в свойствах изотопов, так и подтверждением предсказаний, которые из нее вытекают. Так как первый вариант этой системы уже содержащий эмпирическую закономерность в соотношении N и Z , определяющую число β -устойчивых изотопов, был опубликован еще в 1934 г., то представляется возможность проверить, оправдались ли сделанные тогда предсказания новых стабильных изотопов. Оказывается, что все предсказанные стабильные изотопы четных M , кроме долгоживущего Hf^{182} и Ge^{68} (не включенного в другую таблицу¹⁸), в дальнейшем были открыты:

Ag^{38} , Ca^{42} , Ti^{46} , Fe^{58} , Ni^{62} , Zr^{96} , Ru^{98} , Pd^{102} , $\text{Pd}^{104-106}$, Pd^{108} , Cd^{108} , Te^{120} , Ba^{132} , Ba^{134} , $\text{Sm}^{146-150}$, Sm^{152} , Gd^{152} , $\text{Gd}^{154-158}$, Gd^{160} , $\text{Dy}^{160-164}$, Er^{164} , $\text{Er}^{166-168}$, Er^{170} , $\text{Yb}^{170-174}$, Yb^{176} , $\text{Hf}^{176-180}$, W^{180} , Pt^{192} , $\text{Pt}^{194-198}$, Pt^{198} (см. работу¹⁷).

Таблица изотопов составлялась еще до открытия искусственной радиоактивности, поэтому в ней не могло быть учтено правило Матюха, и в связи с этим в ряде случаев в ней приводятся вместо одного два изобара $M^{\text{неч}}$. Вследствие этого предсказание изотопов $M^{\text{неч}}$ в таблице менее однозначно, чем изотопов $M^{\text{чет}}$. Во всех случаях подтвердилась также отмеченная в таблице меньшая распространенность нуклидов:

Ni^{62} , Pd^{102} , Cd^{108} , Te^{120} , Xe^{124} , $\text{Ba}^{132-134}$, Gd^{152} , Dy^{158} , Er^{164} , Yb^{170} , Hf^{176} , W^{180} , Os^{186} , Pt^{192} .

В этой работе, доложенной на семинаре в ЛФТИ в мае 1933 г., было отмечено (независимо от Эльзассера), что на протонно-нейтронной диаграмме наблюдаются особые числа нейтронов (20, 50 и 82), и было правильно предсказано, что «в отношении периода у (элемента) № 59 экспериментальных данных нет и следует ожидать здесь «клянка кривой» (энергии связи).

В более поздних таблицах^{7, 10, 12} в систему уже были включены изотопы радиоактивных

элементов и правильно предсказаны β -устойчивые изотопы урана и трансураниевых элементов:

Es^{253} , U^{238} , $\text{Pu}^{242, 244}$, Am^{243} , $\text{Cm}^{246-248}$, Cm^{250} , Bk^{247} , Cf^{248} , $\text{Cf}^{250-252}$, Cf^{254} , Fm^{252} , Fm^{254} .

Подтверждение всех этих предсказаний вряд ли можно считать случайным, и они свидетельствуют о правильности закономерностей системы нуклидов. Эти закономерности определяют следующие основные особенности системы (табл. 1, 2).

1. Из всего многообразия нуклидов выделяются изобары наименьшей массы, устойчивые как к одиночному, так и к двойному β -распаду, соответствующие нормальным энергетически наиболее выгодным сочетаниям N и Z в атомных ядрах.

2. С возрастанием M у 2β -устойчивых нуклидов наблюдается (после O^{16}) два типа чередования протонов и нейтронов: $2n2p$ и $4n2p$. Так как эти группы нуклидов в свободном состоянии образуют ядра атомов гелия He^4 и He^6 , то такую закономерность можно назвать «гелиевым» типом построения ядер. Резкое различие в числе изотопов у элементов с четными и нечетными атомными номерами обуславливается этой закономерностью.

3. В системе нуклидов 2β -устойчивые нуклиды разделены на периоды и полупериоды, заканчивающиеся на ядрах с «магическими» числами нейтронов, соответствующих заполнению нуклонных оболочек и подоболочек (в большинстве случаев это проявляется в изломах на кривой энергии связи пар нуклонов $M^{\text{чет}}$, распространенностях и других свойствах нуклидов).

4. Отношение $\Delta N/\Delta Z$ между нуклидами с $N \equiv \text{нп}$ (20, 50, 82, 116, 152), расположенными через $\Delta Z = 20$, увеличивается по весьма простому закону, позволяющему предсказать $N \equiv \text{нп}$ и строение плеяд 2β -устойчивых изотопов трансактинидов.

5. Периоды полураспада, энергии распадов и некоторые другие свойства β -радиоактивных нуклидов зависят от их положения в системе, и у аналогичных нуклидов (имеющих одинаковое число избыточных или недостающих нейтронов по отношению к крайним 2β -устойчивым изотомам) эти свойства в большинстве случаев периодически изменяются⁷.

В принципе только одна система нуклидов может отображать структуру атомных ядер, но подобно периодической системе Менделеева, которая может быть изображена в форме короткой, длинной и других видов таблиц, система нуклидов тоже может быть представлена в различных вариантах. Существенно только, чтобы в диаграмме были бы выделены 2β -устойчивые (и аналогичные) нуклиды, а также отмечена периодичность, связанная с ядрами с $N \equiv \text{нп}$.

Сравнение периодических систем нуклидов и химических элементов показывает, что у них

наблюдаются общие черты в связи с тем, что как оболочка атома, так и его ядро имеют оболочечное строение. Однако атомная оболочка и ядро состоят из разных частиц, между которыми действуют различные силы, и потому системы атомов и атомных ядер тоже по существу совершенно различны и не сводятся друг к другу. На основании периодической системы нуклидов можно предсказать ряд свойств изотопов еще неизвестных элементов с $Z > 103$, и поэтому открытие и изучение свойств β -устойчивых нуклидов этих элементов будет окончательной проверкой достоверности системы.

БЕТА-УСТОЙЧИВЫЕ ИЗОТОПЫ ТРАНСАКТИНИДОВ И ВОЗМОЖНОСТЬ ОБРАЗОВАНИЯ ИХ В КОСМОСЕ

При анализе новых путей применения радиоизотопов нельзя оставить без рассмотрения вопрос о возможности получения не только новых изотопов известных химических элементов, но и нуклидов трансактинидов. Если для синтеза трансактинидов будет открыт новый рентабельный метод получения их в количестве, пригодном для практического применения, то они могут быть использованы в качестве новых видов изотопных источников тепла. Необходимой предпосылкой для открытия и практического использования трансактинидов является существование у них относительно долгоживущих нуклидов. Периоды полураспада β -радиоактивных изотопов возрастают с приближением к области β -устойчивости⁸.

Аналогичная картина наблюдается в большинстве случаев и при спонтанном делении нуклидов. Поэтому для предсказания наиболее долгоживущих нуклидов нужно выяснить, какие изотопы трансактинидов будут β -устойчивыми. Уиллер и др. отмечали возможность приостановки у далеких трансуранов стремительного уменьшения периодов полураспада спонтанного деления, наблюдающегося пока у всех известных нуклидов. В последнее время Юхансоном было подсчитано, что периоды полураспада спонтанного деления у ряда изотопов трансактинидов будут, вероятно, порядка от 1 до 10 дней. При таком времени жизни уже есть возможность обнаружения новых элементов, например, при нейтронном синтезе их.

В дополнение к этим соображениям интересно привлечь данные систематики изотопов, которые, возможно, окажутся даже более надежными при предсказании β -устойчивых нуклидов, так как основываются на весьма простой и общей закономерности в соотношении $\Delta N/\Delta Z$. Согласно этой закономерности, в каждом одинаковом интервале с $\Delta Z = 20$ между нуклидами с Nm : ${}_{18}\text{Ar}_{30}^{48}$, ${}_{38}\text{Sr}_{50}^{88}$, ${}_{58}\text{Ce}_{82}^{140}$, ${}_{78}\text{Pt}_{110}^{188}$, ${}_{98}\text{Cf}_{118}^{250}$ — приращение числа нейтронов ΔN уве-

личивается на 2 ($50 - 20 = 30$, $82 - 50 = 32$, $116 - 82 = 34$, $152 - 116 = 36$) вследствие замены в «гелионном» построении 2β -устойчивых нуклидов одной гелиогруппы $2n2p$ на гелиогруппу $4n2p$, имеющую на два нейтрона больше. При этом $\Delta N/\Delta Z$ в этих периодах изотопов тоже увеличивается в простой последовательности $\Delta N/\Delta Z = 30 : 20 = 1,5$; $32 : 20 = 1,6$; $34 : 20 = 1,7$ и т. д. По этой закономерности можно ожидать, что между ${}_{98}\text{Cf}_{118}^{250}$ и нуклидом ${}_{118}\text{E} - \text{Em}_{190}^{298}$ с новым $Nm = 190$ $\Delta N/\Delta Z$ будет равняться 1,9. Следовательно, в этом интервале β -устойчивых нуклидов будет только одна (последняя) гелиогруппа $2n2p$ (α); число α -группа в «гелионном» чередовании n и p — можно подсчитать по формуле

$$N = \frac{3\Delta Z - \Delta M}{2} = \frac{3(118 - 98) - (308 - 250)}{2} = \frac{60 - 58}{2} = 1.$$

Наиболее вероятно, что завершение построения этой единственной α -группы произойдет через $\Delta Z = 10$ после ${}_{98}\text{Cf}^{250}$ у нуклида ${}_{108}\text{E} - \text{Os}^{278}$, аналогично тому, как это наблюдается у нуклидов в предыдущих полупериодах, отстоящих друг от друга тоже на $\Delta Z = 10$: ${}_{78}\text{Pt}^{194}$, ${}_{58}\text{Ra}^{222}$, ${}_{38}\text{Cf}^{250}$ (табл. 3). Согласно этой закономерности, у всех трансактинидных элементов четных атомных номеров с $Z = 104 \div 118$ будет по три β -устойчивых нуклида $M^{\text{чет}}$ (в соответствии с гелионным построением типа $4n2p$) и только у элемента 106 или альтернативно у 108 будет два β -устойчивых нуклида $M^{\text{чет}}$: $\text{E} - \text{W}^{272}$, $\text{E} - \text{W}^{274}$ или $\text{E} - \text{Os}^{278}$, $\text{E} - \text{Os}^{280}$ (согласно построению $2n2p$). Надо заметить, что полученные на основании этой закономерности значения M β -устойчивых и относительно долгоживущих нуклидов несколько меньше значений¹³ вычисленных из экстраполированной формулы масс и других соображений (Fm^{262} , $\text{E} - \text{Yb}^{265, 268}$, $\text{Lw}^{268-267}$, $\text{E} - \text{Hf}^{271, 274, 276}$, $\text{E} - \text{Re}^{279, 281}$, $\text{E} - \text{Os}^{281, 283, 286}$, $\text{E} - \text{Ir}^{285}$, $\text{E} - \text{Ir}^{287, 292}$, $\text{E} - \text{Pt}^{289}$).

Согласно рассматриваемой системе, все эти нуклиды не являются β -устойчивыми и потому, вероятно, не будут иметь максимальных периодов полураспада. В частности, у лауренсия наибольшее значение T будет⁷ у Lw^{274} , а β -устойчивым изотопом будет Lw^{265} , у элемента 109 β -устойчивым изотопом будет ${}_{109}\text{E} - \text{Ir}^{281}$, а ${}_{109}\text{E} - \text{Ir}^{285, 287, 292}$ должны быть сравнительно короткоживущими β -радиоактивными изотопами. Можно ожидать, что значения M у 2β -устойчивых нуклидов, полученные на основе периодической системы изотопов, подтвердятся, как подтвердились и все предсказанные автором в 1948—1950 гг.¹² β -устойчивые изотопы у элементов с $Z = 92 \div 100$ (кроме Bk^{249}). Все (кроме Cf^{250}) β -устойчивые изотопы элементов с $Z = 101 \div 106$, приведенные в этой работе, помещены и в таблице Г. Сиборга¹.

Для оценки времени жизни трансформированных нуклидов весьма существенно также предсказание новых магических чисел нейтронов. Весьма вероятно, что после еще неизвестного нуклида с Nm , завершающего V период в системе изотопов, можно ожидать такого же резкого уменьшения энергии связи и времени жизни нуклидов, как и после аналогичного нуклида Pb^{208} с $Nm = 126$, на котором заканчивается IV период. Если предположить, что в V периоде системы изотопов такое же число элементов, как и в предыдущем IV периоде, то есть $\Delta Z = 24$, то этот период будет заканчиваться, вероятно, на нуклиде ${}_{106}E-W^{274}$ с $Nm = 168$. В этом случае, например, изотопы ${}_{108}E-Os^{277, 279, 281}$, как и аналогичные им $Po^{211, 213, 215}$, будут иметь очень маленькое значение T_{α} , а также, вероятно, и значительно меньшую величину $T_{дел}$ (чем $T_{дел}$, полученное без учета этой возможности).

Для изучения строения ядра фундаментальное значение имеет выяснение величины V (незаконченного) периода в системе изотопов. Было бы очень ценным, если бы этот вопрос можно было решить в результате осуществления программы поисков новых трансуранических элементов.

В новом VI периоде системы изотопов возможно увеличение T у β -устойчивых изотопов элементов с $Z = 114 \div 118$, аналогично тому, как это имеет место в предыдущем периоде у элементов с $Z = 90 \div 94$. Вероятно, эти нуклиды будут иметь и наибольшие периоды спонтанного деления. Таким образом, можно предположить, что в области β -устойчивых нуклидов с $Z = 106$ и $Z = 114 \div 118$ существуют островки повышенной устойчивости с относительно большими T .

Поскольку экспериментально проверить эти предположения еще нельзя, интересно выяснить, нет ли данных о возможности образования этих нуклидов при нуклеогенезисе трансуранических элементов во Вселенной. Если исходить из гипотезы образования нуклидов трансуранических элементов при дифференции нейтронных ядер звезд (или при быстром нейтронном синтезе элементов при вспышках сверхновых звезд), то можно ожидать, что при этом будут преимущественно образовываться и сохраняться эти «островные» долгоживущие нуклиды с числом нейтронов в ядрах, близким к Nm . Так как у этих нуклидов спонтанное деление должно преобладать над другими типами превращений, то при их распаде будут возникать в основном стабильные продукты β -распада осколков деления. Добавление их к «незащищенным» изотопам ряда элементов приведет к увеличению количества этих нуклидов и соответственно к аномально малой распространенности других нуклидов, защищенных от продуктов β -распада их изобарами с меньшими атомными номерами¹⁰. Оказывается, что действительно у некоторых 2β -устойчивых нукли-

дов $M^{чет}$ наблюдается загадочно малая распространенность по сравнению с соседними «незащищенными» изотопами $M^{неч}$.

Te^{124} (4,61%) и Te^{125} (7%); Xe^{128} (1,9%), Xe^{130} (4%) и Xe^{129} (26,5%); Xe^{131} (21,2%), Sm^{148} (11,3%), Sm^{150} (7,5%) и Sm^{147} (15%); Sm^{149} (13,8%), Cd^{154} (2,15%) и Cd^{155} (14,7%); Dy^{160} (2,3%) и Dy^{161} (18,9%); Yb^{170} (3%) и Yb^{171} (14,3%).

Между тем, согласно четко выраженным закономерностям в распространенностях изотопов, наглядно видных в диаграмме, составленной автором¹⁰, и в ее новом, улучшенном варианте¹¹, у 2β -устойчивых изотопов $M^{чет}$ должна быть такая же (или несколько большая) распространенность, как и у соседних с ними изотопов $M^{неч}$. Например, Sn^{116} (14,2%), Sn^{118} (24%) и Sn^{117} (7,6%), Sn^{119} (8,6%).

Как было показано в докладе автора на Второй Женевской конференции¹⁰, эту и другие аномалии в распространенности изотопов Te , Xe и Sm можно объяснить только добавлением продуктов β -распада осколков деления трансуранических элементов. В этой работе было предположено также, что аномалия в распространенности изотопов этих элементов обусловлена делением Cf^{254} , у которого, согласно имевшимся тогда данным, экспонента распада спонтанного деления совпадала с экспонентой уменьшения светимости сверхновых звезд типа I ($T = 55$ дней). Однако проведенные недавно более точные измерения показали, что у Cf^{254} $T = 60,5$ дня¹⁴, и поэтому экспоненциальное уменьшение светимости звезды должно быть обусловлено суммарной кривой распада Cf^{254} и более короткоживущего нуклида или же делением более далеких трансуранических нуклидов. Если измерения¹⁴ выходов осколков деления Cf^{254} покажут, что выход менее распространенных Xe^{134} и Xe^{136} больше, чем более распространенного Xe^{132} , то это будет означать, что аномалия в распространенности изотопов Te , Xe и Sm обусловлена не делением Cf^{254} , а делением более тяжелых нуклидов с $Z \approx 106$. Для объяснения же аномально малой распространенности 2β -устойчивых нуклидов $M^{чет}$ у лантанидов надо предположить, что они образуются при делении изотопов еще более тяжелых элементов с $Z \approx 114 \div 118$.

Из кривой распространенности элементов, построенной А. П. Виноградовым¹⁵ на основании наиболее новых данных по химическому составу хондритов (вероятно, наиболее близкому к первичной распространенности атомных ядер), и из кривой нуклидных распространенностей¹⁰ видно, что у лантанидов наблюдается отчетливо выраженный максимум на изотопах ${}_{66}Dy^{164}$, ${}_{67}Ho^{165}$, ${}_{68}Er^{166}$. Если предположить, что эти нуклиды соответствуют максимальному выходу осколков тяжелой компоненты деления, а максимум выходов осколков легкой компоненты расположен в области Ba^{138} , La^{139} и

Таблица 2

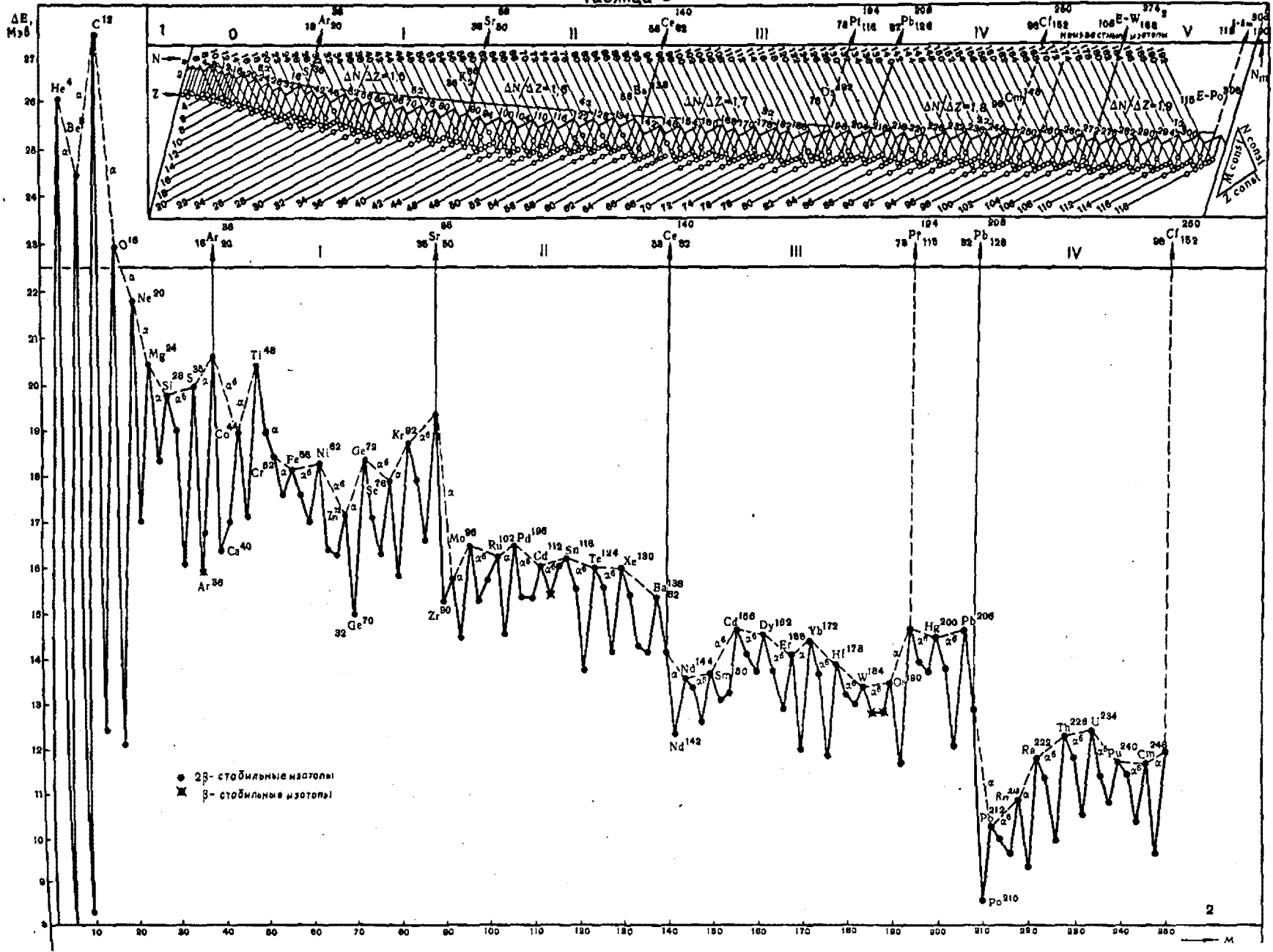


Таблица 3

ПЕРИОДИЧЕСКАЯ СИСТЕМА ХИМИЧЕСКИХ ЭЛЕМЕНТОВ
Д. И. МЕНДЕЛЕЕВА

Гр.	Число элементов	Символ	Обозначение	Положение в периодической таблице	Ряд	I																			VII	
						II																			VIII	
						III																			IX	
1	2	K	I	1	1	ВОДОРОД																			Гелий	
2	8	L	II	2	2	ЛИТИЙ	4	БЕРИЛЛИЙ	5	БОР	6	УГЛЕРОД	7	АЗОТ	8	КИСЛОРОД	9	ФТОР	10	НЕОН						
3	8	M	III	3	3	НАТРИЙ	12	МАГНИЙ	13	АЛЮМИНИЙ	14	КРЕМНИЙ	15	ФОСФОР	16	СЕРА	17	ХЛОР	18	АРГОН						
4	18	N	IV	4	4	КАЛИЙ	20	КАЛЬЦИЙ	21	СКАНДИЙ	22	ТИТАН	23	ВАНАДИЙ	24	ХРОМ	25	МАРГАНЕЦ	26	ЖЕЛЕЗО						
5	18	O	V	5	5	ЦЕЗЬ	28	ЦИНК	30	ГАЛМИЙ	32	GERMANIUM	33	мышьяк	34	селен	35	БРЮМ	36	КРИПТОН						
6	32	P	VI	6	6	РУБИДИЙ	38	СТРОНЦИЙ	39	ИТРИЙ	40	ЦИРКОНИЙ	41	НИОБИЙ	42	МОЛИБДЕН	43	ТЕХНЕЦИЙ	44	РУДИЙ						
7	32	Q	VII	7	7	СЕРЕБРЯНО	47	КАДАМИЙ	48	ИНДИЙ	50	ОЛОВО	51	СВЯЩЕНА	52	ТЕЛУРИЙ	53	ПОЛИОН	54	КСЕНОН						
8	32	R	VIII	8	8	ЦЕЗЬ	56	БАРИЙ	57	ЛАНТАНОИДЫ	58	ГАФНИЙ	59	ТАНТАЛ	60	ВОЛЬФРАМ	61	РЕЙНИЙ	62	ОСМИЙ						
9	32	S	IX	9	9	ЗОЛОТО	79	РТУТЬ	80	ТАЛАНД	82	СВИНЦ	83	БИСМУТ	84	ПОЛОНИЙ	85	АСТАТИН	86	ЭКАМАНИЙ						
10	32	T	X	10	10	Франций	87	РАДИЙ	88	АКТИНИЙ	89	ЭКАНИЙ	90	ЭКАТАНТАЛ	91	ЭКАВОЛЬФРАМ	92	ЭКАРЕЙНИЙ	93	ЭКАОСМИЙ						
11	32	U	XI	11	11	ЭКАЗОЛОТО	111	ЭКАРТУТЬ	112	ЭКАТАЛАНД	113	ЭКАСВИНЦ	114	ЭКАБИСМУТ	115	ЭКАПОЛОНИЙ	116	ЭКААСТАТИН	117	ЭКАЭКАМАНИЙ						
		PERIODIC TABLE				E-Au		E-Hg		E-Tl		E-Pb		E-Bi		E-Po		E-At		E-Em						
PERIODIC TABLE	54	ЖЕЛЕЗО	26	КОБАЛЬТ	27	НИКЕЛЬ	28	136, 136	ЦЕРИЙ	58	ПРОЗЕРДИЙ	59	НЕОДИМ	60	ПРИМАТАЛ	61	САМАРИЙ	62	ЕВРОПИЙ	63	ГАДОЛИНИЙ					
	56-58	Fe	59	Co	60-62	Ni	29	140, 142	Ce	58	P	59	Nd	60	Pm	61	Sm	62	Eu	63	Gd					
	86	РУТИЛИЙ	44	РОДИЙ	45	ПАЛАДИЙ	46	159	Tb	65	Dy	66	Hb	67	Er	68	Tu	69	Yb	70	Lu					
	104	Os	101, 107	Rh	102, 106, 108	Pd	106, 4	159	Tb	65	Dy	66	Hb	67	Er	68	Tu	69	Yb	70	Lu					
184	ОСМИЙ	76	ИРИДИЙ	77	ПЛАТИНА	78	230, 230	Th	90	Pa	91	U	92	Np	93	Pu	94	Am	95	Cm						
186-190	Os	191, 193	Ir	194, 195, 196	Pt	195, 09	230, 230	Th	90	Pa	91	U	92	Np	93	Pu	94	Am	95	Cm						
278	ЭКАОСМИЙ	108	ЭКАИРИДИЙ	109	ЭКАПЛАТИНА	110	247	Bk	97	Cf	98	Es	99	Fm	100	Md	101	(No)	102	Lw						
278	E-Os	108	E-Ir	109	E-Pt	110	247	Bk	97	Cf	98	Es	99	Fm	100	Md	101	(No)	102	Lw						

SESSION 4.2 P/583 I. P. SELINOV

Ce^{140} с $Nm = 82$, то оказывается, что эти компоненты осколков могут получиться, например, при делении, вероятно, долгоживущего аналога Th^{232} нуклида ${}_{116}E-Po^{306} \rightarrow {}_{88}Ce^{140} + {}_{88}Ce^{164} + 2n$ (Ce^{164} в результате цепочки β^- -распадов превращается в стабильный нуклид Dy^{164}). Конечно, при делении ${}_{116}E-Po^{306}$ должны образоваться и другие осколки тяжелой и легкой компоненты.

Из кривой нуклидных распространенностей¹⁰ видно, что максимум на Ba^{138} , La^{139} и Ce^{140} значительно больше максимума на Dy^{164} , Ho^{165} и Er^{166} . Большая распространенность нуклидов с $Nm = 82$ может быть объяснена дополнительным вкладом в распространенность этих нуклидов осколков деления легких трансактинидов с $Z \approx 106$, имеющих меньше M и потому не дающих тяжелой компоненты осколков с $M = 152 \div 172$. Полученные недавно данные¹⁴ показывают, что долина между двумя максимумами на кривой выходов осколков с увеличением M и Z делящегося нуклида постепенно повышается и более легкая компонента приближается к компоненте с максимумом выходов осколков на нуклидах с $Nm = 82$. Простая экстраполяция этого приближения легкой компоненты осколков к более тяжелой показывает, что у нуклидов с $M \approx 270 \div 280$ и $Z \approx 106 \div 108$ легкая компонента сольется с тяжелой и будет очень интересный случай симметричного спонтанного деления ядер. Это явление объясняется тем, что специфические особенности, связанные с концом периода в системе изотопов и завершением нуклонной оболочки, наиболее отчетливо проявляются у нуклидов с $Nm = 82$. Поэтому при делении различных ядер тоже сохраняется сердцевина ядра, соответствующая этой наиболее ярко выраженной нуклонной оболочке, и компонента осколков, соответствующая $Nm = 82$, остается на месте, несмотря на увеличение M и Z делящегося ядра. Другая компонента осколков сначала приближается к компоненте, соответствующей нуклидам с $Nm = 82$, потом сливается с ней (при $Z \approx 106$), а затем переходит в область тяжелых лантанидов (при $Z \approx 116$).

Таким образом, рассмотрение аномалий в распространенностях изотопов лантанидов, по-видимому, показывает, что при нуклеогенезисе химических элементов в космосе, вероятно, образуются и «островные» относительно долгоживущие изотопы трансактинидов. Эти данные являются дополнительным доводом в пользу гипотезы о существовании относительно долгоживущих изотопов трансактинидов и позволяют надеяться на успех в исследованиях по синтезу новых трансактинидных элементов. Изучение этих элементов будет иметь большое теоретическое значение, так как послужит проверкой рассмотренных выше предположений о β^- -устойчивых изотопах трансактинидов, новых значениях Nm и симметричном спонтанном делении. Любопытно, что для некоторых нейтро-

дефицитных нуклидов можно допустить и возможность безнейтронного симметричного спонтанного деления с образованием сразу осколков стабильных изотопов с Nm (например, при делении ${}_{108}E-Os^{272} \rightarrow {}_{254}Xe^{136}$). Это было бы справедливо, если энергия дефекта массы делящегося ядра полностью реализуется в кинетическую энергию этих осколков. Существование таких безнейтронных, спонтанно делящихся нуклидов скорее всего останется в области фантазии, но этот пример показывает, что с открытием трансактинидных элементов, возможно, будут найдены и новые, быть может, неожиданные свойства и способы их применения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Г. С и Б о р г. Новые трансурановые элементы. Наука и человечество. М., 1963.
2. И. П. Селинов и др. Атомная энергия, 7, вып. 6, 547 (1959).
3. И. П. Селинов и др. Атомная энергия, 5, вып. 6, 660 (1958).
4. И. П. Селинов и др. ЖЭТФ, 38, вып. 5, 1654 (1960).
5. И. П. Селинов, В. Л. Чихладзе. ЖЭТФ, 38, вып. 3, 1012 (1960).
6. Е. Е. Барони и др. Труды Всесоюзной конференции по применению радиоактивных и стабильных изотопов в народном хозяйстве и науке, 4—12 апреля 1957, стр. 195—202.
7. И. Селинов. Периодическая система изотопов (приложение к стенной таблице изотопов). М., Изд-во АН СССР, 1962.
8. И. Селинов. Атомное ядро. БСЭ, 3, 458 (1950).
9. M. Mayer. Nuclear Shell Structure. Modern Physics for the engineer, McGraw Hill, 1961.
10. И. П. Селинов. Труды Второй Международной конференции по мирному использованию атомной энергии, Женева, 1958, Доклады советских ученых, P/2032, Т. 1. М., Атомиздат, 1959.
11. И. Селинов. Атомные ядра. Атомиздат (в печати).
12. И. П. Селинов. Атомные ядра и ядерные превращения (таблицы по физике атомного ядра). М.—Л., Гостехиздат, 1951.
13. В. И. Гольданский. Новые элементы в периодической системе Д. И. Менделеева. М., Атомиздат, 1964.
14. R. Grandt. Spontaneous fission of some heavy isotopes (Rh. D. Thesis) UCRL-10481, 1962.
15. А. П. Виноградов. Геохимия, 4, 291 (1962).
16. И. Селинов. Периодическая система изотопов. ЖЭТФ, 4, 666 (1934).
17. I. Selinov. The Periodic System of Stable Isotopes and the Relation of the Mass and Charge of the Nuclei, Phys. Zs. d. Sowjetunion, Heft 1, 82 (1935).

ПРИЛОЖЕНИЕ

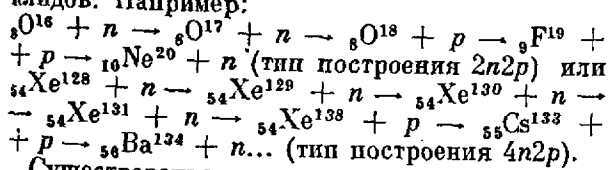
В приложении помещены таблицы, иллюстрирующие закономерности, рассмотренные в докладе.

В табл. 1 приведена система изотопов, состоящая из двух частей: изотопы $Z^{неч}$ и $Z^{чет}$.

При таком расположении в одной строчке будут находиться только нуклиды с одинаковой четностью по N и Z , и потому удобнее сравни-

вать значения T и другие свойства аналогичных нуклидов. Эти нуклиды можно охарактеризовать более однозначно, чем в предыдущих таблицах, числом избыточных ($+\beta$) или недостающих ($-\beta$) нейтронов по отношению к ближайшему 2β -устойчивому (или с наименьшей массой ядра) изотопу.

Из табл. 1 видно, что после ${}_8\text{O}^{16}$ все элементы $Z^{\text{неч}}$ имеют один (или два) β -устойчивых изотопа $M^{\text{неч}}$, а элементы $Z^{\text{чет}}$ больше двух изотопов (как $M^{\text{неч}}$, так и $M^{\text{чет}}$). Эта закономерность объясняется «гелионной» закономерностью в построении ядер 2β -устойчивых нуклидов. Например:



Существование у ряда элементов не одного, а двух 2β -устойчивых изотопа $Z^{\text{неч}}$ объясняется тем, что в этих местах системы энергетически почти одинаково вероятно построение ядер как по типу $2n2p$, так и по типу $4n2p$. С этой конкуренцией двух типов построения и связано отсутствие β -устойчивых изотопов у Tc и Pm, появление третьего стабильного изотопа (Sn^{116}) у олова и другие специфические особенности у ряда элементов.

Гелионная закономерность в чередовании n и p отчетливо проявляется на кривой энергии

связи пар нуклонов 2β -устойчивых нуклидов, помещенной на табл. 2. На этой кривой видно также, что в каждом периоде системы, заканчиваемся на нуклиде с Nm , равным 20, 50, 82, 126, в среднем одинакова энергия связи. На кривой видны также изломы, связанные с другими Nm . В табл. 2 помещена также протонно-нейтронная диаграмма, на которой отчетливо видна закономерность в чередовании типов построения $2n2p$ и $4n2p$, обуславливающая и закономерное увеличение $\Delta N/\Delta Z$.

В периодической системе Менделеева (табл. 3) приведены гипотетические значения M β -устойчивых изотопов элементов с $Z = 101 \div 118$.

Точкой около значений M обозначены β -устойчивые изотопы, превращающиеся с испусканием α -частиц или спонтанноделящиеся. Подчеркнуто значение M наиболее долгоживущего или наиболее распространенного изотопа. Звездочкой отмечена вычисленная по новым данным масса наиболее долгоживущего изотопа. Значения M 2β -устойчивых изотопов помещены в средней строчке и выделены более крупным шрифтом.

Дальнейшее изучение структуры атомных ядер и развитие теории на основе синтеза представлений о нуклонных ассоциациях и оболочках позволит выяснить природу периодических закономерностей системы и решить вопрос, существуют гелиогруппы только у легких ядер или у всех атомных ядер (возможно, в периферическом слое).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/583 USSR

New isotopes and the systematics of nuclides
by I. P. Selinov

The paper deals with two main topics:

- The periodic system of atomic nuclei; and
- The possibility of discovering new isotopes and making use of them in science and technology.

With regard to the first topic, the rational systematisation of nuclides reflects the regularities of the structure of atomic nuclei, systematises the properties of isotopes and facilitates the search for new ones.

Determination of a number of periodical regularities in the mass, mass numbers, abundance and other properties of isotopes has made it possible to construct a periodic system of atomic nuclei on the basis of the shell model of the nucleus.

The paper describes the helionic type of construction of 2β -stable nuclides and the concept of analogic isotopes.

An account is given of the proposed periodic system, and the basic sameness of different forms of the

nuclide system reflecting the same regularities in the construction of atomic nuclei is demonstrated.

Turning to the second topic, stable isotope mass numbers are predicted in the old variant of the author's periodic system of isotopes.

Radioactive nuclides are systematised and mass numbers of β -stable isotopes of the transuranic elements are predicted. The regularities in their half-lives provide the starting point in the search for new isotopes.

The possibility of discovering new long-lived isotopes that could be used as radiotracers (${}^{62}\text{Ti}$ and others) and in geological age determinations is demonstrated, and that of using some new fissile isotopes as compact neutron sources, particularly for activation analysis, is discussed.

The probability of the symmetric fission of β -stable isotopes of ekapolonium ($Z = 106$) and the possibility of the existence of neutronless nuclide sources of nuclear energy, which would be very useful for practical purposes, are reported.

The anomalies in the abundance and distribution of lanthanide isotopes are explained by the cosmic

occurrence of these isotopes as a result of the fission of superheavy nuclides with atomic numbers $Z = 106$ and 116 and magic numbers of neutrons. Proposals are made for increasing the half-lives of a number of isotopes of these translawrentian elements and for the possibilities of producing them artificially.

Lastly, the advantages to be gained from the organization of regular and prompt publication of international reference tables of isotopes and nuclear constants is emphasised.

A/583 URSS

Nouveaux isotopes et classification systématique des nucléides

par I. P. Sellinov

Le mémoire traite de deux sujets principaux:

a) La classification périodique des noyaux atomiques;

b) La possibilité de découvrir de nouveaux isotopes et de leur donner une application dans la science et la technique.

En ce qui concerne le premier sujet, la classification systématique et rationnelle des nucléides reflète les lois de la structure des noyaux atomiques, systématise les propriétés des isotopes et facilite la recherche de nouveaux isotopes.

La découverte d'une série de lois périodiques dans les masses, les nombres de masse, l'abondance et autres propriétés des isotopes permet d'établir une classification périodique des noyaux atomiques (sur la base du modèle en couches du noyau).

Le mémoire décrit la structure de type hélionique de deux nucléides bêta-stables et la notion d'isotopes analogues.

On décrit la classification des noyaux atomiques proposée et on montre l'identité de principe des différentes formes de classification des nucléides, reflétant les mêmes lois de la structure des noyaux atomiques.

En ce qui concerne le deuxième sujet, l'auteur prédit les nombres de masse des isotopes stables dans son ancienne version de la classification des isotopes.

On donne une classification des nucléides radioactifs et on prédit les nombres de masse des isotopes bêta-stables des éléments transuraniens. Les lois de la période de décroissance servent de point de départ pour la recherche de nouveaux radioisotopes.

On montre la possibilité de découvrir de nouveaux isotopes à longue vie utilisables en tant que traceurs isotopiques (^{62}Ti et autres) et pour la datation géologique, et celle d'employer certains nouveaux isotopes fissiles en tant que sources compactes de neutrons, en particulier pour l'analyse par activation.

On indique la probabilité d'une fission symétrique des isotopes bêta-stables de l'ekapolonium ($Z = 106$)

et la possibilité de l'existence de sources d'énergie nucléaire isotopiques sans neutrons, d'une grande utilité pratique.

L'auteur explique les anomalies dans la distribution des isotopes des lanthanides par la formation cosmique d'isotopes de ces éléments lors de la fission de nucléides très lourds, à numéros atomiques $Z = 106$ et 116 , et à nombres magiques de neutrons. Il propose d'accroître des périodes de décroissance d'une série d'isotopes de ces éléments translawrenciens et indique la possibilité de les obtenir artificiellement.

Enfin, le mémoire souligne l'opportunité d'organiser la publication régulière et rapide de tableaux de référence internationaux des isotopes et des constantes nucléaires.

A/583 URSS

Los nuevos isótopos y la sistematización de los núclidos

por I. P. Sellinov

Los dos temas principales de que se ocupa la memoria son:

a) El sistema periódico de los núcleos atómicos, y

b) La posibilidad de descubrir nuevos isótopos y aplicarlos en la ciencia y la técnica.

En cuanto al primer tema, la sistematización racional de los núclidos refleja las regularidades de la estructura de los núcleos atómicos, sistematiza las propiedades de los isótopos y facilita la búsqueda de isótopos nuevos.

La determinación de una serie de regularidades periódicas en las masas, los números de masa, en la abundancia y otras propiedades de los isótopos permite construir un sistema periódico de núcleos atómicos a base del modelo del núcleo en capas.

La memoria describe el tipo de construcción héliónica de los núclidos 2β -estables y el concepto de isótopos análogos.

Se expone el sistema propuesto de los núcleos atómicos y se demuestra la identidad fundamental de las diferentes formas del sistema de núclidos que reflejan las mismas regularidades en la construcción de los núcleos atómicos.

El cuanto al segundo tema, se hace la predicción de los números de masa de los isótopos estables en la variante antigua del sistema periódico de isótopos, propuesto por el autor.

Se sistematizan los núclidos radiactivos y los números de masa de los isótopos β -estables de los elementos transuránicos. Las regularidades en los períodos de semidesintegración sirven de base para la búsqueda de nuevos isótopos.

Se demuestra que es posible descubrir nuevos isótopos de larga vida, que puedan utilizarse como trazadores (^{62}Ti y otros) y para la determinación de

las edades geológicas. Se examina la posibilidad de emplear algunos nuevos isótopos fisibles como fuentes compactas de neutrones, en particular, para el análisis por activación.

Se cita la probabilidad de la fisión simétrica de los isótopos β -estables de ecapolonio ($Z=106$) y se considera la posibilidad de la existencia de núclidos que sean fuentes de energía nuclear sin emitir neutrones, muy útiles para los fines prácticos.

Se explica la anomalía en la abundancia y distribución de los isótopos de los plantánidos mediante

la aparición en el universo de isótopos de estos elementos a consecuencia de la fisión de núclidos superpesados con números atómicos $Z=106$ y 116 , y números mágicos de neutrones. Se hacen propuestas para aumentar los períodos de semidesintegración en varios isótopos de estos elementos trans-lauréncicos y para su posible obtención artificial.

Por último se subraya la conveniencia de organizar una publicación regular y rápida de tablas internacionales de referencia de isótopos y de constantes nucleares.

Contribution to the understanding of the natural evolution of petroleum: radiation effects on crude oils

By U. Colombo,* E. Denti,** G. Sironi* and E. Zimmer**

Ever since the results of the work carried out under the sponsorship of the American Petroleum Institute, Project No. 43c, were published [13, 15], geochemists and geologists have agreed on the conclusion that natural radioactivity from the radioactive components of sedimentary rocks plays only a negligible role in the genesis of petroleum hydrocarbons [16].

Earlier interest on this research had been promoted as a consequence of the hypothesis advanced in 1926 by Lind and Bardwell [10] that petroleum might originate, by radiation-induced reactions, from the organic matter buried in sediments. From a strictly qualitative point of view, this hypothesis was corroborated by several known facts, such as the association of trace uranium with the organic material of carbonaceous shales which allegedly were sources of petroleum [6, 9, 11], and the presence of helium in certain natural gases in basins where radioactive organic shales are also found [12]. However, quantitative data related primarily to the yield of hydrocarbon-producing radiolytic reactions, and other factors, such as the lack, in natural gases and crude oils, of two of the most important known products of the radiolysis of organic substances, namely hydrogen and olefins, led to the rejection of this interesting hypothesis. Although relatively inefficient in connection with the origin of oil, radiations may be of primary importance in the geochemical transformations which petroleum undergoes over geological periods. This justifies the need for more experimental work on the effects of ionizing radiations on hydrocarbons and on organic matter in sediments, under conditions resembling those which are known to take place in geological environments.

In a previous work [4], the authors have shown that the effects of radiations on hydrocarbons, and more generally on crude oils, should not be overlooked by organic geochemists aiming at a thorough understanding of the origin and evolution of petroleum.

* Geochemistry Department, G. Donegani Research Institute, Montecatini Co., Novara.

** Chemistry Department, SORIN Nuclear Research Centre, Saluggia (Vercelli).

Two distinct products resulted from the irradiation of hydrocarbons and crude oils, namely, a heavier and structurally complex liquid, rich in resins and asphaltenes, and a light gaseous material. Interesting and specific effects were detected, which were attributed to the presence of different sedimentary rocks and of water.

While in the first work attention was focused primarily on the gaseous products of the radiolysis, in the present paper a more detailed presentation of the effects of radiations on the structure and the composition of the liquid product will be given.

The aims of the present geochemical study are: (a) to reach a better understanding of the problem of the origin of asphaltenes and of asphaltic matter; and (b) to contribute to the characterization of organic matter in sediments.

The authors believe that, at least in some cases, asphalt may be the product of radiation damage on hydrocarbons and similar organic materials, prolonged over geological periods. On the other hand, if it is true that radiations may considerably alter relatively simple hydrocarbon systems with the formation of more complex compounds of a bituminous nature, the "source rock" character of many radioactive organic shales should be carefully evaluated and, at least in some cases, seriously questioned, since a substantial part of the organic matter found in such shales might be of an exogenous nature, and could represent an advanced stage of petroleum alteration.

EXPERIMENTAL

Materials: Four crude oils, three of which (Alanno, Ragusa and Gela) were from Italian fields and one from the Middle East (Mosul), were used for irradiation experiments. One of the Italian oils (Gela) is strongly asphaltic in nature and has an unusually high sulphur content. Sedimentary rocks used in the irradiation experiments were the following:

- (a) Siliceous sand from Torre del Lago (Pisa);
- (b) Limestone from Alanno (Abruzzi), and
- (c) Montmorillonitic clay (bentonite) from Ponza, Italy.

Table 1. Gaseous radiolytic products formed from 100 g of Gela crude oil, exposed to mixed reactor radiation

	Oil sample	Oil + sand sample	Oil + water-wet sand sample	Oil + limestone sample	Oil + water-wet limestone sample	Oil + clay sample	Oil + water-wet clay sample
Total dose (rad) . . .	1.04×10^8	1.04×10^8	1.04×10^8	1.04×10^8	1.04×10^8	1.04×10^8	1.04×10^8
Dose rate (rad/h) . . .	0.80×10^8	0.80×10^8	0.80×10^8	0.80×10^8	0.80×10^8	0.80×10^8	0.80×10^8
Total volume of gas (cm ³ at 0°C and 760 mm Hg) . . .	832	871	670	1 250	980	1 362	940
<i>Percentages:</i>							
H ₂	90.65	83.78	79.30	85.34	80.15	77.98	74.15
CH ₄	5.52	11.42	14.18	9.80	14.51	14.88	17.13
C ₂ H ₆	1.39	2.16	3.48	1.96	2.51	2.92	3.51
C ₃ H ₈	0.65	0.59	0.43	0.63	0.28	0.39	0.17
C ₂ H ₂	0.29	0.15	0.11	0.19	0.05	0.10	0.04
C ₃ H ₆	0.52	0.73	1.00	0.86	0.97	1.11	1.16
C ₄ H ₁₀	0.21	0.10	0.07	0.24	0.10	0.15	0.01
C ₄ H ₈	0.41	0.51	0.64	0.59	0.90	0.68	0.65
C ₅ H ₁₂	0.02	traces	0.01	traces	traces	0.03	traces
C ₅ H ₁₀	0.07	0.14	0.16	0.11	0.10	0.13	0.14
C ₄	traces	traces	0.04	traces	0.02	0.02	0.06
CO ₂	0.27	0.42	0.58	0.28	0.41	1.61	2.98

The analytical data pertaining to such rocks have been reported in a previous paper (4).

Radiation source and dosimetry: Irradiations were carried out in the 2 MW(th) swimming pool reactor of the Centro Ricerche Nucleari SORIN, Saluggia (Vercelli), Italy. The irradiations were performed at a dose rate of about 1×10^8 rad/h. The total doses absorbed by the samples were of the order of $1-10 \times 10^8$ rad; such doses are of the same order as those calculated for moderately radioactive organic shales (1-100 ppm uranium) over a geological period of 100-400 million years.

Reactor radiation dosimetry was carried out using gold monitors (thermal neutron flux), nickel foils (fast neutron flux) [2] and ferrous and cerium sulphate chemical dosimeters, giving the sum of the doses from gamma flux plus fast neutron flux. Measurements with cerium sulphate were made with the assumption that *G* values for electrons and recoil protons are approximately equal [1]. The results obtained were in good agreement with experimental data by French and Eggen [8].

Procedures: Irradiations were carried out either in sealed quartz phials or in an apparatus specially designed for the programmed withdrawal of gaseous radiolytic products. Procedures for the sample preparation and the irradiation apparatus have been described elsewhere [4].

Radiolysis gases were analysed by gas-chromatography (Perkin Elmer 154 D Vapor Fractometer, with thermistor detectors). For each liquid sample, the geochemical study was carried out by the same proce-

dure described in a previous paper [3]. The pentane-insoluble fractions (carbenes + asphaltenes) were studied by thin-layer chromatography [14], on a 300 μ thick silica-gel substrate (Merck G), the evolution being carried out using as solvent methylethylketone 8 n-heptane: methanol, 28: 70: 2. A Shandon TCL 2848 chamber was used, and the elution time was about 30 s. On the same fractions the fluorescence spectra (Beckman spectrophotometer DK 2, high pressure mercury vapor lamp) and infrared spectra (Perkin-Elmer spectrophotometer, Mod. 21) were obtained.

Oil fractions, before and after irradiation, were analysed by gas-chromatography (Perkin-Elmer 800, with a double SE-30 silicone gum rubber column and flame ionization detector) and by infrared spectrophotometry.

Crude oils irradiated in the presence of rocks with an apparatus designed for the programmed with-

Table 2. Ratio saturated: unsaturated gaseous hydrocarbons produced during radiolysis of Alanno, Ragusa and Gela crude oils

	Alanno crude oil	Ragusa crude oil	Gela crude oil
Total dose (rad)	2×10^8	1×10^8	1×10^8
In bulk	4.68	6.05	6.76
With sand	7.39	12.22	17.31
With water-wet sand	8.05	26.00	31.45
With limestone	5.92	10.27	12.56
With water-wet limestone	6.54	23.67	44.21
With clay	8.80	38.77	29.46
With water-wet clay	10.38	98.86	102.60

Table 3. Geochemical data on Ragusa crude oil, before and after irradiation

	Oil sample	Oil sample	Oil + sand sample	Oil + water-wet sand sample	Oil + limestone sample	Oil + water-wet limestone sample	Oil + clay sample	Oil + water-wet clay sample
Total dose (rad)	Unirradiated	0.85×10^9	1.04×10^9	1.04×10^9	0.85×10^9	1.04×10^9	0.85×10^9	1.04×10^9
(a) Geochemical analysis:								
API gravity	19.4	18.4	17.6	16.8	17.9	17.2	16.5	15.3
Sulphur %	2.43	2.42	2.42	2.41	2.43	2.42	2.42	2.41
Carbenes + asphaltenes %	12.24	14.00	15.88	17.28	16.36	18.54	18.12	21.19
Resins %	12.01	12.88	13.56	15.33	14.52	15.96	16.23	17.37
Oil fractions %	75.75	73.12	70.56	67.39	69.12	65.50	65.65	61.44
C:H ratio of oil fractions	7.01	7.05	7.12	7.28	7.16	7.31	7.29	7.38
Average molecular weight of oil fractions	396	402	408	413	410	416	416	423
(b) Sulphur in geochemical fractions:								
Carbenes + asphaltenes S %	6.36	6.39	6.48	6.53	6.52	6.56	6.57	6.58
Resins S %	4.23	4.26	4.28	4.34	4.33	4.39	4.35	4.40
Oil fractions S %	1.51	1.34	1.15	0.98	1.06	0.77	0.80	0.41
(c) Distribution of sulphur as % of total:								
S in carbenes + asphaltenes	32.02	36.97	42.52	45.03	43.87	50.25	49.17	57.84
S in resins	20.90	22.67	23.95	27.59	25.88	28.93	29.17	31.70
S in oil fractions	47.08	40.36	33.53	27.38	30.25	20.82	21.66	10.46

drawal of the gaseous radiolytic products were also studied thermogravimetrically (Stanton thermobalance, mass-flow), heating the sample under nitrogen to 1000 °C, with a thermal gradient of 6 °C/min.

RESULTS

Irradiation in phials: In Table 1 the analytical data of gaseous radiolytic products from the Gela crude

oil irradiated in bulk and in the presence of sedimentary rocks (dried or partially saturated with water), are shown. In Table 2 the ratio of saturated to unsaturated hydrocarbons in the radiolytic products is reported. At equal doses, of the order of 10^9 rads, this ratio increases in the order: crude oil of mixed-paraffinic base (Alanno), mixed base (Ragusa), naphthenic base (Gela).

Table 4. Geochemical data on Gela crude oil, before and after irradiation

	Oil sample	Oil sample	Oil + sand sample	Oil + water-wet sand sample	Oil + limestone sample	Oil + water-wet limestone sample	Oil + clay sample	Oil + water-wet clay sample
Total dose (rad)	Unirradiated	1.04×10^9	1.04×10^9	1.04×10^9	1.04×10^9	1.04×10^9	1.04×10^9	1.04×10^9
(a) Geochemical analysis:								
API gravity	7.4	7.1	6.5	6.0	6.2	5.6	5.8	4.7
Sulphur %	7.70	7.70	7.68	7.70	7.67	7.70	7.68	7.68
Carbenes + asphaltenes %	28.51	29.38	30.24	31.42	31.08	32.38	33.50	36.12
Resins %	20.48	21.16	21.85	22.84	21.00	23.16	24.93	25.52
Oil fractions %	51.01	49.46	47.91	45.74	47.92	44.26	41.57	38.36
C:H ratio of oil fractions	7.46	7.48	7.48	7.50	7.48	7.49	7.51	7.54
Average molecular weight of oil fractions	412	417	421	426	415	423	428	437
(b) Sulphur in geochemical fractions:								
Carbenes + asphaltenes S %	9.67	9.67	9.70	9.68	9.69	9.71	9.73	9.78
Resins S %	7.62	7.64	7.65	7.68	7.63	7.66	7.69	7.74
Oil fractions S %	6.63	6.55	6.42	6.35	6.38	6.26	6.02	5.66
(c) Distribution of sulphur as % of total:								
S in carbenes + asphaltenes	35.81	36.90	38.20	39.50	39.27	40.83	42.45	45.99
S in resins	20.26	21.00	21.75	22.78	20.89	23.04	24.96	25.72
S in oil fractions	43.93	42.10	40.05	37.72	39.84	36.13	32.59	28.29

Table 5. Gas-chromatographic analysis of oil fractions obtained, before and after irradiation, in phials of Ragusa crude oil

	Oil, unirradiated	Oil, irradiated in bulk	Oil + clay	Oil + water-wet clay
Total dose (rad)	—	0.85×10^6	0.85×10^6	1.04×10^6
Total peaks	83	10	90	96
<i>Components</i>				
<i>% by weight:</i>				
n - Nonane	0.05	0.01	traces	traces
n - Decane	0.08	0.02	traces	traces
n - Undecane	0.18	0.02	0.01	traces
di - Isopropylbenzene	0.16	0.16	0.15	0.20
Naphthalene	0.70	0.75	0.72	0.73
n - Dodecane	0.31	0.12	0.08	0.06
n - Tridecane	0.88	0.32	0.36	0.10
Cyclododecane	0.05	0.07	0.12	0.22
Diphenyl	0.17	0.38	0.50	0.64
n - Tetradecane	0.75	0.57	0.44	0.28
Tetraisopropylbenzene	0.21	2.28	2.55	3.03
n - Pentadecane	1.56	4.13	4.96	4.83
n - Hexadecane	3.83	4.83	5.59	4.71
n - Heptadecane	4.34	6.11	6.03	6.30
n - Octadecane	4.80	4.94	5.05	6.55
n - Nonadecane	6.82	5.02	6.86	7.63
n - Eicosane	4.47	4.65	3.61	5.16
n - Heneicosane	3.82	2.96	3.60	3.02
n - Docosane	4.20	3.63	2.14	1.85
n - Tricosane	3.94	2.23	2.01	0.89
n - Tetracosane	3.49	2.16	1.36	0.35
n - Pentacosane	3.78	2.30	1.16	0.21
Total normal paraffins	47.30	44.02	43.26	41.94

The results of the geochemical analyses on the crude oils from Ragusa and Gela, both unirradiated and irradiated alone or in the presence of sedimentary rocks, are shown in Tables 3 and 4 respectively, with the data for sulphur in each geochemical fraction. In the same tables the material balance of sulphur is also shown.

On the oil fractions of some samples, gas-chromatography analysis with a programmed temperature up to 250 °C was carried out, thus permitting the detection of hydrocarbons up to about C₂₅. In Table 5, the total number of peaks found and the concentration of hydrocarbons* identified are reported. The infrared spectra of the oil fractions from different crude oils indicate that in all cases less unsaturated liquid hydrocarbons are formed when irradiation is performed in the presence of rock and water.

An attempt has been made to characterize in more detail the highly altered fractions (carbenes + asphaltenes). This was done by recording the infrared spectra of the pentane-insoluble fraction from irradiated and unirradiated products. A further analysis of these altered products was carried out by thin-layer chromatography. The various chromatograms are essentially

similar but the spots show a different fluorescence intensity. The fluorescence spectra of the pentane-insoluble fraction from the Ragusa crude oil are shown in Fig. 1. The maximum intensity of the fluorescence phase appears to be in the range 500-520 m μ . The same happens with the carbenes + asphaltenes fractions from Gela crude oil.

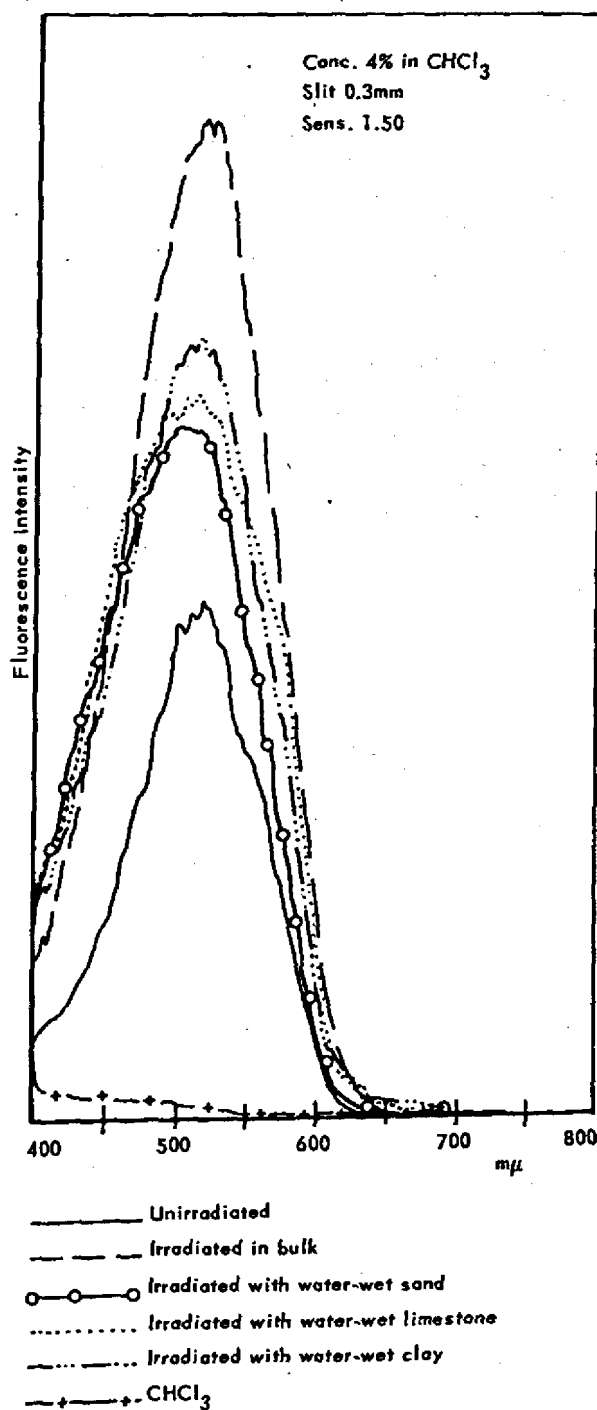


Figure 1. Fluorescence excitation spectra of irradiated and unirradiated carbenes + asphaltenes from Ragusa crude oil

Irradiation with removal of gaseous products: Irradiation experiments with higher total doses were performed using an apparatus permitting the removal and collection of the gaseous radiolytic products. This avoided the danger from high pressure in the irradiation container and, moreover, eliminated the possibility of secondary reactions with the participation of gaseous radiolytic products, and therefore better approached geological conditions.

Irradiations with this device were carried out on crude oils from Alanno (both alone and in the presence of water-wet clay), Gela (in the presence of water-wet clay) and Mosul (alone). In Table 6, the data relating to gaseous radiolytic products are reported. It should be pointed out that although hydrogen is by far the main constituent, the ratio of saturated to unsaturated hydrocarbons increases substantially with the absorbed dose. In Table 7, the results obtained from the geochemical study on crude oils from Alanno and from Mosul irradiated alone are compared with those from the same unirradiated oils.

When the irradiation of oils in this special apparatus was performed with water-wet clay present, the organic material intimately mixed with the rock was found after irradiation to be partially insoluble in chloroform. For Alanno crude oil the insoluble fraction was 95% of the initial product, while in the case of Gela the insoluble fraction was 88%.

In Fig. 2, the infrared spectra of the oil fractions obtained from the chloroform soluble fractions respectively for Alanno and Gela crude oils, are reported.

A thermogravimetric analysis was carried out under nitrogen on the total solid matter (rock + unextracted organic material) of irradiated and unirradiated oils. In Fig. 3, the thermogravimetric diagrams obtained are compared with those of a typical oil shale (Green River shale from Utah) and of a uraniumiferous asphaltite (Colorado Plateau).

DISCUSSION

The new experimental data confirm the previously reported effects of sedimentary rocks and water on the yield and distribution of a radiolytic product. This is evident both in the gaseous and liquid phases, the latter being characterized by a remarkable increase in the density and viscosity of the liquid irradiated product, associated with an increase in the concentration of asphaltenes + carbenes, as well as in the average molecular weight of the oil fractions. The density and viscosity increases in the liquid product from irradiation show perhaps the most striking difference between the effects of radiation and those of mild heating. High-temperature (300-350 °C) ageing of crude oils and asphalts has been reported to result

Table 6. Gaseous radiolytic products formed during irradiation with discontinuous gas removal

	Alanno oil + water-wet clay sample			Gela oil + water-wet clay sample		Mosul (Middle East) oil sample	
	Gaseous product No.			Gaseous product No.		Gaseous product No.	
	1	2	3	1	2	1	2
Irradiation dose (rad)	3.09×10^8	6.02×10^8	1.52×10^9	4.74×10^8	7.03×10^8	3.03×10^8	1.01×10^9
Cumulative dose absorbed by sample (rad)	3.09×10^8	9.11×10^8	1.06×10^{10}	4.74×10^8	1.18×10^{10}	3.0×10^8	4.04×10^9
Dose rate (rad/h)	1.4×10^7	1.4×10^7	1.4×10^7	1.4×10^7	1.4×10^7	8.0×10^7	8.0×10^7
Volume of gas produced (cm ³ at 0 °C and 760 mm Hg)	3 486	5 941	1 363	5 064	5 360	5 378	1 016
<i>Percentages:</i>							
H ₂	82.87	81.98	81.24	87.69	80.89	79.13	77.67
CH ₄	5.88	4.74	4.58	2.31	3.74	3.19	4.06
C ₁ H ₆	3.87	2.19	3.27	0.92	1.39	2.15	2.84
C ₂ H ₆	0.90	0.10	0.04	0.02	0.02	2.61	2.53
C ₂ H ₄	0.06	0.04	abs.	0.01	abs.	0.18	0.25
C ₂ H ₂	3.09	0.56	0.99	0.34	0.42	5.38	5.76
C ₃ H ₈	0.04	0.03	0.01	traces	traces	0.03	0.03
C ₃ H ₆	1.81	0.38	0.68	0.24	0.31	4.66	4.88
C ₄ H ₁₀	0.15	0.02	0.01	traces	traces	0.10	0.20
C ₄ H ₈	0.07	0.26	0.66	0.29	0.22	1.61	1.70
C ₅ H ₁₂	0.05	0.07	0.09	0.06	0.04	0.06	0.08
C _n	1.21	9.63	8.43	8.12	12.97	traces	traces
CO ₂							
Ratio saturated: unsaturated hydrocarbons	13.36	43.68	171.16	138.00	304.00	5.86	6.42

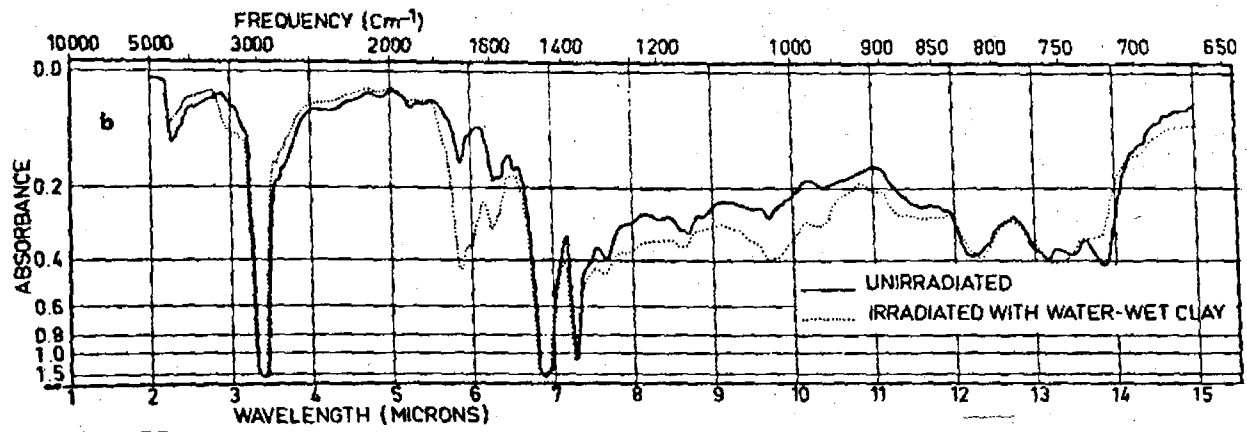
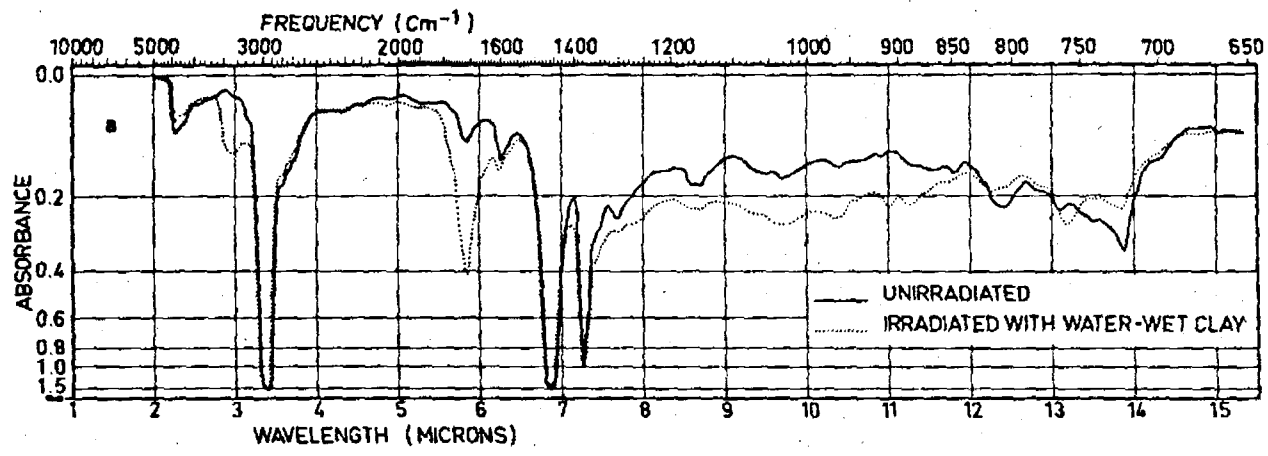


Figure 2. Infrared spectra of oil fractions from (a) Alanno and (b) Gela crude oils before and after irradiation (the gaseous products have been removed during irradiation)

in a kind of geothermal "vis-breaking", yielding low viscosity, low density oils. In the case of irradiation, the viscosity and density of the liquid product are higher than those of the unirradiated oil. The fact is worthy of note that the high sulphur-containing asphaltic oils, which were found to be the thermally most labile [5], are also those where the effects of radiations are more apparent.

The infrared spectra of the carbenes + asphaltenes fractions have shown a substantial similarity between irradiated and unirradiated oils. Nevertheless, from the band at 5.75μ , it is evident that oxidation takes place under irradiation with water-wet clay. The presence of sedimentary rock is also responsible for the practically total absence of the band at 10.35μ , attributed to unsaturated compounds, which on the other hand, appears when the oil is irradiated in bulk.

The spectra of Fig. 1 show that the fluorescence intensity of carbenes + asphaltenes is higher when the oil has been irradiated, compared with that of unirradiated oil. Since the fluorescence is believed to be related to heavy and condensed products, the higher intensity is attributed to the formation of more condensed products during irradiation.

From the data on the distribution of sulphur as a percentage of the total in the different geochemical fractions, it should be pointed out that, due to the irradiation, a considerable amount of sulphur is transferred from the oil fractions to the altered fractions, namely resins and carbenes + asphaltenes. The results of gas-chromatography analysis on oil fractions show that, in the range up to C_{25} , the number of peaks increases when the oil is irradiated and, moreover, the total linear paraffins decrease. This is in relation to the increase of molecular weight due to reactions of branching and condensation which bring about the formation of compounds with lower vapour pressure. This is confirmed, at least partially, by the abundance of some identified hydrocarbons, which show a shift towards higher molecular weights.

During the irradiations of crude oils in the gas-removal apparatus, the total doses were higher than in the phial experiments and, therefore, it was possible to cause greater alteration. One of the most significant features is that unsaturated hydrocarbons decrease in the gaseous products when the absorbed dose increases. In these experiments, the liquid phase has been considerably altered (Table 7), and when irradiations were performed in the presence of water-wet clay (Alanno and Gela crude oils), the organic material became largely insoluble. The infrared spectra of the oil fractions from the chloroform-soluble fraction, show that strong effects of oxidation (band at 5.75μ) and degradation of paraffins (decrease in the band at 13.45μ) took place during irradiation. The patterns of these spectra are similar to those recorded on the oil fractions of the chloroform-soluble fraction

obtained from the well-known Green River oil shale.

The effects of irradiation on the structure of the liquid and solid organic matter are apparent from the thermogravimetric curves of Fig. 3, which show that the temperature of the peak corresponding to the loss of organic matter from the rock is considerably

Table 7. Geochemical analysis of Alanno and Mosul crude oils, before and after irradiation, with gas removal device

	Alanno crude oil		Mosul (Middle East) crude oil	
	Unirradiated	Irradiated in bulk	Unirradiated	Irradiated in bulk
Total dose (rad) . . .	—	2.36×10^9	—	4.04×10^9
API gravity	34.2	26.3	33.6	21.0
Sulphur %	2.32	2.31	1.98	1.96
Carbenes + asphaltenes %	0.61	16.37	0.26	25.42
Resins %	5.43	9.98	6.18	12.64
Oil fractions %	93.96	73.65	93.56	61.94
C:H ratio of oil fractions	6.70	6.89	6.90	7.31
Average molecular weight of oil fractions	286	402	298	448

increased as a result of prior irradiation of the samples. It appears that the irradiated samples tend to become, from the thermogravimetric point of view, similar to natural radioactive materials, such as the uraniumiferous asphaltite from the Colorado Plateau, and also to typical oil shales.

In the present work, one of the most important limitations of the experimental model chosen, besides the relatively high dose-rate, is the fact that irradiations have been conducted at ordinary pressure and at a temperature of the order of $35-40^\circ\text{C}$. Higher temperatures, as recognized in a recent work on the radiolytic and pyrolytic modifications on paraffinic hydrocarbons [7], result in a remarkable increase in the G values of the radiolytic reaction, especially in the presence of catalysts. In natural environments, this effect could enhance the alteration of crude oils which has been observed in the present work.

ACKNOWLEDGEMENTS

This work has been sponsored by Montecatini, Società Generale per l'Industria Mineraria e Chimica, as a part of the research programme on radiation effects on hydrocarbons, performed in collaboration with SORIN.

Thanks are due to the managements of Montecatini and SORIN for their permission to publish this paper.

REFERENCES

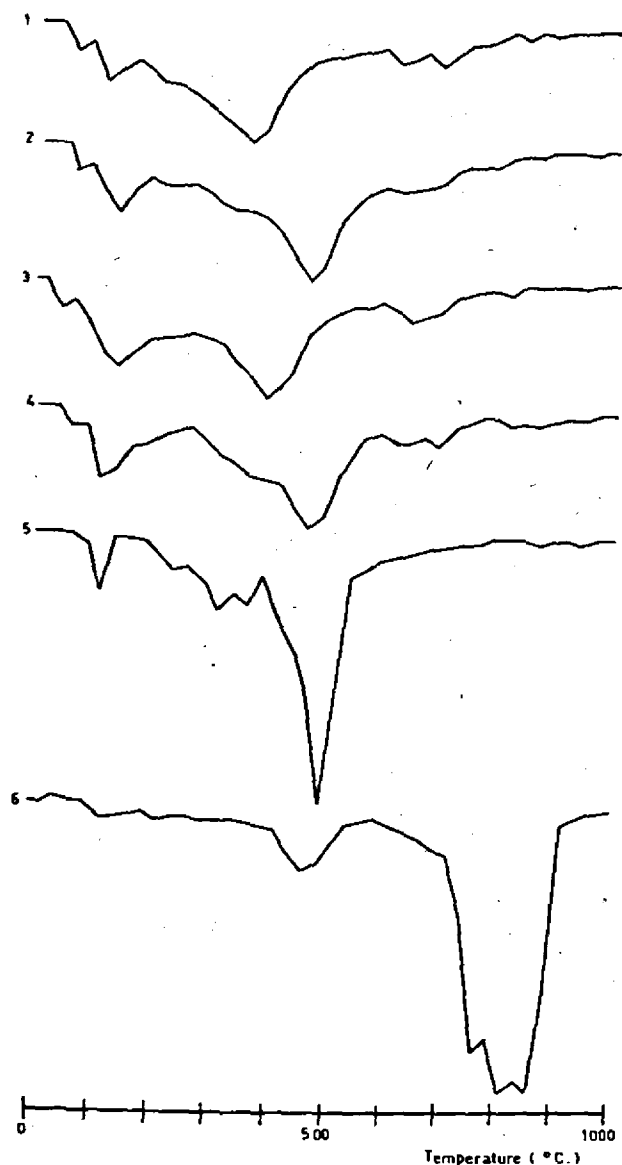


Figure 3. Differential thermogravimetric diagram ($\Delta g/g \cdot \Delta T$) of crude oils supported on water-wet clay, and comparison with curves obtained with a typical oil shale and on a natural radioactive asphaltic rock ($\Delta T = 25^\circ\text{C}$, heating rate = $6^\circ\text{C}/\text{min}$)

Samples have been heated under nitrogen: (1) Alanno crude oil + water-wet clay; (2) Alanno crude oil + water-wet clay, pre-irradiated with a total dose of 1.06×10^{10} rad; (3) Gela crude oil + water-wet clay; (4) Gela crude oil + water-wet clay, pre-irradiated with a total dose of 1.18×10^{10} rad; (5) Uraniferous asphaltite from Colorado Plateau; (6) Green River shale from Utah

1. Binder, D., and Kirkland, W. K., *Cerium sulphate as a pile dosimeter*, USAEC Report ORNL-3017, 104-105 (1960).
2. Casarelli, G., *et al.*, *Dosimetry work at Saluggia SORIN Centre*, in *Neutron Dosimetry, II*, 41-54, IAEA. (1963).
3. Colombo, U., and Sironi, G., *Geochemical analysis of Italian oils and asphalts*, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 25 (1), 24-51 (1961).
4. Colombo, U., Denti, E., and Sironi, G., *Radiation effects on hydrocarbons: a geochemical study*, *Proceedings Sixth World Petroleum Congress, Section I*, 365-382, Frankfurt-am-Main, 1963.
5. Erdman, G. J., *Mild thermal alteration of asphaltic crude oils*, Paper presented at the American Chemical Society, Division of Petroleum, Meeting, Philadelphia, April 1964.
6. Erickson, R. L., Myers, A. T., and Horr, C. A., *Association of uranium and other metals with crude oil, asphalt, and petroliferous rock*, *Bull. Am. Ass. Petrol. Geol.*, 38 (10), 2200-2218 (1954).
7. Földiák, G., Meder, W., and Schenck, G. O., *Beitrag zur strahlenchemisch-thermischen Zersetzung von Kohlenwasserstoffen*, *Radiochim. Acta*, 2, 105-106 (1963).
8. French, R. L., and Eggen, J. B., *Fast neutron and gamma spectra for BSR*, *Nucleonics*, 18, 117-120 (March 1960).
9. Hail, W. J. Jr., Myers, A. T., and Horr, C. A., *Uranium in asphalt-bearing rocks*, *Proceedings of the First International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy*, P/288, Vol. 6, p. 489, United Nations (1956).
10. Lind, S. C., and Bardwell, D. C., *Chemical action of gaseous ions produced by alpha particles*, *J. Am. Chem. Soc.*, 48, 2335-2351 (1926).
11. Mapel, W. J., *Uraniferous black shales in the Northern Rocky Mountains and Great Plains Regions*, *Proceedings of the First International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy*, P/54, Vol. 6, p. 445, United Nations (1956).
12. Pierce, A. P., Mytton, J. W., and Gott, G. B., *Radioactive elements and their daughter products in the Texas Panhandle and other oil and gas fields in the United States*, *ibid.* P/289, Vol. 6, p. 494.
13. Sheppard, C. N., *Radioactivity and petroleum genesis*, *Bull. Am. Ass. Petrol. Geol.*, 28, 924-952 (1944).
14. Stahl, E., *Dünnschicht-Chromatographie*, Springer-Verlag, Berlin (1962).
15. Whitehead, W. L., *Studies on the effects of radioactivity in the transformation of marine organic materials into petroleum hydrocarbons*, American Petroleum Institute Fundamental Research and Recovery of Petroleum, Research Project 43c, 192-204 (1951).
16. Whitehead, W. L., *Hydrocarbons formed by the effects of radioactivity and their role in the origin of petroleum in Nuclear Geology* (edited by H. Faul), Wiley, New York (1954).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/830 Italie

A/830 Италия

Contribution à la connaissance de l'évolution naturelle des pétroles: effets de l'irradiation sur les huiles brutes

par U. Colombo *et al.*

Dans plusieurs régions du monde, les huiles lourdes et les asphaltes sont associés à des roches sédimentaires plus ou moins radioactives. De plus, quelques roches que les géologues considèrent comme roches-mères du pétrole contiennent une concentration non négligeable d'éléments radioactifs. On suppose que ces accumulations de substances organiques peuvent être en rapport avec des effets de l'irradiation sur des molécules moins complexes, telles que les hydrocarbures liquides présents dans les bassins sédimentaires. La présence de roches et d'eau, et la température et la pression relativement élevées, peuvent avoir joué un rôle essentiel dans la modification chimique des hydrocarbures.

Le mémoire étudie les résultats d'expériences d'irradiation effectuées dans des ampoules et avec un appareillage pour l'extraction périodique des produits gazeux de radiolyse. Des irradiations ont été effectuées avec quelques huiles brutes, seules ou en présence des différentes roches sédimentaires et d'eau, dans des conditions semblables à celles qui sont connues pour les bassins sédimentaires. On a observé des changements considérables des poids moléculaires des huiles brutes irradiées. A côté de molécules complexes condensées, il se forme des produits gazeux. On peut remarquer qu'en présence de quelques catalyseurs naturels, surtout mouillés d'eau, l'irradiation provoque la formation de relativement moins d'hydrogène et de molécules non saturées que lorsqu'on irradie des huiles brutes seules. L'irradiation à un niveau de dose élevé des huiles brutes en contact avec des argiles mouillées d'eau dans l'appareil à extraction périodique de gaz a montré qu'une part considérable de l'huile devient insoluble dans CHCl_3 .

On peut suggérer que certains schistes radioactifs, qui sont supposés être roches-mères du pétrole, seraient en réalité les résultats d'une altération d'huiles exogènes.

Вклад в изучение естественной эволюции нефти: действие облучения на сырую нефть

Ю. Коломбо *et al.*

В некоторых районах мира залежи тяжелых масел и асфальтов связаны с более или менее радиоактивными осадочными породами. Кроме того, некоторые углистые сланцы, которые обычно рассматриваются в качестве материнских пород для нефти, содержат значительное количество радиоактивных элементов. Предполагают, что такие скопления этого органического вещества могут быть связаны с влиянием радиации на менее сложные молекулы, такие, как жидкие углеводороды, присутствующие в осадочных бассейнах. Наличие породы и воды, относительно высокой температуры и давления, возможно, играло важную роль в химическом изменении углеводородов.

В докладе рассматриваются результаты опытов по облучению, проведенных в фиалах и в установке, рассчитанной на удаление газообразных продуктов радиолиты. Проводились эксперименты по облучению сырой нефти, а также эксперименты по облучению сырой нефти в присутствии различных осадочных пород и воды в окружающих условиях, сравнимых с условиями, характерными для осадочных бассейнов. Наблюдались значительные колебания в молекулярном весе облученной сырой нефти. Помимо образования сложных конденсированных молекул образуются газообразные продукты. Следует отметить, что при облучении в присутствии некоторых естественных катализаторов, особенно если они смочены водой, образуется меньше водорода и ненасыщенных молекул, чем при облучении одной сырой нефти. Облучение сырой нефти высокими дозами в присутствии смоченного водой глинозема, проводившееся в установке, из которой отводились газообразные продукты, показало, что значительное количество нефти становится нерастворимым в хлороформе.

Делается предположение, что некоторые радиоактивные сланцы, которые считают материнскими породами для нефти, можно скорее рассматривать как продукты разложения экзогенной нефти.

A/830 Italia

Contribución al estudio de la evolución natural de los petróleos: Efectos de la radiación sobre los petróleos crudos

por U. Colombo *et al.*

En varias regiones del mundo, los petróleos crudos y los asfaltos aparecen asociados con rocas sedimentarias más o menos radiactivas. Además, algunos esquistos carbonosos, generalmente considerados como rocas madres para el petróleo, contienen cantidades apreciables de elementos radiactivos. Se estima que esas acumulaciones de material orgánico pueden estar relacionadas con los efectos de las radiaciones sobre moléculas menos complejas, como los hidrocarburos líquidos presentes en las cuencas sedimentarias. La presencia de rocas y agua, y la temperatura y la presión relativamente altas, tal vez hayan desempeñado un importante papel al determinar la modificación química de los hidrocarburos.

Esta memoria se ocupa de los resultados obtenidos en experimentos de irradiación tanto en redomas como

en una instalación concebida para la eliminación de los productos gaseosos radiolíticos. Las irradiaciones se efectuaron con algunos petróleos crudos, tanto solos como en presencia de diferentes rocas sedimentarias y de agua, en condiciones ambientales similares a las que se conocen para las cuencas sedimentarias. Se encontraron variaciones considerables de los pesos moleculares de los crudos irradiados. Además de las moléculas complejas condensadas se formaron productos gaseosos. Cabe señalar que la irradiación en presencia de ciertos catalizadores naturales, sobre todo mojados con agua, da lugar a la formación de mucho menos hidrógeno y moléculas no saturadas que cuando se irradian petróleos crudos sin catalizador. Irradiando con grandes dosis los crudos en presencia de arcilla mojada con agua en la instalación concebida para la eliminación de gases se observa que una cantidad apreciable del petróleo se hace insoluble en cloroformo.

Se sugiere que algunos esquistos radiactivos, que se suponen rocas madres del petróleo, pueden considerarse como productos de alteración profunda del petróleo exógeno.

Determination of trace elements in the Greek lakes by neutron-activation analysis

By A. P. Grimanis, G. Pantazis, C. Papadopoulos and N. Tsanos*

In the past mainly spectrographic methods have been applied for the determination of trace elements in lakes [1]. These and other conventional methods are, however, restricted for some elements because of insufficient sensitivity and large reagent blanks. One promising method of analysis for elements present in microgram or submicrogram quantities in lake waters is neutron-activation analysis [2-7]. The big advantages of this method are great sensitivity [8, 9] for many elements for which other methods present difficulties, and the elimination of reagent contamination and reagent blanks. Therefore, activation-analysis should play an important rôle in providing complementary or unknown information on minor elements in lake waters.

This paper reports the application of neutron-activation analysis for determining 14 trace elements in the 11 most important lakes in Greece.

EXPERIMENTAL

Samples analyzed were collected with a Ruttner water sampler from the surface and at 5 or 15 metres depth, depending on the maximum depth of each lake. The collection of samples was made at the deepest point, in most cases the center of the lake, throughout Greece. Samples were collected from 16 July to 14 August in 1963. Some information concerning the lakes from which the lake waters were taken are shown in Table 1. The 14 elements investigated were: silver, gold, arsenic, barium, bromine, chloride, copper, iodine, manganese, potassium, sodium, rhenium, vanadium and zinc. The radionuclides of interest produced by the above elements with the simple neutron capture process, i.e., the (n, γ) reaction are shown in Table 2 with their respective half-lives and gamma-energies for gamma-spectroscopy [10-12].

Sample and standard-preparation for irradiation

Lake water samples were stored in polyethylene bottles. Before irradiation samples were filtered and

pipetted into small polyethylene tubes of either 1.3 or 7.4 or 30 ml capacity. Tubes containing the samples were heat-sealed. The standards or the comparators of the elements under investigation were prepared as dilute aqueous solutions and placed in polyethylene tubes of the same size as those used for samples. The volume of standards in the plastic tubes was the same as that of the samples. The concentration of a particular element in a standard solution ranged from 5.0 to 0.05 micrograms per ml depending on the element under investigation and the time of irradiation. This concentration was selected so that the standard could be processed and counted after irradiation without additional dilution. For the preparation of the standard solutions thrice distilled water was used [13].

In order to increase sensitivity for some elements, 100 ml of lake water samples analyzed for rhenium, vanadium and zinc were pipetted into platinum capsules and evaporated on a hot plate down to 5 ml and on a water bath up to dryness. The residue of the capsule was dissolved and transferred with 5 ml of thrice distilled water into the polyethylene tubes for irradiation.

Irradiation of samples

All neutron irradiations were carried out with the "Democritus" reactor of the Nuclear Research Center

Table 1. Greek lakes from which samples have been collected

Lake	Area km ²	Maximum depth m	Depth of sampling m
Aghios Vassilios . . .	45	8.4	5
Doirani	45	10	5
Ioannina	22	10	5
Kastoria	30	10.3	5
Marathon	2.5	50	15
Ostrovon	65	65.3	15
Paralimni	15	20	15
Prespa Mikri	43	10	5
Stymphalis	18	< 4	—
Trichonis	97	56.6	15
Volvi	73	22.3	15

* Nuclear Research Center Democritus, Chemistry and Biology Divisions.

Table 2. Radionuclides determined in lake waters

Radionuclide	Half-life	Gamma-energies for gamma- spectroscopy (MeV)
¹⁰⁸ Ag	24.2 s	0.66
⁷⁶ As	26.4 h	0.56
¹⁹⁸ Au	64.8 h	0.41
¹³⁰ Ba	84.0 min	0.16
⁸⁰ Br	36.0 h	0.55 0.78
³⁶ Cl	37.3 min	1.64 2.15
⁶⁴ Cu	12.8 h	0.51 ^a
⁶⁴ Cu	5.1 min	1.04
¹³⁰ I	25.0 min	0.45
⁴² K	12.5 h	1.52
⁵⁴ Mn	2.58 h	0.85
²⁴ Na	15.0 h	1.37 2.76
¹⁸⁷ Re	3.7 d	0.137
⁵¹ V	3.77 min	1.43
⁶⁵ Zn	14.0 h	0.44 ^b (TT)

^a Annihilation gamma following positron emission.
^b Gamma accompanying isomeric transition.

were pipetted in culture tubes for counting. The photopeak areas of chlorine-38 and sodium-24 (see Table 2) were measured by a 3 in × 3 in NaI(Tl) scintillation crystal coupled with a 400 channel pulse-height analyzer. Memory data were printed on a fast electric printer. Comparison of the areas of the samples and standards, with correction of the counting rate to the same decay time, made possible the determination of chlorine and sodium present in the samples [18].

Silver

Aliquots of 0.5 ml of lake water samples were pipetted into special polyethylene tubing [19]. The tubing was heat-sealed and irradiated together with a weighed gold monitoring foil for 48 s. Within 25 s after irradiation the induced activity of silver-110 of each sample was counted. The counting time was 24 s. Memory data were transferred to a magnetic tape. Decay studies were made by counting the sample at 48 s time intervals. Standards were counted in the same way separately. Gold foils weighing 0.5 mg were counted in a gamma scintillation counter. These foils were used in order to estimate flux variations. All neutron irradiations were normalized to 2×10^{11} n/cm² s. Data on the magnetic tape were transferred to the printer and the photopeak areas at 0.66 MeV for silver-110 in the samples and standards were compared.

Chemical separations

Fast radiochemical separations [20, 21] based on solvent extraction techniques [22] were performed for arsenic, gold, iodine, rhenium, vanadium and zinc. For the short-lived produced radionuclides vanadium-52 and iodine-128 the rabbit system was again used.

Vanadium

The cupferron-chloroform extraction procedure described by Fukai and Meinke [23] was used. Samples and vanadium standards contained in polyethylene tubes have a volume of 5 ml. Each sample was irradiated with a weighed gold monitoring foil. Irradiation time with the pneumatic system was 10 min. An added vanadium carrier and the vanadium-52 of the irradiated sample were extracted as cupferrates into chloroform from 2.4M hydrochloric acid. After phase-separation, the organic layer was transferred to an erlenmeyer bottle and measured as follows: 2 ml were pipetted into a culture tube and counted with a well-type scintillation counter; 5 ml were pipetted into a 25 ml erlenmeyer bottle and counted on a 3 in × 3 in NaI (Tl) crystal coupled to the 400 channel pulse height analyzer. Also 1 ml of the

of Greece. For irradiations up to 30 min, the pneumatic transfer ("rabbit") system in the laboratory was used. This system permits irradiation at thermal neutron flux 2×10^{11} n/cm² s and re-delivery of the sample to the vicinity of the laboratory hood within 7 seconds after the end of the irradiation.

Irradiations with the rabbit system were made for chlorine, iodine, sodium, silver and vanadium. In-pool irradiations were made for the other elements under investigation. Two hours for barium, copper and manganese and 8 hours for arsenic, bromine, gold, potassium, rhenium and zinc, were the irradiation periods chosen.

Samples and standards of the elements to be determined were placed in polyethylene tubes, sealed in plastic envelopes and fixed on plastic stringers. The end of each stringer had a suitable weight for vertical suspension and all were suspended in the reactor by nylon strings. The thermal neutron flux at the place where samples were irradiated was about 2×10^{11} n/cm² s.

Instrumental neutron-activation analysis

Excellent studies concerning instrumental or non-destructive activation analysis have appeared recently in the literature [14-17]. These techniques were applied for chlorine, sodium and silver.

Chlorine and sodium

Samples and standards of the above elements contained in polyethylene tubes, were packed in plastic sheets and placed in the rabbit for a 20 min irradiation. After irradiation, aliquots of samples and standards

organic phase was pipetted into a 10 ml volumetric flask and diluted to 10 ml with chloroform and used for the spectrographic determination of vanadium extracted in the chloroform for chemical yield corrections. The time of separation was about 3.5 min. All samples were counted for 1 min at 4.5 min after irradiation. Vanadium standards irradiated with gold foils were processed and counted in the same manner. Memory data of the analyzer were printed on the electric printer. Decay studies were made by counting samples and standards at 4 min intervals for 25 min. The photopeak areas of 1.43 MeV for vanadium-52 in the samples and standards were compared. With the aid of gold foils all neutron irradiations were normalized to 2×10^{11} n/cm²s. The gold foils (weighing 5 mg) were dissolved in 4 ml of *aqua regia* and diluted to 10 ml. A 100- λ aliquot of this solution was taken for counting in a well-type scintillation counter.

Iodine

Iodine standards and lake water samples contained in polyethylene tubes have a volume of 5 ml. The irradiation period with the rabbit system was 30 min. For the estimation of the neutron fluctuation during irradiations gold solutions [20 μ g of Au per ml] were prepared. A 500- λ aliquot of this solution was placed in special plastic tubing [19]. Each sample was irradiated together with a tube containing the gold solution. An added iodine carrier together with the radioiodine of the irradiated sample were subjected to alternate redox steps and extractions into carbon tetrachloride according to the procedure described by Glendenin and Metcalf [24].

The separation time for the iodine was about 15 min. Silver iodide precipitates were filtered, washed, dried and counted in a well-type scintillation counter. Gross gamma decay was followed by counting the samples at 25 min intervals for 2 hours. Radiochemical purity was checked with the 400 channel analyzer (3 in \times 3 in crystal) in the energy range of 0.2 MeV.

Iodine standards were irradiated processed and counted in the same manner. Gold solutions were measured 5 days after irradiation in order to allow the sodium-24 present in the plastic tube to decay. Correction factors for neutron fluctuation during irradiations were estimated with the aid of the gold solutions. Correction for the loss of the carrier element through the chemical procedure was made by weighing the silver iodide precipitates.

Barium and manganese

Samples and barium and manganese standards were irradiated in the pool of the reactor for 2 hours. Following the irradiation, 10 ml of lake water sample were pipetted into a 50 ml centrifuge tube, and barium

and manganese carriers were added. Addition of hold-back carriers of arsenic, copper, sodium and strontium was also made. The solution was then cooled in an ice bath, and 20 ml of fuming nitric acid were added. Barium and strontium were precipitated as nitrates. The mixture was then centrifuged. Barium was processed according to Leddicotte's procedure [25]. The supernatant liquor from the barium and strontium precipitates was transferred to a 50 ml centrifuge tube and processed for manganese according to another procedure described by Leddicotte [26]. The additions of 5 ml of 70 per cent perchloric acid plus solid potassium chlorate and 10 ml of concentrated nitric acid accelerate the precipitation of manganese as manganese dioxide [27].

Arsenic

For arsenic separation an extraction procedure developed by one of us and Leddicotte [28] was applied. According to this procedure more than 99.5 per cent of arsenic as As³⁺ is extracted into benzene from 1.4M HBr-6.5M H₂SO₄ in less than 2 min.

From the irradiated lake water 4 ml were pipetted into a 50 ml centrifuge tube followed by the addition of 1 ml of arsenic carrier solution containing 10 mg of As⁵⁺ and 1 ml of sodium hold-back carrier solution. Then 1.7 ml of distilled water were pipetted into the tube. The tube was then placed in an ice bath and 4.5 ml of 96% H₂SO₄ were added. After cooling, 4.3 ml of 63 per cent hydrobromic acid were pipetted into the solution. It was then transferred to a separating funnel. The reduced arsenic carrier and the arsenic-76 of the irradiated sample were extracted quantitatively from the solution into 12.5 ml of benzene by shaking for 2 min. After the phases separated the aqueous phase was discarded. The organic phase was washed with equal volume of 1.4M HBr-6.5M H₂SO₄. The washings were discarded. The total arsenic was stripped quantitatively from the benzene into 12 ml of distilled water. Extraction and stripping steps require less than 6 min. The aqueous phase was drained into a 50 ml centrifuge tube. An equal volume of concentrated hydrochloric acid was added. The As³⁺ was reduced to the metal by addition of 1.0 g of ammonium hypophosphite. The mixture was digested for 20 min in a water bath and was then centrifuged. The filtered metal was washed with distilled water and absolute ethanol and transferred to a weighed culture-tube, then dried at 110 °C for 15 min and subsequently weighed and counted in a well-scintillation counter. Decay was followed by counting the culture tube at the half-life intervals of arsenic-76. Radiochemical purity was also checked with the analyzer, but contaminants were not found. The arsenic standards were processed in the same manner. The chemical yield is over 90%.

Table 3. Elements determined in Greek lakes by activation analysis^a

Lake	Bromine		Chlorine		Potassium		Sodium		Silver	
	surface	depth	surface	depth	surface	depth	surface	depth	surface	depth
Aghios Vassilios ^b	0.63	1.00	90.5	88.5	4.7	4.7	86.5	102.2	<0.01	<0.01
Doirani ^b	0.13	0.12	16.9	22.0	4.4	4.6	21.6	19.7	<0.01	<0.01
Ioannina ^b	0.07	0.05	23.0	22.9	1.3	1.3	15.4	18.3	<0.01	<0.01
Kastoria ^b	0.06	0.06	4.9	5.7	2.5	2.3	6.6	5.9	<0.01	<0.01
Marathon ^c	0.09	0.013	1.5	1.5	1.3	1.1	2.4	2.1	<0.01	<0.01
Ostrovon ^c	0.09	0.09	13.1	13.2	2.9	3.0	13.7	11.3	<0.01	<0.01
Paralimni ^c	0.08	0.08	12.7	11.8	1.5	1.3	11.3	7.0	<0.01	<0.01
Prespa Mikri ^b	0.02	0.02	16.5	11.5	1.1	1.1	2.5	2.7	<0.01	<0.01
Stymphalis ^d	0.03	—	6.4	—	0.6	—	2.1	—	<0.01	—
Trichonis ^c	0.06	0.06	9.1	9.1	2.0	2.1	5.5	8.7	<0.01	<0.01
Volvi ^c	0.78	—	125	108	3.4	3.8	133.1	110.7	<0.01	<0.01

^a Concentration given in ppm.^b Depth of sampling 5 m.^c Depth of sampling 15 m.^d Maximum depth less than 4 m.

Rhenium and zinc

Rhenium was separated according to an extraction procedure developed by Leddicotte and one of us [29]. This procedure was also applied for the separation of zinc. Portions of irradiated lake water were pipetted into a 50 ml centrifuge tube, and rhenium and zinc carrier solutions added. Aliquots of a saturated solution of hydroxylamine hydrochloride and a sodium hold-back carrier solution were also added. The molarity of the solution was adjusted to 4M in hydrochloric acid and the rhenium and zinc carriers together with the radio-rhenium and radio-zinc were extracted into 70 vol. % *n*-tributyl-phosphate (TBP) in benzene. (The extraction efficiencies for rhenium and zinc from 4M hydrochloric acid into 70% TBP-benzene mixture are 99% and 90% respectively.) After the layers separated the aqueous phase was discarded and the organic phase shaken with an equal volume of 4M hydrochloric acid. The washings were discarded. Then an equal volume of benzene was added to the organic phase and all the rhenium and zinc was stripped from the organic mixture into 15 ml of distilled water. After the separation of the layers the aqueous phase

was transferred to a 50 ml centrifuge tube. Zinc was precipitated as zinc ammonium phosphate [30]. The precipitate was then centrifuged and the supernatant liquor transferred to a new 50 ml centrifuge tube. Rhenium in the supernatant liquor was precipitated as tetraphenylarsonium per-rhenate [31]. The zinc and rhenium precipitates were filtered, washed with distilled water and ethanol, dried at 110 °C and counted with a well-type scintillation counter. The radiochemical purities of the zinc-69m and rhenium-186 were checked on the 3 in × 3 in NaI(Tl) crystal equipped with the multichannel analyzer. The chemical yield for the loss of carrier during the chemical separation was found by weighing the precipitates. The separation time of rhenium and zinc was about 15 min. Standards of the above elements were processed in the same manner.

Gold

Gold was separated by extraction from 6M hydrochloric acid into ethylacetate according to the procedure described by Goldberg and Brown [32]. The only modification made was that gold was stripped

Table 4. Elements determined in Greek lakes by activation analysis^a

Lake	Gold		Manganese		Vanadium		Zinc		Rhenium	
	surface	depth	surface	depth	surface	depth	surface	depth	surface	depth
Aghios Vassilios ^b	2.1	3.2	2.5	1.4	3.4	3.8	78	153	<0.1	<0.1
Doirani ^b	7.7	1.3	0.9	1.6	2.3	1.5	56	24	<0.1	<0.1
Ioannina ^b	0.2	0.2	1.8	1.9	1.8	1.0	37.2	29	<0.1	<0.1
Kastoria ^b	0.2	0.4	1.3	1.4	2.3	1.6	29.5	36.1	<0.1	<0.1
Marathon ^c	1.1	0.4	1.2	1.1	1.6	1.5	26.8	56.3	<0.1	<0.1
Ostrovon ^c	0.2	0.3	3.1	1.8	1.4	1.2	14.8	16.4	<0.1	<0.1
Paralimni ^c	0.2	0.2	2.9	2.7	4.1	2.8	81	143	<0.1	<0.1
Prespa Mikri ^b	0.8	0.2	2.4	4.1	0.2	0.2	26.4	20.9	<0.1	<0.1
Stymphalis ^d	—	—	2.1	—	0.2	—	22.8	—	<0.1	—
Trichonis ^c	5.7	6.5	0.9	1.1	3.0	1.7	77.7	17.8	<0.1	<0.1
Volvi ^c	0.1	0.2	4.4	8.0	1.4	1.2	5.7	6.1	<0.1	<0.1

^a Concentration given in ppb (10³).^b Depth of sampling 5 m.^c Depth of sampling 15 m.^d Maximum depth less than 4 m.

Table 5. Elements determined in Greek lakes by activation analysis ^a

Lake	Arsenic surface depth		Barium surface depth		Copper surface depth		Iodine surface depth	
Aghios Vassilios ^b . . .	54.5	53.0	25.1	68.2	5.1	2.4	58.5	60.9
Doirani ^b	38.0	48.6	44.0	35.0	10.8	8.3	11.5	14.6
Ioannina ^b	1.3	2.6	24.1	57.3	4.2	6.3	6.2	5.7
Kastoria ^b	10.8	11.5	19.7	20.8	3.0	10.3	7.8	7.5
Marathon ^c	2.3	3.2	22.1	22.3	4.4	6.8	8.0	7.4
Ostrovon ^c	2.5	1.8	12.9	16.2	6.0	4.0	8.5	16.7
Paralimni ^c	3.9	2.2	36.6	28.2	44.3	34.4	4.5	4.1
Prespa Mikri ^b	1.9	2.1	30.6	43.0	16.4	12.4	2.3	2.3
Stymphalis ^d	2.2	—	24.8	—	9.7	—	6.8	—
Trichonis ^c	3.1	1.1	24.3	38.6	18.8	19.0	11.3	9.9
Volvi ^c	22.3	38.1	36.1	28.1	5.2	4.5	33.6	31.5

^a Concentration given in ppb (10⁶).
^b Depth of sampling 5 m.

^c Depth of sampling 15 m.
^d Maximum depth less than 4 m.

from the ethylacetate into 8% ammonium hydroxide solution as developed by Plantin [33].

Bromine, copper and potassium

The above elements were separated by classical precipitation procedures: bromine as silver bromide. The bromine-82 was counted after a few hours to allow the chlorine-38 and iodine-128 present in the irradiated lake water to decay. Copper was precipitated as copper thiocyanate and potassium as perchlorate by procedures described by Leddicotte [34, 35]. An attempt to measure the copper-66 by irradiating the sample for 10 min with the pneumatic system and extracting the copper as cupferrate into chloroform from 1.2M hydrochloric acid was not successful, due to the low concentration of copper in the lake waters. In the case of potassium, the addition of absolute alcohol accelerates its precipitation as perchlorate [31].

RESULTS AND DISCUSSION

Results of the determination of 14 trace elements in 11 Greek lakes by neutron activation analysis are listed in Tables 3, 4 and 5. Data given are average results of at least duplicate analyses, extreme values of which did not differ in all cases by more than 10%. Due to the low flux of our reactor, the sensitivity of the methods for rhenium and silver was lower than the concentration of the elements present in the lake waters.

Instrumental activation was applied in the case of silver, chlorine and sodium.

Fast radiochemical separation procedures based on solvent extraction were successfully employed as separation techniques for the determination of arsenic, gold, iodine, rhenium, vanadium and zinc. The separation time ranged from 5 to 15 minutes.

From the data given it is apparent that activation analysis with its great sensitivity should play an important rôle in providing complementary or unknown information on elements present in microgram or submicrogram quantities in lakes. The information given by our results in this paper may have, at least for some elements, not only a geological importance, but also biological interest. The presence or absence of some trace elements may result in a eutrophic, oligotrophic, or atrophic behaviour of the lake. For this reason a determination of the trace elements in a given lake should be performed several times a year. This will cover another part of our investigations which will deal also with the determination of the main nutritive elements present in each lake.

ACKNOWLEDGEMENTS

The authors are grateful to V. Papadopoulos for his performing part in this experimental work and to A.G. Souliotis and E. Belkas for analyzing lake water samples for iodine. They also wish to thank M. Vasiliaki for counting some samples and A. Stathatou for preparing this manuscript.

REFERENCES

1. *A Treatise on Limnology* (Hutchinson, E. G., Ed.), John Wiley and Sons Inc., New York (1957).
2. Boyd, G. E., *Anal. Chem.*, *21*, 335-347 (1949).
3. Leddicotte, G. W. and Reynolds, S. A., *Nucleonics*, *8* (3), 62 (1951).
4. Blanchard, R. S. et al., *Neutron-activation analysis of drinking water*, Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, P/796, Vol. 28, p. 511, United Nations (1959), also Leddicotte, G. W. et al., *The use of neutron-activation in analytical chemistry*, P/927, 478, *ibid.*
5. Atkins, D. H. F. and Smales, A. A., in *Advances in Inorganic Chemistry and Radiochemistry*, *1*, p. 315-345 (Emeleus, H. J. and Sharpe, A. G., Eds.), Academic Press, New York (1959).

6. Leddicotte, G. W., *Pure Appl. Chem.*, **1**, 61-80 (1960).
7. Meinke, W. W., in *Chemistry Research and Chemical Techniques based on Research Reactors*, Tech. Rep. Ser. No. 17, 95-114, IAEA, Vienna (1963).
8. Meinke, W. W., *Anal. Chem.*, **31**, 792-795 (1959).
9. Meinke W. W., *Science*, **121**, 86-89 (1955).
10. Strominger, D., Hollander, J. H. and Seaborg, G. T., *Rev. Mod. Phys.*, **30**, 585-904 (1958).
11. *Applied Gamma-Ray Spectrometry, I* (Grouthamel, C. E., Ed.) Pergamon Press, New York (1960).
12. Heath, R. L., *Scintillation Spectrometry Gamma-Ray Spectrum Catalogue*, USAEC Report No. IDO-16408 (1957).
13. Rakintzis, N. Th., Marketos, D. G. and Konstas, A. P., *Z. Physik. Chem. (Frankfurt)*, **35**, 234-246 (1962).
14. Meinke, W. W., *Nucleonics*, **17**, 86-89 (1959).
15. Guinn, V. P. and Wagner, C. D., *Anal. Chem.*, **32**, 317-323 (1960).
16. Guinn, V. P., in *Modern Trends of Activation-Analysis* (Brown, W. W., Ed.), pp. 126-132, A & M College of Texas, College Station Tex. (1962).
17. Buchanan, J. D., *ibid.*, 72-77.
18. Guinn, V. P., *Production and use of short-lived radioisotopes from Reactors, II*, 3-28, IAEA, Vienna (1963).
19. Intramedic polyethylene tubing P.E. 410, Clay-Adams Inc., New York.
20. Meinke, W. W., in *Modern Trends of Activation-Analysis*, (Brown, W. W., Ed.), pp. 36-40, A & M College of Texas, College Station, Tex. (1962).
21. Kusaka, V. and Meinke, W. W., *Nucl. Sci. Ser. Rep.*, No. NAS-NS-3104, pp. 1-125, Subcommittee on Radiochemistry, N.R.C., Washington 25, D.C. (1961).
22. *Solvent Extraction in Analytical Chemistry* (Morrison, G. H. and Freizer, H., Eds.), pp. 1-269, John Wiley and Sons Inc., New York (1957).
23. Fukai, R. and Meinke, W. W., *Limnol. Oceanog.*, **7**, 186-200 (1962).
24. Glendenin, L. E. and Metcalf, R. P., in *The Radiochemistry of Fluorine, Chlorine, Bromine and Iodine*, (Kleinberg, I. and Cowan, G. A., Eds.), *Nucl. Sci. Ser. Rep.*, No. NAS-NS-3005, Procedure 15, pp. 1-42, Subcommittee on Radiochemistry, N.R.C., Washington 25, D.C. (1960).
25. Leddicotte, G. W., in *ORNL Master Analytical Manual*, USAEC Report No. TID-7015, Section 5, Method No. 5-11080 (1960).
26. Leddicotte, G. W., in *The Radiochemistry of Manganese*, (Leddicotte, G. W., Ed.), *Nucl. Sci. Ser. Rep.* No. NAS-NS-3018, Subcommittee on Radiochemistry, N.R.C., Washington 25, D.C., Procedure 8, 1-19 (1960).
27. James, L. H., *Ind. Eng. Chem. Anal. Ed.*, **3**, 31 (1931).
28. Grimanis, A. P. and Leddicotte, G. W., *Rapid separation of Arsenic by liquid-liquid extraction*, presented at the Third Panhellenic Chemical Conference, Athens, Greece, 5-11 June 1962.
29. Leddicotte, G. W. and Grimanis, A. P., *The extraction of Rhenium with Tributylphosphate*, presented at the S.W. and S.H. Regional Meeting, Amer. Chem. Soc., New Orleans, La., 7-9 Dec. 1961.
30. *A Text-Book of Quantitative Inorganic Analysis*, (Vogel, A. I., Ed.), 3rd. Edn., Longmans, Great Britain (1961).
31. *Applied Inorganic Analysis* (Hillebrand, W. F., Lundel, G. E. F., Bright, H. A. and Hoffman, J. I., Eds.), 2nd. Edn. John Wiley and Sons Inc., New York (1955).
32. Goldberg, E. D. and Brown, H., in *The Radiochemistry of Gold* (Emery, J. F. and Leddicotte, G. W., Eds.), *Nucl. Sci. Ser. Rep.* No. NAS-NS-3036, Procedure 7, 1-34, Subcommittee on Radiochemistry, N.R.C., Washington 25, D.C. (1961).
33. Plantin, L. O., in *Modern Trends of Activation Analysis* (Brown, W. M., Ed.), pp. 141-144, A & M College of Texas, College Station, Tex. (1962).
34. Leddicotte, G. W., in *The Radiochemistry of Copper* (Dyer, F. F. and Leddicotte, G. W., Eds.), *Nucl. Sci. Ser. Rep.* No. NAS-NS-3027, Procedure I, 1-54, Subcommittee on Radiochemistry, N.R.C., Washington 25, D.C. (1961).
35. Leddicotte, G. W., in *The Radiochemistry of Potassium* (Mullins, W. T. and Leddicotte, G. W., Eds.), *Nucl. Sci. Ser. Rep.* No. NAS-NS-3048, Procedure 7, 1-41, Subcommittee on Radiochemistry, N.R.C., Washington 25, D.C. (1961).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/854 Grèce

Détermination des éléments traces dans les lacs grecs par activation neutronique

par A. P. Grimanis et al.

Les piles atomiques sont des sources abondantes de neutrons qui produisent des réactions (n, γ). En utilisant la pile du Centre « Democritus » et en appliquant l'analyse par activation par neutrons, on est parvenu à déterminer 14 éléments traces dans les eaux des onze lacs les plus importants de la Grèce.

Le travail avait comme but de mesurer et de comparer les éléments stables présents en quantités de l'ordre

du microgramme ou moins encore dans les principaux lacs du pays, afin de: a) élargir nos connaissances sur le contenu en éléments traces des lacs grecs; b) établir l'importance géologique des éléments déterminés; c) obtenir des données sur l'effet biologique de ces éléments en étendant l'étude aux organismes des lacs.

Les échantillons d'eau analysés provenaient de la surface et de profondeurs de 5 ou 15 mètres de chaque lac. Les échantillons ont été prélevés du 16 juillet au 14 août 1963. Les 14 éléments identifiés sont les suivants: argent, or, arsenic, baryum, brome, chlore, cuivre, iode, potassium, manganèse, sodium, rhénium, vanadium, et zinc.

L'analyse quantitative effectuée des éléments présents dans chaque échantillon a été accomplie en

irradiant un étalon en même temps que l'échantillon. La comparaison de la radioactivité induite a été mesurée avec un scintillateur gamma. Pour les irradiations d'une durée jusqu'à trente minutes on a utilisé le canal pneumatique du laboratoire. De telles irradiations ont été effectuées pour l'argent, le vanadium, le cuivre, le chlore, l'iode, le sodium et le manganèse. Pour le reste des éléments une période d'irradiation de 8 heures a été choisie. Le flux de neutrons de la pile Democritus était de 2×10^{11} n/cm² s.

Pour le chlore, le sodium et l'argent, on a appliqué la méthode de l'analyse par activation non destructive. L'activité induite pour l'argent 110, le chlore 38 et le sodium 24 a été mesurée directement par un cristal de 3×3 inch d'iodure de sodium activé au thallium d'un analyseur à 400 canaux.

Des séparations radiochimiques rapides basées sur la technique d'extraction par un solvant ont été effectuées pour l'arsenic, le cuivre, l'or, le rhénium, le vanadium et le zinc. Après l'irradiation les radioéléments produits, avec leurs entraîneurs respectifs ajoutés, ont été extraits de la manière suivante: l'arsenic, comme bromure d'arsenic dans le benzène à partir d'acide sulfurique 6,5M; le vanadium et le cuivre, combinés avec du cupferron dans le chloroforme à partir d'acide chlorhydrique 1,2M; le zinc et le rhénium, comme chlorures dans 70% en volume de tributylphosphate dans du benzène à partir d'acide chlorhydrique 4M; l'or comme chlorure dans l'acétate d'éthyle à partir d'acide chlorhydrique 6M. Les radioéléments induits avec leurs entraîneurs ont été extraits de nouveau en phase aqueuse, précipités avec le réactif approprié et mesurés par spectrométrie gamma. La durée de l'analyse variait de 5 à 20 minutes selon l'élément.

Pour le reste des éléments, des opérations de décontamination fondées sur les techniques de précipitation ont été utilisées.

L'abondance des éléments déterminés dans les différents lacs varie selon l'élément et le lac. Les valeurs obtenues sont présentées dans des tableaux.

A/854 Греция

Определение следов элементов в озерах Греции методом нейтронного активационного анализа

А. Н. Греманис et al.

Ядерные реакторы являются обильными источниками нейтронов, вызывающих (n, γ)-реакции. Используя реактор «Демокрит» и анализ с помощью нейтронной активации, авторам удалось определить следы 14 элементов в водах 11 наиболее важных озер Греции.

Целью настоящей работы явилось измерение и сравнение стабильных элементов, присутствую-

ющих в основных озерах страны в микрограммовых и меньших количествах для а) накопления и расширения знаний о содержании следов элементов в озерах Греции; б) установления геологического значения определяемых элементов; в) получения данных о биологическом действии этих элементов на организмы озер.

Пробы воды для анализа брались с поверхности и с глубины 5 или 15 м каждого озера. Отбор проб производился в период с 16 июля по 14 августа 1963 года. Исследованы следующие 14 элементов: серебро, золото, мышьяк, барий, бром, хлор, медь, иод, калий, марганец, натрий, рений, ванадий и цинк.

Количественный анализ на элементы, присутствовавшие в каждой пробе, проводился с помощью одновременного облучения стандартного образца и пробы. Наведенная радиоактивность измерялась с помощью сцинтиллятора гамма-излучения. Для облучений длительностью 30 мин использовалась пневмоочта в лаборатории. Подобные облучения были проведены для серебра, ванадия, меди, хлора, иода, натрия и марганца. Для остальных элементов был выбран период облучения в течение 8 ч. Поток нейтронов в реакторе «Демокрит» составлял $2 \cdot 10^{11}$ нейтр/см² · сек.

Для хлора, натрия и серебра применялся метод активационного анализа без разрушения. Наведенная активность для серебра-110, хлора-38 и натрия-24 измерялась непосредственно на кристалле иодида натрия размером $7,62 \times 7,62$ см, активированного таллием, на 400-канальном анализаторе.

Быстрое радиохимическое разделение, основанное на методе экстракции растворителем, проводилось для мышьяка, меди, золота, рения, ванадия и цинка. Полученные после облучения радиоактивные элементы вместе с соответствующими добавленными носителями извлекались следующим методом: мышьяк в виде раствора бромистого мышьяка в бензоле из 6,5 M раствора серной кислоты; ванадий и медь в виде медной соли железной кислоты в хлороформе из 1,2 M раствора соляной кислоты; цинк и рений в виде хлоридов в растворе 70 об. % трибутилфосфата в бензоле из 4 M раствора соляной кислоты; золото в виде хлорида в растворе этилацетата из 6 M раствора соляной кислоты. Радиоактивные элементы вместе со своими носителями снова извлекались в водной фазе, осаждались соответствующим реактивом и измерялись гамма-спектрометрическим методом. Анализ в целом проводился в течение 5—20 мин в зависимости от элемента.

Для остальных следов элементов использовалась дезактивация, основанная на методе осаждения.

Количество определяемых элементов в различных озерах изменялось в зависимости от элемента и озера, полученные величины указаны в таблицах.

A/854 Grecia

Determinación de trazas de elementos en las aguas de los lagos griegos por análisis por activación con neutrones

por A. P. Grimanis *et al.*

Los reactores nucleares son fuentes abundantes de neutrones para la producción de reacciones (n, γ). Empleando el reactor « Democritus » ha sido posible aplicar el análisis por activación con neutrones para la determinación de 14 elementos en las aguas de los 11 lagos más importantes de Grecia.

El propósito de este estudio fue determinar y comparar los elementos estables presentes en las aguas de cada lago en cantidades del orden de microgramos y submicrogramos con el fin de: a) ampliar y extender nuestro conocimiento sobre la abundancia de los elementos trazas presentes en los lagos, b) aclarar la importancia geológica de los elementos investigados, c) extender este estudio a los organismos de los lagos y obtener información relativa a su efecto biológico.

Las muestras analizadas fueron tomadas de la superficie y de profundidades de 5 ó 15 metros en el punto más profundo, de cada lago, de distintos puntos de Grecia. La toma de muestras se realizó del 16 de julio al 14 de agosto en 1963. Los 14 elementos investigados fueron: plata, oro, arsénico, bario, bromo, cloro, cobre, yodo, potasio, manganeso, sodio, renio, vanadio y cinc.

El análisis cuantitativo de los elementos citados anteriormente presentes en las muestras se realizó por irradiación de un patrón junto con las muestras desconocidas. La comparación de la radiactividad inducida se realizó por espectrometría gamma. Para irradiaciones de hasta 30 minutos se empleó la insta-

lación neumática de nuestro laboratorio. Estas irradiaciones se realizaron para plata, vanadio, cobre, cloro, yodo, sodio y manganeso. Para el resto de los elementos se escogió un período de irradiación de 8 horas. El flujo neutrónico del reactor « Democritus » era de 2×10^{11} n/cm²s.

Se utilizó la técnica de análisis por activación no destructivo para plata, cloro y sodio. La actividad inducida de plata-110, cloro-38 y sodio-24 se midió directamente con un cristal de yoduro sódico activado con talio de 3×3 pulgadas y un analizador de 440 canales.

Se realizaron separaciones radioquímicas rápidas basadas en técnicas de extracción por disolventes para arsénico, cobre, oro, renio, vanadio y cinc. Después de la irradiación los radionúclidos producidos junto con sus respectivos portadores, añadidos previamente, fueron extraídos de la forma siguiente: el arsénico en benceno como bromuro a partir de soluciones de ácido sulfúrico 6,5M. El vanadio y el cobre en cloroformo como cupferratos a partir de soluciones de ácido clorhídrico 1,2M. El cinc y el renio como cloruros, en soluciones del 70% de fosfato de tributilo normal en benceno, a partir de soluciones de ácido clorhídrico 4M, y el oro como cloruro, en acetato de etilo a partir de soluciones de ácido clorhídrico 6M. Los radioelementos junto con sus portadores fueron reextraídos a la fase acuosa, precipitados con reactivos apropiados y medidos por espectrometría gamma. El tiempo empleado en cada análisis total es de 5 a 20 minutos, dependiendo del elemento.

Para los restantes elementos se realizaron etapas de descontaminación basadas en técnicas de precipitación.

La abundancia de los elementos trazas determinados en los lagos varía según el elemento y el lago, y se han tabulado los valores encontrados.

Two radioactive sources used in an unconventional way

By T. Cless-Bernert, K. Duftschmid and N. Getoff *

A. RADIOGRAPHY WITH SPECIOUS SOURCES OF RADIOACTIVE LIQUIDS OR GASES

(T. Cless-Bernert and K. Duftschmid)

In order to obtain good radiographic resolution, the desire of every radiographer is a high specific activity in sources of minimum size.

Therefore, it seems rather surprising that radiographs of satisfactory quality can be obtained with sources which are extended over the whole volume of the object examined.

By using nuclides emitting very soft γ -rays we have been able to get good reproductions of weldings and corrosion marks in tubes of different material and over a wide range of wall thickness, when tubes were filled with a radioactive gas or liquid. Because of the softness of the radiation, slight variations in thickness of the absorbing material produce large differences in radiation transmission and, therefore, clear contrasts on the radiographic film. Compared with this effect, the loss of resolution due to the large extent of the source seems to be of little importance.

Results obtained with ^{166}Ho and ^{133}Xe are shown respectively in Fig. 1 and Fig. 2.

To compare the quality of radiographs taken with liquids and gases with those achieved by conventional methods, tubes were taken with well defined variations in wall thickness. An aluminium tube of 6 mm wall thickness was prepared with 8 rings on the outside of the tube, each ring 2 mm wide and a gradually increasing thickness from 0.1 to 0.8 mm.



Figure 1. Radiography of a welding of an 0.3 aluminium tube filled with a ^{166}Ho solution

Figures 3 and 4 show the radiographs taken with ^{166}Ho and ^{133}Xe respectively. All the rings can easily be detected, even the 0.1 mm one, and the contours of the rings are clearly visible. To simulate conditions which may be found when looking for corrosion marks, rings of similar sizes as above were carved from inside into a steel tube of 3 mm wall thickness. The radiograph taken with ^{166}Ho is shown in Fig. 5. Also in this case all the carvings are clearly detectable, in spite of the fact that the radiographic resolution is poorer, because of the larger distance between the source and the photographic film. Since for the inspection of possibly corroded tubes, the detection of even small holes in the tube wall is of more impor-

* Österreichische Studiengesellschaft für Atomenergie G.m.b.H., Vienna VIII.



Figure 2. A 4.0 mm steel tube filled with ^{133}Xe

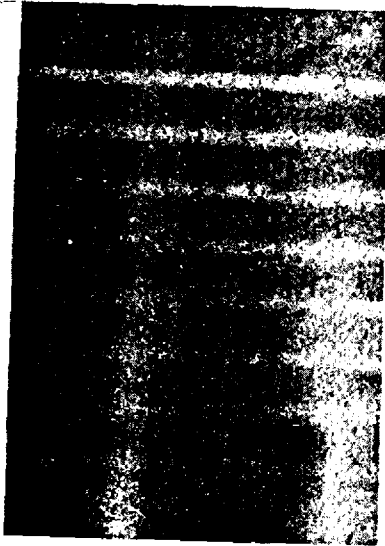


Figure 3. Test tube filled with ^{166}Ho of wall thickness 6.0 mm aluminium, with 8 rings on the outside of the tube wall. Width of each ring: 2.0 mm; thickness of rings: from 0.1 to 0.8 mm

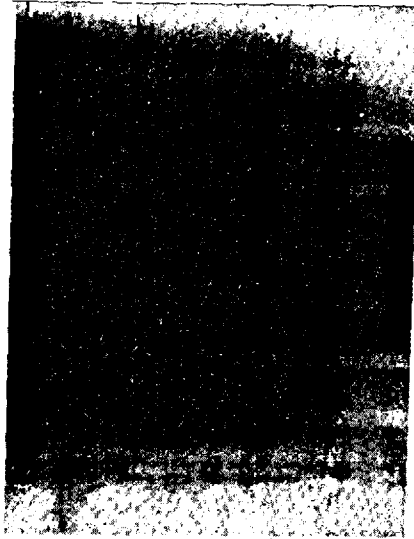


Figure 4. Same tube filled with ^{133}Xe

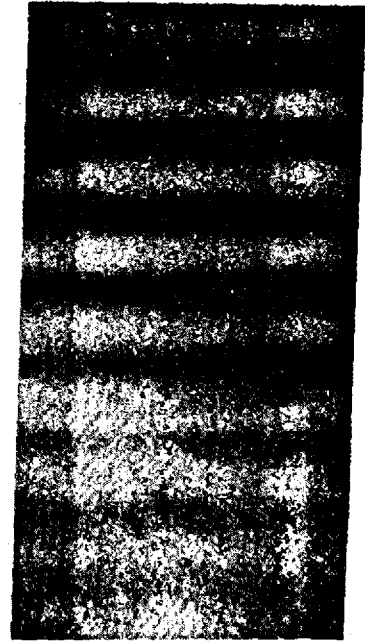


Figure 5. Test tube of 3.0 mm steel. Rings carved into wall inside tube. Source: solution of $\text{Ho}_2(\text{NO}_3)_2$

tance than a clear reproduction of the exact shape of these holes, the results obtained by this method are suitable for this purpose.

The development of the method described originated from a practical need to obtain information about the rate of corrosion in steam vessels in a sugar plant.

Since, in this type of factory, production goes on only during part of the year, machinery might possibly be attacked by corrosion during the silent period. In steam vessels small amounts of retained water can accumulate in the downward bends of the tube system inside the vessel, thus making this part of the system



Figure 6. Inside of a steam vessel. Non-destructive inspection of blocks of narrow tubes cannot be carried out by conventional means

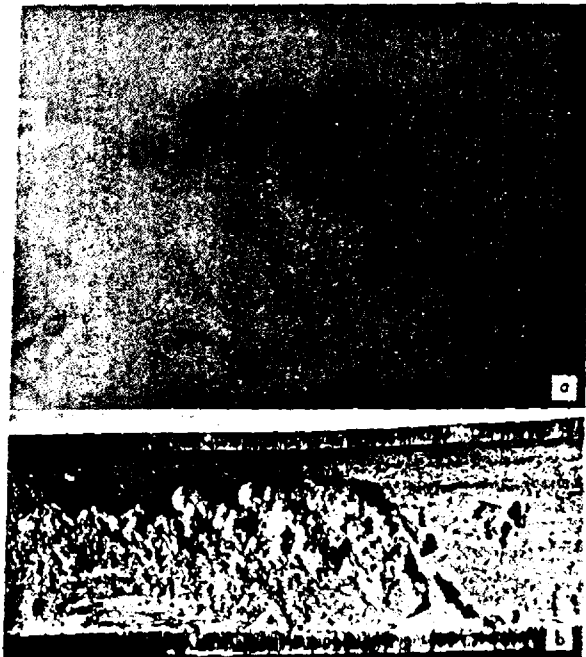


Figure 7. Radiograph (a) and photograph (b) of one tube of the block shown in Fig. 6. The corrosion area seen on the radiograph can easily be identified with the defects found in the tube wall after it had been sectioned

especially endangered by corrosion. As the examination of blocks of narrow tubes (Fig. 6) cannot be carried out by conventional non-destructive methods, the lower part of the tubes in the whole block is cut off and replaced every second or third year.

On investigating these cut-off ends it is found that only 30-40% of the tubes really had to be replaced, whereas the remainder were found unaffected by corrosion. By inserting a quantity of ^{166}Ho solution into each tube, so that the suspect parts of U-shape bends were filled with the radioactive liquid, the corroded tubes could be readily identified by means of radiography.

B. A MEGARAD BETA-IRRADIATION SOURCE

In conventional γ -irradiation facilities only a small percentage of the intensity and energy of the radiation emitted from the source is really utilized for the irradiation purpose whereas a greater amount of radiation is absorbed in the shielding material around the source.

For the radiation treatment especially of liquids or gases, but also for the surface irradiation of other objects of suitable size a tubeshaped β -source has been developed. Due to this geometrical arrangement and the much higher density of ionisation of β -particles, a high dose rate can be obtained with sources of relatively low activity.

A further advantage of this type of source compared with γ -sources yielding the same dose rate is the great decrease in shielding material and, therefore, much lower costs of this device.

A disadvantage might be in some cases the small volume in which an evenly distributed dose can be obtained by β -ray absorption, which is also dependent on the density and the atomic number of the object irradiated.

The liquid which is to be treated is filled into the tube or is passed through it and is irradiated whilst inside the active part of the tube.

In order to prevent contamination of the liquid the β -source has to be protected by a thin sheet of material whose weight per unit area is low enough to absorb the β -radiation as little as possible.

We have found that in high quality stainless steel as e.g., an austenitic chromium-nickel-molybdenum alloy steel* in combination with $^{90}\text{Sr} : ^{90}\text{Y}$ fulfils the desired requirements sufficiently.

When constructing the first experimental source $^{90}\text{Sr} : ^{90}\text{Y}$ was deposited on a platinum foil of $5\text{ cm} \times 3.3\text{ cm}$ by molecular plating [1]. Platinum was taken not only for chemical and technical reasons but also to increase the dose rate by making use of the high backscattering effect.

The foil was wrapped around the centre part of

Figure 7 shows one of the defective tubes, (a) the radiograph, and (b) the photographic view of the same tube after sectioning. The corrosion area seen on the radiograph can easily be identified by the deformations shown in Fig. 7 (b). The wall thickness of the tubes examined was 3 mm and the maximum depth of the defect shown was 0.8 mm.

The specific activity used was about 30 mc/l, the exposure time was 15 h. Because of the softness of radiation and rather short half-life of ^{166}Ho of 27.3 h, the arrangements necessary for radiation protection were simple.

a stainless steel tube of 26 cm length and about 11 mm diameter, which was thinned down in the middle on a lathe to 0.1 mm wall thickness. This thin-walled central section of the tube was 5 cm long (Fig. 8). The leak-tightness of the steel tube after thinning was tested by the helium mass spectrographic method. Since there is a considerable amount of *Bremsstrahlung* emitted, the active part of the tube was covered by a lead shield several centimetres thick. The cover of the source was rendered leak-proof by means of two tightly fitting brass cones welded onto the steel.

Liquid can be pumped into the source by means of PVC tubes mounted on the ends of the steel tube.

The activity applied on our first model was only about 300 mc, the dose rate obtained over a volume of 4 ml was 44 krad/h. It may be mentioned that the output of a conventional 600 curie ^{60}Co source amounts to 66 krad/h obtained over a volume of 750 ml.

The dose was measured by means of a Fricke dosimeter solution which was filled into a thin bag of PVC of a few mg/cm^2 surface density and pushed into the active part of the steel tube. The dose rate obtained was in good agreement with the calculated value.

A long-term test was carried out with phosphoric acid circulating through the source. The unit has been in operation continuously since April 1964, the liquid being in permanent contact with the source. So far, no trace of strontium contamination has been detected.

In spite of those good results, experiments were carried out in order to increase the dose rate, the volume available for irradiation and also the safety of the device.

A rectangular irradiation cell was tried out, covered with sheets of stainless steel 0.075 mm thick, the source consisting of strontium titanate incorporated in a thin layer of enamel on a copper foil which was mounted on both sides of the cell (Fig. 9). Thin parti-

* Stainless steel MASO, Schoeller-Bleckmann Stahlwerke AG, Ternitz, Austria.

tion walls provide an even flow of the liquid through the cell whose depth is about the β -range within the liquid. A dose rate of 1 mrad/h is easily obtained with this device.

A third model containing a thin layer of granulated strontium titanate between two sheets of stainless steel is shown in Fig. 10 (a) and (b). Here a number of cells are mounted beside each other allowing a utilization of radiation of the disc-shaped source over a solid angle of almost 4π . The output of this type of source is about 1 mrad/h/curie or more, depending on the thickness of active material invested.

The cells can be mounted in line or in parallel, depending on the dose and the volume required.

With this model, irradiations on a technical scale appear possible and because of the much lower toxicity of the highly insoluble strontium titanate, its application for the sterilization of liquid food or pharmaceutical goods might be considered.

REFERENCES

1. Parker, W., Bildstein, H., Getoff, N., Fischer-Colbric, H., and Regal, H., Nucl. Instr. Methods 26, 61, (1964).

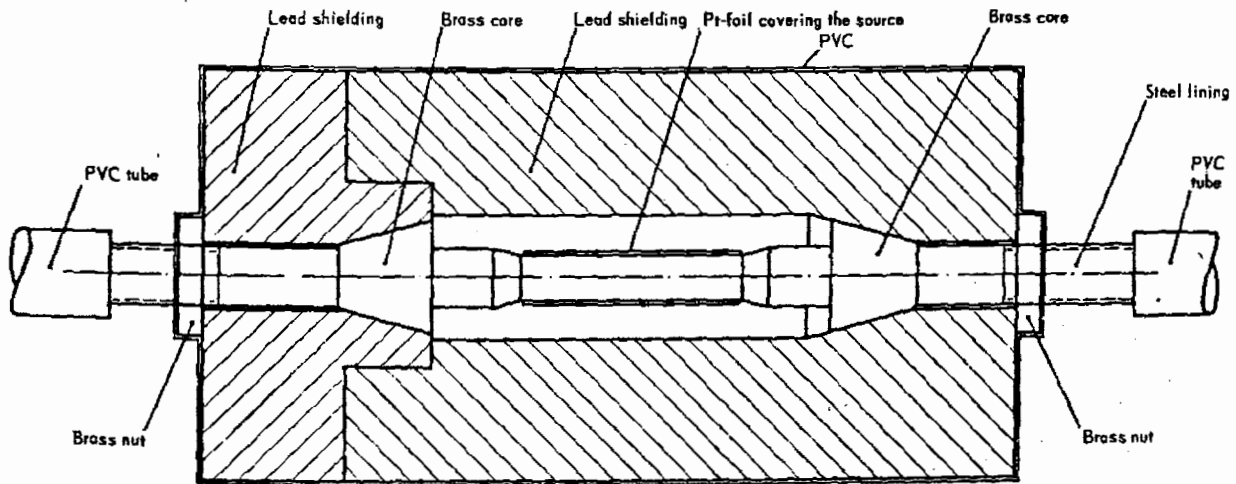


Figure 8

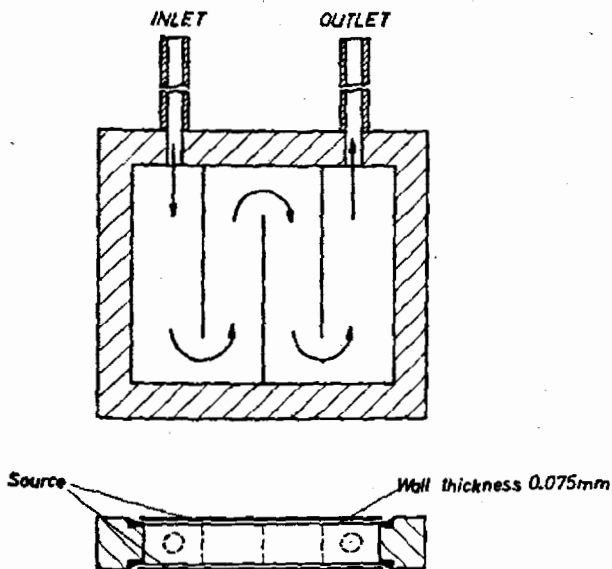
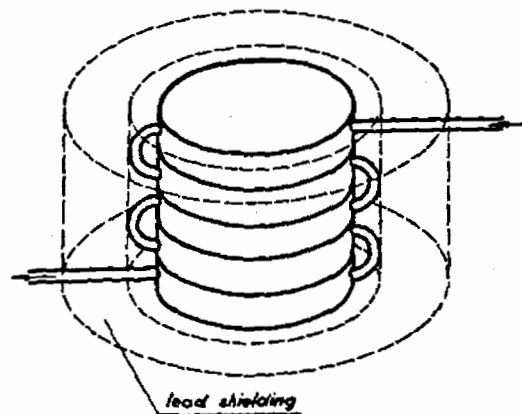


Figure 9. Beta-irradiation chamber



a



b

Figure 10 (a) and (b). Set of irradiation cells

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/862 Autriche

Deux sources radioactives utilisées d'une façon originale

par T. Cless-Bernert et al.

A. Radiographie avec des sources spéciales sous forme liquide ou gazeuse

Dans les cas où les méthodes classiques de radiographie ne sont pas applicables, par exemple pour l'examen des blocs de tuyaux dans des chaudières vapeur, on décrit une nouvelle méthode utilisant des sources radioactives liquides ou gazeuses. En utilisant des émetteurs gamma très mous, on obtient des radiographies de qualité suffisante des soudures, des défauts dus à la corrosion et des dépôts à l'intérieur des tuyaux. La méthode a été utilisée en pratique pour examiner la vitesse de corrosion des chaudières à vapeur d'une raffinerie de sucre.

B. Doses de l'ordre du mégarad obtenues avec une source bêta

Pour la stérilisation ou le traitement par irradiation de liquides, de gaz ou d'autres produits, une source de strontium 90 en forme de tube a été construite.

Grâce à cette forme géométrique et à la densité d'ionisation des rayons bêta par rapport aux rayons gamma on obtient d'intenses doses d'irradiation avec des activités relativement peu élevées. Ce type de source peut être d'un grand intérêt économique, parce que les problèmes de protection sont plus faciles à résoudre avec des sources bêta, même s'il y a un grand pourcentage de rayonnement de freinage.

A/862 Австрия

Два источника радиоактивного излучения, применяемые необычным способом

Т. Клесс-Бернерт et al.

A. Радиография с помощью жидких или газообразных радиоактивных источников

Дается описание нового метода радиографии с использованием радиоактивных жидкостей или газов. Метод применяется в тех случаях, когда нельзя использовать обычные методы радиографии, например для проверки блоков узких труб внутри паровых котлов. С помощью очень мягких β -излучателей можно получить достаточно четкие радиограммы участков сварки, коррозионных дефектов и отложений внутри труб. Этот метод использовался

на практике для изучения скорости развития коррозии в паровых котлах сахарного завода.

B. Источник бета-излучения мощностью порядка мегарад

Для стерилизации, радиационной обработки жидкостей и газов или других подходящих объектов построен трубчатый источник Sr^{90} . За счет такой геометрии и значительно более высокой плотности ионизации β -излучения по сравнению с γ -излучением можно получить более высокие дозы облучения при относительно малом уровне активности. Поскольку при использовании β -источников значительно легче решаются проблемы экранирования даже при высоком содержании тормозного излучения, этот тип источников имеет большую экономическую ценность.

A/862 Austria

Dos fuentes radiactivas no utilizadas de manera normal

por T. Cless-Bernert et al.

A. Radiografía con fuentes especiales de líquidos o gases radiactivos

Se describe un nuevo método radiográfico, que utiliza gases o líquidos radiactivos con los que se llena el objeto que se va a inspeccionar, para aquellos casos en que no se puedan utilizar los métodos radiográficos normales; por ejemplo, para inspeccionar haces de tubos delgados dentro de generadores de vapor. Utilizando emisores γ de baja energía, se pueden obtener radiografías de la calidad satisfactoria de las soldaduras, defectos de corrosión y depósitos en el interior de los tubos. El método se ha utilizado en la práctica para examinar la velocidad de corrosión en los cambiadores de calor de una azucarera.

B. Una fuente beta del orden del megarad

Se ha construido en forma de tubo una fuente de ^{90}Sr destinada a esterilizar o irradiar líquidos y gases y otras materias.

Por medio de esta forma geométrica y aprovechando que la densidad de ionización de los rayos β es mayor que la de los rayos γ , se consiguen dosis de irradiación elevadas con cantidades relativamente pequeñas de actividad. Como los problemas de blindaje de las fuentes β tienen solución mucho más fácil, aún en el caso de que haya un porcentaje elevado de bremsstrahlung, la utilización de este tipo de fuente puede que sea muy económica.

О научно-исследовательской деятельности по использованию атомной энергии в мирных целях в Народной Республике Болгарии* (Обзорный доклад)

Г. Наджаков **

1. Начало первых исследований в Болгарии в области атомной физики и радиоактивности следует отнести к 1910 г. С помощью простой, оригинальной и самобытной научной аппаратуры были произведены очень точные измерения радиоактивности болгарских минеральных вод. В дальнейшем, до и после второй мировой войны, эти измерения были продолжены и расширены.

Большие перспективы для быстрого развития исследований, связанных с использованием атомной энергии в мирных целях в Болгарии, открылись в 1956 г., когда Советский Союз выразил готовность оказать нам помощь в мирном использовании атомной энергии и был заключен договор о поставке ядерного реактора и оказании содействия в подготовке кадров.

Постепенно были созданы сравнительно хорошо оснащенные лаборатории и секции при Физическом институте с Атомной научно-экспериментальной базой Болгарской Академии наук при Физическом факультете Софийского государственного университета и при некоторых других научных и отраслевых институтах и предприятиях. Сооружен исследовательский реактор ПРТ-1000. Создана и оборудована высокогорная станция для исследования космических лучей на вершине Мусала, на высоте 2925 м над уровнем моря.

Исследования по ядерной физике в Болгарии проводятся преимущественно в лабораториях Физического института с Атомной научно-экспериментальной базой (АНЭБ) Болгарской

АН и Физического факультета Софийского государственного университета.

2. Реактор ПРТ-1000 вблизи Софии вступил в эксплуатацию 9 ноября 1961 г. Этот реактор поставлен Советским Союзом. Его строительство и монтаж осуществлены при непосредственной помощи и под руководством советских специалистов. Он отличается от своего прототипа ПРТ-1000 в Москве тем, что управление у него полностью автоматизировано.

Реактор ПРТ-1000 в Софии используется для:

- 1) нейтронно-физических измерений и изучения кинетических характеристик реактора,
- 2) исследований по ядерной физике,
- 3) исследований действия ядерных излучений на твердые тела,
- 4) биологических исследований.

Кроме этого, на нем производятся радиоактивные изотопы.

Исследования режима работы ПРТ-1000 охватывают следующие вопросы:

- 1) кинетика реактора,
- 2) тепловыделение в наиболее плотных начальных слоях биологической защиты,
- 3) теплотехнические исследования активной зоны,
- 4) поведение графита в нейтронном поле,
- 5) очистка дистиллята первичного циркуляционного контура с помощью ионитов.

ИЗУЧЕНИЕ НЕЙТРОННО-ФИЗИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ИРТ-1000

После ввода в действие реактора ПРТ-1000 были измерены величины потоков тепловых, резонансных и быстрых нейтронов в активной зоне и экспериментальных каналах реактора при мощности 1000 кет. Для этой цели использовались активационный метод и метод пороговых детекторов. Абсолютные измерения тепловых и резонансных нейтронов произведены тонкими золотыми и индиевыми фольгами. Для измерения β -активности последних были сконструированы 4л-счетная установка и сцин-

* Этот обзорный доклад рассчитан на то, чтобы дать возможность участникам III Международной научной конференции по мирному использованию атомной энергии в Женеве ознакомиться в общих чертах с научно-исследовательской и прикладной деятельностью, проводимой в этой области в Народной Республике Болгарии.

Часть этих исследований опубликована в научных сообщениях; другие будут опубликованы в ближайшем будущем.

** Физический институт с Атомной научно-исследовательской базой Болгарской АН и Комитет по мирному использованию атомной энергии при Совете Министров Народной Республики Болгарии.

тилляцияционная установка β — γ -совпадений. В качестве резонансных детекторов использовались медь, натрий и марганец: с целью измерения потоков и спектров быстрых нейтронов в настоящее время разрабатывается групповой метод с применением системы пороговых детекторов: серы, фосфора, магния, алюминия и др.

Для быстрого и точного измерения относительного распределения потока тепловых нейтронов в реакторе разработана специальная установка для автоматической регистрации активности облученных проволок. В ходе работы использовались также некоторые новые измерительные методы и установки, применяемые в реакторных измерениях:

а) установка для автоматической регистрации активности проволок, активированных в реакторе;

б) коронные счетчики для нейтронных измерений;

в) диффузионная камера Вильсона пониженного давления.

ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКАЯ ДЕЯТЕЛЬНОСТЬ

Исследования деления тяжелых ядер под действием нейтронов

На одном из горизонтальных каналов реактора проводятся исследования спектра скоростей осколков деления U^{235} и спектра скоростей мгновенных нейтронов деления в зависимости от угла между направлением вылета нейтронов и направлением разлета осколков. В связи с этой задачей разработан и построен сцинтилляционный спектрометр по времени пролета, работающий в наносекундной области с преобразованием времени в амплитуду.

Для исследования энергетических и угловых распределений осколков деления и изучения связанных с ними энергетических и угловых распределений мгновенных нейтронов и γ -излучения была создана двойная импульсная ионизационная камера со сбором электронов. Одновременная регистрация и измерение импульсов с собирающих электродов и одной из сеток или высоковольтного электрода позволяет определить энергии, скорости и массы двух осколков, а также угол вылета осколков к направлению электрического поля камеры. Расположение детектора нейтронов или γ -излучения дает возможность определить и угол между направлением вылета осколков и направлением зарегистрированного нейтрона или γ -кванта.

Для изучения захватного γ -излучения был изготовлен и испытан двухканальный сцинтилляционный γ -спектрометр.

Кроме выполнения этих трех задач ведется подготовка к исследованиям на горизонтальных каналах ПРТ-1000 тройного деления ядер, неупругого рассеяния медленных нейтронов на конденсированных системах, а также эффекта Мёссбауэра.

Фотоядерные реакции

С ядерными фотоэмульсиями, облученными на синхротроне Лаборатории рентгеновского и γ -излучения Ленинградского физико-технического института АН СССР им. А. Ф. Иоффе, были проведены некоторые исследования реакций $Ca^{40}(\gamma, p) K^{39}$ и $Al^{27}(\gamma, p) Mg^{26}$.

Получены энергетические и угловые распределения протонов в реакции $Ca^{40}(\gamma, p) K^{39}$ при $E_{\gamma_{max}} = 22$ Мэв. В энергетическом распределении найдена тонкая структура. Проводятся исследования при $E_{\gamma_{max}} = 16, 19, 28$ и 60 Мэв. Исследованы также выходы и сечение той же реакции в области гигантского резонанса.

Исследование реакции $Al^{27}(\gamma, p) Mg^{26}$ проведено при $E_{\gamma_{max}} = 60$ Мэв.

В энергетическом распределении, построенном по методу Ферейры — Волошка с использованием приблизительно 8500 протонных следов, также наблюдается тонкая структура.

Исследования радиоактивности почв, вод и воздуха

Как уже было упомянуто вначале, исследования радиоактивности минеральных источников в Болгарии начались еще 50 лет назад в Софийском государственном университете. С 1954 г. эти исследования были продолжены в Физическом институте с АНЭБ Болгарской АН, причем они были расширены исследованиями радиоактивности осадков и атмосферных аэрозолей.

В 1956 г. была создана небольшая радиохимическая лаборатория и стало возможным определять уран в водах, а также радон, торон и радий в различных видах ила, гризи и почв. Исследована была радиоактивность водных источников не только в районах термоминеральных вод, но и в более обширных районах в связи с решением проблем здравоохранения, гигиенизацией водоснабжения и т. д.

Исследования упругого рассеяния частиц высоких энергий фотоэмульсионным методом

В Физическом институте с АНЭБ Болгарской АН и на кафедре физики Химико-технологического института в Софии производится просмотр ядерных эмульсионных камер, облученных на синхрофазотроне Объединенного института ядерных исследований в Дубне (СССР) по методу перпендикулярного облучения. Изу-

чается рассеяние протонов на протонах и протонах на дейтронах при $6,2 \text{ Гэв}$ и μ -мезонов на протонах при 4 Гэв . Результаты этих исследований публикуются.

Исследования космического излучения

Подготовка к исследованиям космических лучей в Болгарии началась в 1955 г., когда была создана соответствующая секция при Физическом институте с АНЭБ Болгарской АН. Сначала секция не располагала необходимыми лабораторными помещениями и установками. Лучшие условия для работы создались в 1959 г. благодаря сооружению для нужд секции Высокогорной космической станции на вершине Мусала. По своей высоте над уровнем моря (2925 м) и по условиям работы эта станция является одной из лучших в Европе.

Создание Космической станции способствовало развитию в сравнительно быстром темпе этого раздела физики в нашей стране. Этому благоприятствовало также тесное сотрудничество, установившееся между нашей Секцией космического излучения и Отделением исследования космических лучей при Центральном исследовательском институте физики Венгерской Академии наук.

Ныне секция располагает необходимыми условиями для проведения исследований на современном научном уровне по двум обширным проблемам физики космических лучей, а именно:

- 1) взаимодействию элементарных частиц при высоких и сверхвысоких энергиях и
- 2) вариациям в интенсивности космического излучения.

На основании исследований, проведенных до сих пор, научными сотрудниками секции опубликовано в общем 22 научные работы. Более значительные вклады имеются в исследованиях широких атмосферных ливней и поглощений ядерно-активных частиц космического излучения. Ожидается, что проводимые в настоящее время эксперименты позволят получить в этом и в будущем году новые важные результаты о сечении неупругого взаимодействия нуклонов при энергиях до 100 Гэв , о поглощении ядерно-активных частиц в воздухе, зенитном распределении частиц высоких энергий, виде спектра μ -мезонной компоненты широких атмосферных ливней, о вариациях жесткой и нейтронной компонент космического излучения и т. д.

Исследования по действию ядерных излучений на полупроводники и диэлектрики

Исследованы изменения в полиэтилене, облученном на ядерном реакторе инфракрасными абсорбционными спектрами. При разработке методики этих исследований получены некоторые новые результаты. Найден метод определения изменения кристаллической структуры в этилене с помощью инфракрасных абсорбционных спектров.

Изучаются также свойства спеченной окиси цинка, облученной γ -лучами на одном из вертикальных каналов реактора ПРТ-1000, и сульфида кадмия в качестве счетчика и детектора ионизирующих излучений.

Теоретические исследования в области ядерной физики и элементарных частиц

Теоретические исследования атомного ядра и элементарных частиц проводятся Секцией по теории поля и элементарных частиц при Физическом институте с АНЭБ Болгарской АН и кафедрой теоретической физики при Физическом факультете Софийского государственного университета. С тем чтобы дать некоторое представление о характере этих исследований, ниже приводятся лишь заглавия некоторых из задач, по которым велась работа в Болгарской Академии наук в течение 1963 г.:

- 1) о проблеме масс элементарных частиц и их изобарных состояний;
- 2) о возможностях исследования взаимодействия нейтронов с веществом;
- 3) о принципиально возможных связях квантовой теории с экспериментом;
- 4) действительная часть амплитуды упругого $K^{\pm} - p$ -рассеяния.

ИССЛЕДОВАНИЕ И ПРИМЕНЕНИЕ ЯДЕРНЫХ ИЗЛУЧЕНИЙ И РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ В МИРНЫХ ЦЕЛЯХ

Научные исследования и применение радиоактивных изотопов в химии

Применение радиоактивных изотопов в химии все еще весьма ограничено. Метод радиоактивных индикаторов использовался для решения некоторых физико-химических проблем.

Разработан новый вариант так называемого дифференциального изотопного метода исследования поверхности адсорбентов и катализаторов с целью решения вопроса, является эта поверхность однородной или неоднородной.

С помощью радиоактивных индикаторов исследовано включение примесей в процессы кристаллизации с тем, чтобы выяснить закономерности в некоторых особых случаях. Так, например, исследовалась очистка KNO_3 методом зонной плавки от Sr^{89} , который является неизоморфной прибавкой.

Проводятся исследования по включению сульфатных ионов (S^{35}) в процессе кристаллизации кальцита ($CaCO_3$).

Научные исследования и применение радиоактивных изотопов в медицине

В Болгарии радиоактивные изотопы и ядерные излучения нашли сравнительно более широкое применение в медицинских исследованиях и медицинской практике.

Лаборатория по применению радиоактивных изотопов в экспериментальной медицине при кафедре фармакологии Института специализации и усовершенствования врачей в Софии с 1959 г. работает над отдельными вопросами в области следующих проблем:

- 1) исследование влияния различных факторов на обмен веществ в организме;
- 2) изучение изменения радиоактивности организма под влиянием некоторых нейротропных веществ в условиях радиационного поражения;
- 3) испытание защитного действия некоторых веществ против радиации;
- 4) возможности использования радиоактивных веществ для исследования технологических свойств некоторых лекарственных форм;
- 5) биологические исследования при помощи изотопов в Болгарии радиоактивных изотопов.

В деятельности Научно-исследовательского института гематологии и переливания крови можно указать на две проблемы, имеющие непосредственную связь с использованием атомной энергии в мирных целях:

- 1) лечение острой лучевой болезни и
- 2) применение радиоактивных индикаторов в гематологических исследованиях.

При кафедре патологической физиологии Высшего медицинского института в Софии уже в течение восьми лет ведется работа по изучению влияния различных ионизирующих излучений на организм человека и животных с целью изучения патогенеза, клиники, лечения и профилактики заболеваний, вызванных ионизирующими излучениями.

Продолжается исследовательская работа по следующим более конкретным вопросам:

- 1) повышение стойкости организма к действию ионизирующей радиации;
- 2) распределение железа в крови после спленэктомии;
- 3) фосфорилирование в эритроцитах облученных животных;
- 4) стрептококковый органотропизм у облученных и необлученных животных, исследованных с помощью автогисторадиографии;
- 5) введение P^{32} в миокард при экспериментальном миокардите;
- 6) количественное определение циркулирующей крови при экспериментальном миокардите с применением P^{32} и J^{131} ;
- 7) определение скорости кровообращения при экспериментальном миокардите с помощью Na^{24} .

При кафедре рентгенологии и радиологии Высшего медицинского института в Софии проводятся следующие исследования в области диагностики:

- 1) исследование функционального состояния щитовидной железы с помощью радиоактивного иода путем непосредственного измерения счетчиком Гейгера — Мюллера; намечается также начать эти исследования при помощи скинтилляционного счетчика;

- 2) исследование новообразований на коже, языке, губах, глазном яблоке с применением P^{32} ;

3) скинтилляграфические исследования щитовидной железы, печени, желчных путей и нервной системы при помощи бенгальского розового, меченного J^{131} , и коллоидного золота;

4) функциональное исследование печени при помощи бенгальского розового и почек при помощи диодраста, меченных J^{131} .

В области лечения радиоактивными изотопами делается следующее:

1) лечение тиреотоксикоза с помощью радиоактивного иода;

2) лечение теплых и горячих узлов щитовидной железы радиоактивным иодом;

3) лечение рака щитовидной железы и профилактика холодных узлов щитовидной железы с помощью радиоактивного иода;

4) перспективная и послеоперационная профилактика рака с помощью радиоактивного фосфора;

5) лечение невродермитов, сухих и хронических экзем и капиллярных гемангиом аппликаторами с радиоактивным фосфором;

6) лечение эритремии и других заболеваний крови путем введения радиоактивного фосфора внутрь;

7) лечение стенокардии с помощью радиоактивного иода.

Весьма широкое применение нашли радиоактивные вещества в диагностике и лечении при кафедре рентгенологии и радиологии Института специализации и усовершенствования врачей в Софии. Параллельно с этим ведется также научная работа в этом направлении.

В круг научно-исследовательской деятельности входят главным образом вопросы применения радиоактивного иода J^{131} в исследованиях функционального состояния и при лечении заболеваний щитовидной железы; применения радиоактивного фосфора, кобальта и золота при лечении опухолевых и кожных заболеваний. В этом отношении в течение последних лет при кафедре, согласно ее научному плану, разрабатывались следующие темы:

а) изменение функционального состояния щитовидной железы под влиянием злокачественных образований и глубокой терапии рентгеновыми лучами;

б) применение коллоидного радиоактивного золота при раке молочной железы;

в) лечение *nervus flammus* с помощью радиоактивного фосфора;

г) использование радиоактивного золота при лечении рака брюшины;

д) определение функционального состояния щитовидной железы с помощью J^{131} и значение теста подавления у леченных больных.

В практической работе кафедры радиоактивные изотопы находят широкое применение. В прошлом году проведено 8245 сеансов теле-

гамматерапии аппаратом «Кобальтовая бомба». Функциональная диагностика щитовидной железы производилась с помощью радиоактивного йода у 1652 больных, а у 484 больных применялось лечение заболеваний этой железы радиоактивным иодом. В клинике сделано также 174 аппликации с радиоактивным кобальтом с лечебной целью.

В Радионуклидной лаборатории при кафедре неврологии и психиатрии Болгарской АН в Софии разрабатываются следующие основные проблемы:

- 1) изучение кровезоголевого и кровеликворного пермеабилитета у человека и у экспериментальных животных;
- 2) изучение обмена белков нервной системы в различных экспериментальных условиях;
- 3) изучение фосфолипидного метаболизма в различных экспериментальных условиях (например, в случае экспериментального аллергического энцефалита);
- 4) изучение химических изменений в нервной системе под действием некоторых медикаментов;
- 5) изучение некоторых патогенезных механизмов при различных заболеваниях нервной системы: миастении, прогрессивной мышечной дистрофии, шизофрении, циклофрении;
- 6) изучение функционального состояния щитовидной железы в некоторых неврологических и психических заболеваниях;
- 7) в сотрудничестве с соответствующими кафедрами и институтами изучаются различные проблемы в области иммуногенеза и распространения микроорганизмов (стафилококк, бледная спирохета и пр.);
- 8) изучение скорости обмена РНК и ДНК в случае неоплазии и других патологических состояний.

В лаборатории готовится меченый белок и некоторые иммуноглобулины для научно-исследовательской работы кафедр и некоторых других научно-исследовательских учреждений.

Для разрешения этих задач используются различные радиоактивные изотопы и меченые соединения, поставляемые преимущественно из СССР: J^{131} , меченый иодом белок (изготавливаемый в нашей лаборатории), P^{32} , глицин C^{14} , метионин S^{35} , глюкоза C^{14} , аденин C^{14} .

Во вновь созданном Научно-исследовательском институте радиологии и радиационной гигиены при Министерстве здравоохранения получены новые результаты в теоретической разработке следующих вопросов:

- а) защитные свойства амидиновых соединений;
 - б) электронно-кинетическое изучение активности катализа и вызванных излучением изменений этой активности *in vivo* и *in vitro*;
 - в) исследования относительной радиорезистентности антигенов и антител и возможности их использования для защиты при облучении.
- Получены также некоторые результаты, имеющие непосредственную связь с практикой.

Применение радиоактивных изотопов в радиотерапии злокачественных опухолей в Болгарии

Применение радиоактивных изотопов в этом направлении осуществляется почти исключительно путем создания широкой сети онкологических учреждений во всей стране. Ее деятельностью руководит Научно-исследовательский онкологический институт в Софии. В эту сеть входят 12 окружных онкологических диспансеров в больших окружных городах и онкологические кабинеты при городских и районных больницах. Отделами для применения радиоактивных изотопов располагают диспансеры в Бургасе, Коларовграде, Плевне, Пловдиве, Русе и Старой Загоре. Медицинская помощь в нашей стране — дело государства: она бесплатна. Полностью бесплатным и доступным для всех нуждающихся является и лечение с помощью радиоактивных веществ.

Радиологические отделения у нас сравнительно хорошо оснащены дозиметрической аппаратурой, поставляемой преимущественно из СССР, ГДР, Венгрии, Чехословакии и Польши.

Начало радиологической медицинской помощи у нас следует отнести к 1954 г., когда из СССР были введены первые аппликаторы с Co^{60} . До этого, с 1936 г., использовался радий. Применение радиоактивных изотопов (Au^{198} , J^{131} , P^{32}) в качестве открытых источников излучения и в диагностике было введено в 1957 г. В 1958 г. были поставлены первые два телегамматерапевтические аппарата ГУТ-400. Использование закрытых радиоактивных источников постепенно расширилось поставкой Ta^{182} , Ag^{110} , Zn^{65} , I^{131} , Cs^{137} , Sr^{90} и пр. Кроме аппликаторов и игл с Co^{60} начиная с 1960 г. в практику вошла и работа с Co^{60} -бусинками с золотыми фильтрами. Возможности применения радиоактивных изотопов в медицине значительно увеличились с пуском в эксплуатацию первого в Болгарии реактора ПРТ-1000.

Предстоящее развитие онкологической сети, намеченное программой мероприятий по здравоохранению населения к общему народнохозяйственному плану развития Болгарии по 1970 г., предусматривает создание четырех-пяти центральных онкологических больниц, располагающих 300—500 койками каждая, а также мощными и оборудованными современными установками, радиологическими базами, которые полностью удовлетворили бы потребности больных всей страны.

Применение радиоактивных изотопов в биологии

Биологические исследования с помощью радиоактивных изотопов и ядерных излучений ведутся в Институте растениеводства и в Центральной лаборатории генетики Академии сельскохозяйственных наук в Софии, а также на

кафедры анатомии, физиологии и биохимии растений ботанического факультета Софийского государственного университета.

Более важные задачи, по которым велись исследования в течение последних нескольких лет, следующие:

- 1) передвижение и распределение радиоактивного фосфора P^{32} в привитых растениях — дыне и тыкве;
- 2) исследование с помощью C^{14} изменений сахаров ячменя при дыхании;
- 3) исследование метаболизма аминокислот у ячменя при различной температуре;
- 4) темновой метаболизм органических веществ ячменя при различной температуре;
- 5) поглощение P^{32} озимой пшеницей в условиях различной температуры почвы в зависимости от холодостойкости сорта;
- 6) первичное включение и распределение P^{32} в зависимости от холодостойкости озимой пшеницы;
- 7) генетические и физиологические причины варьирования радиочувствительности у ячменя и кукурузы;
- 8) изучение механизма послерадиационного эффекта у облученных семян в зависимости от содержания кислорода и воды;
- 9) поглощение C^{14} листьями озимой пшеницы в зависимости от температуры;
- 10) передвижение и распределение радиоактивного углерода C^{14} у привитых растений — дыни и тыквы;
- 11) изучение передвижения радиоактивного углерода C^{14} от отдельных листьев к органам воспроизведения у томатов;
- 12) о передвижении и превращениях тиомочевины, меченой S^{35} , в клубнях картофеля;
- 13) передвижение и включение P^{32} в органические соединения при заживании пораненных клубней картофеля;
- 14) метаболизм фосфора у пораженных столбуром и здоровых клубнях картофеля при их прорастании;
- 15) идентификация ранних меченых продуктов в результате связывания CO_2 фотосинтезирующими бактериями, накапливающими поли- β -оксималяную кислоту;
- 16) фиксация CO_2 фотосинтезирующими бактериями, аутотрофная и органотрофная фиксация CO_2 ;
- 17) исследование метаболической периодичности корней культурных растений в связи с поступлением ионов.

Применение радиоактивных изотопов в народном хозяйстве

Применение радиоактивных изотопов в народном хозяйстве Народной Республики Болгарии все еще весьма ограничено. Делаются отдельные попытки использовать радиоактивные изотопы в металлургии (для контроля износа доменных печей), в бумажной промышлен-

ности (прибор для контроля и регулирования толщины бумажной ленты), в производстве спиртных напитков (облучение вин γ -излучением в реакторе) и в резиновой промышленности (радиационная вулканизация и влияние некоторых примесей на радиационную стойкость резины).

Производство радиоактивных изотопов на ИРТ-1000 в Софии

При Физическом институте с АНЭБ Болгарской АН организована лаборатория по радиохимии и производству радиоактивных изотопов. Ее основной задачей является производство некоторых радиоактивных изотопов, а также проведение научно-исследовательской работы в области радиохимии.

В результате деятельности лаборатории в течение последних двух лет в Болгарии началось регулярное производство радиоактивных изотопов. Программа основывается на получении преимущественно короткоживущих изотопов для медицинского применения, а также и некоторых более долгоживущих изотопов для других целей.

Среди изотопов, используемых в медицине для диагностики и терапии, в Болгарии производятся:

- K^{42} в виде хлорида (таблетки);
- Na^{24} в виде хлорида (таблетки);
- Y^{90} в виде окиси (цилиндрики);
- Au^{198} в виде зерен и коллоидного раствора.

Для различных индикаторов и для других целей изготавливаются в меньших количествах следующие радиоизотопы:

- а) чистые β -излучатели:
 - P^{32} в виде различных калиевых и натриевых фосфатов;
 - S^{35} (без носителя) в виде серной кислоты и сульфатов;
 - Ca^{45} в виде хлорида, нитрата и карбоната;
- б) γ -излучатели:

Bg^{82} , W^{187} , Ga^{72} , J^{131} , I^{131} , Co^{60} , La^{140} , Mn^{56} , Cu^{64} , Rb^{86} , Sc^{46} , Na^{182} , Ge^{141} и Zn^{65} .

Научно-исследовательская деятельность лаборатории направлена главным образом на улучшение существующих методов получения радиоактивных изотопов и разработку новых методов. В настоящее время ведутся исследования с целью подготовки технологии для производства изотопов с очень малыми периодами полураспада. Разрабатываются методы получения J^{132} (нода-генератора) с периодом полураспада 140 мин и F^{18} с периодом полураспада 112 мин.

Поставка, распределение и транспортировка радиоактивных изотопов

В конце 1959 г. при Физическом институте с АНЭБ Болгарской АН была создана специальная служба поставки, распределения и

транспортировки радиоактивных изотопов для всей страны. Впоследствии этой службе были поручены и другие функции. С начала 1964 г. она переросла в Отдел изотопов и эталонирования со следующими секторами:

- поставки, распределения и транспортировки радиоактивных изотопов;
- радиоактивных отходов;
- очистки от активности,
- эталонирования дозиметрической аппаратуры.

С 1960 г. до сих пор нашей страной поставляется ежегодно в среднем около 30 кюри изотопов для медицинских учреждений; 80 кюри полониево-бериллиевых и радиево-бериллиевых нейтронных источников главным образом

для Управления геологических изысканий; 6000 мг-эке Ra, Co⁶⁰ и других изотопов, а также около 250 эталонов α - β -препаратов для использования в медицине, геологии, промышленности и сельскохозяйственных науках. За этот период число поставляемых из-за границы изотопов составляло около 40 видов в год.

Кроме этого, с января 1964 г. началось распределение по местам и радиоактивных изотопов, изготавливаемых радиохимической лабораторией нашего реактора ИРТ-1000. Заключен договор на поставку около 20 видов изотопов, преимущественно короткоживущих, с периодом полураспада от нескольких часов до трех дней (Au¹⁹⁸, Na²⁴, K⁴² и др.) для нужд больниц и научно-исследовательских институтов страны.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/879 Bulgaria

General review of scientific work on the peaceful uses of atomic energy in the People's Republic of Bulgaria

by G. Nadzhakov

Pure and applied research on the applications of atomic energy for peaceful purposes is being carried out in Bulgaria in several laboratories of the Institute of Physics and Atomic Research Centre of the Bulgarian Academy of Science, in the laboratories of the Faculty of Physics at the University of Sofia and in certain laboratories of other scientific institutions or State establishments or enterprises. For these purposes a IRT-1000 research reactor is being used; it is located near Sofia. The reactor was supplied by the Soviet Union and went critical on 9 November 1961. Short-lived radioactive isotopes, produced in the IRT-1000, are also used in research. A high-altitude station for the study of cosmic rays has been constructed on the summit of Mt. Musala (2 925 m), the highest peak in the Balkans, about 75 km south of Sofia.

Scientific work in nuclear physics covers the following sectors: research on fission of heavy nuclei under the action of neutrons; photonuclear reactions; research into the radioactivity of the soil, water and the atmosphere; research into the elastic diffusion of high-energy particles (using the photographic emulsion method); cosmic ray studies; study of the effect of nuclear radiation on semi-conductors and dielectrics; theoretical studies in the field of nuclear physics and elementary particles.

Nuclear radiation and radioactive isotopes are also used, severally and/or together, in chemistry, biology, agrobiolgy, medicine, metallurgy, the paper industry, the rubber industry, the distilling industry and other branches.

The neutron and physical characteristics of the IRT-1000 reactor, the possibilities of producing radioisotopes in it, the supply, transport and distribution of radioisotopes, the collection and treatment of radioactive wastes, decontamination, dosimetric control and dosimeter calibration are among other problems which are being studied.

A/879 Bulgaria

Aperçu général sur l'activité scientifique dans le domaine de l'application de l'énergie atomique à des fins pacifiques dans la République populaire de Bulgarie

par G. Nadzhakov

Des recherches scientifiques sur l'application de l'énergie atomique à des fins pacifiques sont conduites en Bulgarie dans plusieurs laboratoires de l'Institut de physique et Centre de recherches atomiques de l'Académie des sciences bulgare, dans des laboratoires de la Faculté de physique de l'Université de Sofia et dans certains laboratoires d'autres instituts scientifiques ou établissements et entreprises d'Etat. On utilise à cet effet le réacteur de recherche IRT-1000, installé près de Sofia, qui a été fourni par l'Union soviétique et mis en exploitation le 9 novembre 1961. Des isotopes radioactifs à courte période, obtenus dans ce réacteur, sont également utilisés à des fins de recherche. Une station de haute altitude pour l'étude des rayons cosmiques a été construite au sommet du mont Mousallah (2 925 m), le plus élevé des Balkans, à quelque 75 km au sud de Sofia.

L'activité scientifique dans le domaine de la physique nucléaire comprend les secteurs suivants: recherches sur la fission des noyaux lourds sous l'action des neutrons; réactions photonucléaires; recherches sur la

radioactivité du sol, de l'eau et de l'atmosphère; recherches sur la diffusion élastique de particules de haute énergie par la méthode des émulsions photographiques; études des rayons cosmiques; étude de l'effet des rayonnements nucléaires sur les semi-conducteurs et les diélectriques; études théoriques dans le domaine de la physique nucléaire et des particules élémentaires.

Des recherches scientifiques sur l'utilisation et l'application des rayonnements nucléaires et des isotopes radioactifs sont également effectuées dans les domaines de la chimie, de la biologie, de l'agrobiologie, de la médecine, de la métallurgie, de l'industrie du papier, de l'industrie du caoutchouc, de la production de spiritueux, etc.

Les caractéristiques neutroniques et physiques du réacteur IRT-1000, les possibilités de production de radioisotopes dans ce réacteur, la fourniture, le transport et la distribution de radioisotopes, le ramassage et le traitement des déchets radioactifs, la décontamination, le contrôle dosimétrique et l'étalonnage d'appareils de dosimétrie sont autant de questions qui font aussi l'objet d'études et de recherches scientifiques.

A/879 Bulgaria

Examen general de los trabajos científicos realizados en la República Popular de Bulgaria sobre la utilización de la energía atómica con fines pacíficos

por G. Nadzhakov

La investigación pura y aplicada acerca de las aplicaciones de la energía atómica con fines pacíficos se realiza en Bulgaria en varios laboratorios del Instituto de Física y del Centro de Investigación

Atómica de la Academia de Ciencias de Bulgaria, en los laboratorios de la Facultad de Física de la Universidad de Sofía y en ciertos laboratorios de otras instituciones científicas, establecimientos o empresas del Estado. Con ese propósito se está utilizando un reactor de investigación IRT-1000, situado cerca de Sofía. El reactor lo proporcionó la Unión Soviética y alcanzó la potencia crítica el 9 de noviembre de 1961. Los isótopos radiactivos de período corto producidos en el IRT-1000 también se utilizan en la investigación. En la cumbre del Monte Musala (2925 m), que es el pico más alto de los Balcanes, a unos 75 km al sur de Sofía, se ha construido una estación de altura para el estudio de los rayos cósmicos.

Los trabajos científicos en física nuclear abarcan los siguientes sectores: investigación de la fisión de núcleos pesados bajo la acción de los neutrones; reacciones fotonucleares; estudio de la radiactividad del suelo, el agua y la atmósfera; investigaciones sobre la difusión elástica de partículas de alta energía (mediante el método de la emulsión fotográfica); estudios sobre los rayos cósmicos; estudios sobre el efecto de la radiación nuclear en los semiconductores y los dieléctricos; estudios teóricos en el campo de la física nuclear y de las partículas elementales.

Las radiaciones nucleares y los isótopos radiactivos también se utilizan aislada y separadamente, o de ambas formas, en química, biología, agrobiología, medicina, metalurgia, en las industrias del papel, del caucho y de la destilación y en otras ramas industriales.

Entre otras cuestiones se examinan las características neutrónicas y físicas del reactor IRT-1000, las posibilidades de producir en él radioisótopos, el suministro, el transporte y la distribución de radioisótopos, la recogida y tratamiento de desechos radiactivos, la descontaminación, el control dosimétrico y la calibración por dosimetría.

Advances in neutron activation analysis

By V. P. Guinn *

During the past six years, neutron activation analysis has advanced rapidly in the United States. New and better equipment and techniques have increased its capabilities and its areas of useful application. The widespread use of the small neutron generator, coupled with the purely instrumental form of the method, is enabling the method to be employed widely and effectively, in competition with other methods of elemental analysis, at the minor- and major-constituent element levels, whereas it was formerly largely restricted to use for trace-level determinations only. In the trace-level field, the method has also advanced, using high-flux research reactors with special provisions for efficient neutron-activation analysis work, high-intensity reactor pulses, and effective utilization of reactor fast neutrons. The principal areas of improvement in equipment, techniques, and applications in the physical sciences are discussed below.

IMPROVEMENTS IN EQUIPMENT

Marked advances have been made in the performance and availability of various types of neutron sources useful for neutron-activation analysis work, and in the counting equipment used for the detection of induced activities.

Improvements in neutron sources. The low-intensity isotopic type of neutron source, useful essentially only for teaching purposes and a few cases of actual analysis (for high levels of high-sensitivity elements), has been improved by the availability of americium-241: beryllium sources. These combine the desirable feature of high neutron-output rate of the earlier ^{210}Po : Be and ^{239}Pu : Be sources, without the undesirable short half life of the ^{210}Po sources (138 days). Americium-241 has a half life of 458 years, giving it a considerably greater specific activity than that of 24 360-year ^{239}Pu . Americium: beryllium sources capable of producing up to 10^8 n/s are now commercially available. The hoped-for californium-252 spontaneous-fission neutron source is still not commercially available, but should be in the foreseeable future.

Strain [1], and Strain and Leddicotte [2], have published on the subject of americium: beryllium sources for activation-analysis use. Other recent papers on isotopic sources have been published by Kinsey *et al.* [3], Kohn and Green [3], and McFarling *et al.* [3]. Similar neutron output rates are possible with small, sealed-tube accelerators, such as described by Oshry [4].

Small accelerator neutron sources. These sources have advanced rapidly in recent years. The most widely used type of such accelerator is the small Cockcroft-Walton machine which produces 14 MeV neutrons by the bombardment of a tritium target with 150 keV deuterons. At a D^+ beam current of 1 000 μA , a 5 c/in^2 tritium target emits, isotropically, about 10^{11} n/s. At positions where samples of appreciable size (1-10 g) can be placed, and irradiated without too large a flux gradient, 14 MeV neutron fluxes of about 10^9 $\text{n cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ can be obtained. More modest versions of such accelerators (100 keV, 200 μA current) produce about 10^{10} n/s, and cost appreciably less. Properly installed for neutron-activation analysis work, the 10^{11} n/s accelerator requires approximately 6 feet of concrete shielding (or its equivalent), plus 10-15 feet of distance, for safe continuous use. Somewhat less shielding is needed at a 10^{10} n/s output rate.

The principal limiting problem at present is the rapid deterioration of the tritium targets with use at maximum beam power. A typical target consists of a circular thin copper sheet, about one inch in diameter, on one face of which is a few-micron thick layer of partially hydrided titanium (hydrided by exposure to tritium gas), containing approximately 5 curies of tritium per square inch. Since a 150 keV D^+ ion only penetrates about a one-micron depth of the titanium tritide layer, at full power a total of 150 watt is liberated in this thin layer. Even with the beam defocused so that it is spread over an area of about one square inch, and with water-cooling of the back side of the target, the tritide layer is considerably heated during full-power operation, with a resulting decomposition of the metal tritide, and a loss of tritium to the vacuum system of the accelerator. This results in an appreciable decline rate in the target output. Typically, at 150 keV and 1 000 μA , a 1 c/in^2 target will decrease

* General Atomic Division, General Dynamics Corporation, San Diego, California.

in output by a factor of 2 in about 30 minutes of operation; a 5 c/in² target in about 1.5 hours of operation. In either case, the targets continue to decline in their output rate, with further use, but not quite so rapidly. If one wishes to maintain a reasonably high neutron flux steadily for a period of many hours, it is best to start up with a fresh target at a moderate beam current, perhaps 300 μ A, and then gradually increase the beam current with use, to offset the target decline. This can be done automatically, if desired, by installing a servo-mechanism which gradually increases the beam current so as to maintain a constant neutron-flux monitor reading for a long period of time. At lower beam powers, the decline rate is not so rapid, varying, with a fresh target, as about the inverse square of the beam power. One of the commercially-available accelerators now has a useful maximum beam current of 2.5 mA, thus providing longer useful lives at reduced output.

There have been a number of efforts to improve target lifetimes. The older oil diffusion pump has now been largely replaced by the vac-ion pump, to prevent deposition of material from pump oil on the surface of the target. Freon-cooling of the target is available, instead of water-cooling, with some improvement in target lifetime. The 5 c/in² target provides an appreciably higher initial output rate, and an appreciably lower decline rate, than the older 1 c/in² target, but is somewhat more expensive. Larger, rotating targets are now available. These essentially provide the lifetime of 5 or 10 normal targets, without the necessity of frequent shutdowns for target replacement. Further defocusing of the beam is helpful to target lifetime, at some loss in neutron flux at sample locations. Yttrium tritide targets have been prepared and tested. Yttrium hydride is more thermally stable than titanium or zirconium hydride, so such targets should be less susceptible to decline because of thermal decomposition. Thus far, however, it appears that the improvements in target lifetime achieved with yttrium tritide have been rather small. One of the commercial accelerators now incorporates a target-reloading system, so that a partially spent tritium target can be periodically recharged by bombarding it for a time with T⁺ ions, at reduced accelerating potential. It has been shown that this procedure is effective in restoring a partially spent target essentially to its original output level, and that the procedure can be repeated successfully at least a number of times. Improvement in target lifetime is also achieved by magnetically deflecting D₂⁺ ions present in the D⁺ beam away from the target. The D₂⁺ ions cause target heating, as do the D⁺ ions, but contribute very little to neutron production. With accelerators employing a radiofrequency ion source, the D₂⁺ ions cause little trouble, since the beam from such a source is about 90% D⁺ and only 10% D₂⁺. However, it is a serious problem with the

less expensive, simpler, and longer-lived Penning-type ion source, from which the beam is rich in D₂⁺ ions (90%) and only about 10% in D⁺. Such sources currently do not deliver as large a D⁺ ion current as do the radiofrequency sources.

For thermal-neutron activation work, with a moderate-cost accelerator, a somewhat more expensive 2 MeV positive-ion Van de Graaff has advantages over the small Cockcroft-Walton. It generates 10⁸-10⁹ n cm⁻² s⁻¹ thermal-neutron fluxes via the ⁹Be (d,n)¹⁰B reaction, with no target lifetime problem.

Neutron generators, and their uses, have been described by Anders [5], Burrill and MacGregor [6], Gillespie and Hill [7], Guinn [4, 8-10], Guinn and Steele [11], Meinke [12], Meinke and Shideler [13], Mott *et al.* [14], and Strain [1].

Nuclear reactors. Reactors of the research type have also been greatly improved in recent years. The type most widely used for neutron-activation analysis studies is now the pool type, generally operated at power levels in the range of 100 kilowatts to a few megawatts, and providing neutron fluxes in the range of 10¹² to almost 10¹⁴ n cm⁻² s⁻¹, depending upon reactor type, power level, and location within the pool or core. Such reactors, of the simple below-ground type, are relatively moderate in cost—compared with earlier reactors. Many research reactors of this general type are being used in the United States for neutron-activation analysis work. A lesser number of research reactors of the water-boiler type, and of the older graphite-lattice type, are now used in the United States for such work. The first nuclear reactor ever to be used for neutron-activation analysis studies, the X-10 graphite reactor of the Oak Ridge National Laboratory, was finally shut down in November 1963, on its twentieth birthday.

One of the newer types of pool reactors is that which employs uranium-zirconium hydride fuel elements. This is the TRIGA reactor, used in the author's laboratory, and very widely used in the United States and abroad. The hydride-type of fuel element confers upon it two desirable features: intrinsic safety, and the ability to pulse to very high flux levels. The 250 kW TRIGA Mark I reactor used by the author provides thermal-neutron fluxes of 2-4 \times 10¹² n cm⁻² s⁻¹ in regularly available irradiation positions and 10⁹ watt pulses which provide peak neutron fluxes of about 4 \times 10¹⁶ n cm⁻² s⁻¹. Buchanan [4, 15] has tabulated the detection sensitivities attainable for 69 elements at the 1.8 \times 10¹² n cm⁻² s⁻¹ thermal-neutron flux of the 250 kW TRIGA (1-hour irradiations). They range from 10⁻⁶ μ g to 50 μ g, the median sensitivity being 0.01 μ g. Meinke [12] has tabulated sensitivities for a 10¹² n cm⁻² s⁻¹ flux and various irradiation times. In the 1 000 kW TRIGA, these fluxes are multiplied four-fold, thus providing steady fluxes of 1 \times 10¹³ and peak fluxes, in a pulse, of about 10¹⁷ n cm⁻² s⁻¹. This

reactor also utilizes a rotary specimen rack that makes it especially effective for neutron-activation analysis work. The rotary rack contains 40 tubes and rotates around the core during irradiation so that the average neutron flux is exactly the same in all 40 tubes, at a given height. As many as six samples can be stacked vertically in each tube, thus providing a total sample capacity of 240 samples in a single irradiation, each group of 40 being at the same flux. The vertical flux gradient in the 40 tubes is not large, and is accurately known. Research reactors, and their applications for neutron-activation analysis studies, have been described by Buchanan [4, 15], Guinn [4, 10, 16-19], Meinke [20-22], and Schmitt [23].

Improvements in multichannel pulse-height analyzers and counters. In recent years the older vacuum-tube type of multichannel pulse-height analyzer has been largely superseded by completely transistorized units. These are more reliable, smaller, lighter in weight, and more versatile than their vacuum-tube predecessors, and they consume less power. The modern type, typically, contains 200 to 512 analysis and storage channels (with provisions for dividing the memory into two or four equal groups of channels), live and static oscilloscope display (linear or logarithmic), preset live-time and clock-time, a percentage dead-time meter, digital readout (tape printer or electric typewriter), analog readout (oscilloscope camera, x-y plotter, or strip-chart recorder), and magnetic tape or punched-paper tape for spectrum-stripping operations. A single analyzer can be used to analyze simultaneously the outputs of two, or four, scintillation counters on a time-sharing basis. The only serious limitation of such analyzers is the relatively long and pulse-size-dependent dead-time (typically amounting to $40 + 0.2N \mu\text{s}$, where N is the channel number), resulting from the use of the amplitude-to-time conversion principle, rather than the faster (but drift-prone) stacked discriminator principle of the earliest multichannel analyzers.

As input to such analyzers, the trend has been to the use of relatively large NaI(Tl) crystals, directly coupled to a photomultiplier tube of comparable size, and mounted in a relatively large lead shield (to minimize backscatter), 4 in thick, and lined with thin sheets of cadmium and copper (to minimize contributions to the observed spectrum from lead X-rays). Crystal-photomultiplier combinations selected for maximum resolution and minimum gain-shift at high counting rates are available, and are very helpful. Two commonly used crystal sizes are the 3 in by 3 in solid type, and the 5 in by 5 in well-type. Fite *et al.* [4] have incorporated a small alpha-particle source in the crystal, and use its high-energy peak in the pulse-height spectrum, with an electronic servo-mechanism, to maintain a constant gain. A commercially available circuit utilizes the same principle, but employs a

high-energy peak in the sample spectrum, rather than an alpha-particle peak, for the monitoring peak. In most gamma-ray spectrometry work, a one centimeter layer of plastic is placed between sample and crystal, to screen out beta particles, with a minimum production of bremsstrahlung.

Multichannel gamma-ray spectrometers, and their uses in neutron-activation analysis studies, have been described by Brauer and Connally [24], Crouch and Heath [25], Guinn [2, 4], Heath [4, 10, 24, 25], Perkins [4, 10], and Steele *et al.* [10]. Heath [26] and Anders [27] have published very useful gamma-ray spectrum catalogs. Strominger *et al.* [28], in their *Table of Isotopes*, have summarized the best values of half-lives, beta- and gamma-ray energies, and decay schemes, and Crouthamel [29] has edited a book on *Applied Gamma-Ray Spectrometry*.

In beta-counting and spectrometry, large well-type plastic scintillators have found use. Semiconductor detectors are finding applications in beta, X-ray and low-energy gamma-ray spectrometry. They provide excellent resolution. The lithium-drifted type provides relatively thick sensitive zones (up to 10 mm). The more dense germanium type give better absorption than the silicon type, but must be refrigerated. Still higher atomic number semiconductor detectors are under development. Borkowski [10] has recently summarized the field of semiconductor detectors. Commercial low-background (0.2 cpm) beta counters are now widely used.

ADVANCES IN TECHNIQUES

A number of new techniques for neutron-activation analysis work have been developed within the past several years, some of which are summarized below.

Use of reactor pulses. It has been shown that the high-intensity, short-duration pulses attainable with a pulsed reactor can be utilized to improve the sensitivity of detection of elements that form very-short-lived induced activities. For example, in the author's reactor, a single pulse produces approximately 500 times as much activity of 0.1 second half-life as can be produced by operation at the normal steady-state power level, 50 times as much for a 1-second half-life isotope, and 5 times as much for a 10-second activity. For an induced activity with a half-life of 50 seconds, the pulse offers no advantage, and for longer-lived species it is progressively less sensitive than longer irradiations at the normal power level. Enhancement of sensitivities by means of pulsing has been demonstrated experimentally with such induced activities as $7.35 \text{ s } ^{16}\text{N}$, $12.4 \text{ s } ^{34}\text{P}$, $4.8 \text{ s } ^{79}\text{Br}^m$, $16.1 \text{ s } ^{89}\text{Y}^m$, $7.2 \text{ s } ^{197}\text{Au}^m$, $10.7 \text{ s } ^{20}\text{F}$, $5.5 \text{ s } ^{183}\text{W}^m$, and $19.5 \text{ s } ^{46}\text{Sc}^m$. Both thermal-neutron and fast-neutron induced activities of short half-life are enhanced by use of the reactor pulsing technique. The use of reactor pulses for neutron-

activation analysis studies has been described by Guinn [4, 16, 17] and Lukens *et al.* [10].

Utilization of reactor fast neutrons. The great bulk of reactor neutron-activation analysis work to date has been carried out with thermal neutrons. Little effort has been devoted to the effective utilization of the higher-energy fission-spectrum neutrons (one well-known exception being the use of the $^{32}\text{S} (n,p)^{32}\text{P}$ reaction for the detection of sulfur), which also are present in reactor cores at high fluxes. A study of activation analysis with reactor fast neutrons in the author's laboratory has shown that quite a few elements (e.g., N, O, Si, P, Fe, Y, Pb) can be more sensitively detected by means of activation with reactor fast neutrons than with thermal neutrons in the same reactor. Furthermore, many other elements are quite sensitively detected via activation with reactor fast neutrons, even though not as sensitively as with thermal neutrons in the same reactor. Examples in this category are F, Mg, Al, S, K, Ti, Cr, Co, Ni, Zn, Ge, Se, Br, Sn, and Nb. These reactions offer the choice of a fast-neutron induced activity, instead of a thermal-neutron induced activity, which is often helpful in minimizing interferences from other activities, due to the additional choices of gamma-ray energies and half-lives.

The problem of minimizing (n,γ) -induced activities in the sample matrix, if one wishes to detect an (n,p) , (n,α) , $(n,2n)$, or (n,n') product, in reactor irradiations, is of course a serious one. Work to date with ^{10}B -lined tubes for the suppression of (n,γ) activation has resulted in reductions in the (n,γ) activation by factors of 100 to 200, depending upon the element involved. Additional shielding with one or more elements with large (n,γ) resonances may improve the (n,γ) suppression further. The use of $^6\text{Li D}$ or ^{235}U liners may be helpful not only in screening out low-energy neutrons, but also in generating additional fast neutrons (14 MeV and fission-spectrum, respectively).

The fast-neutron sensitivities attainable in the author's reactor are, in general, 10-100 or more times better than those attainable with a small 14 MeV neutron generator, the ratio depending upon the reaction threshold and shape of the cross-section *versus* neutron energy curve. In the pneumatic-tube position (outermost fuel-element ring) of the author's 250 kw TRIGA reactor, where the thermal-neutron flux is $4.3 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, the neutron flux above 1.35 MeV is 7.5×10^{11} , that above 3.68 MeV is 1.25×10^{11} and that above 6.1 MeV is 1.9×10^{10} . These are to be compared with the 10^8 - $10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ fluxes of 14 MeV neutrons attainable with the small neutron generators.

The use of reactor fast neutrons for activation-analysis studies has been described by Guinn [4, 16-18, 30], Meinke [20, 21], and Yule *et al.* [10].

Fast radiochemical separations. Where interferences are very severe, and cannot be sufficiently minimized

by the proper choice of irradiation and decay times, one often needs to resort to post-irradiation radiochemical separations with carriers and hold-back carriers. This is a long-established technique, but has usually been carried out with conventional chemical-separation methods. These are time-consuming, and hence preclude the effective utilization of induced activities with short half-lives. Meinke [4, 12, 21] has pioneered the development of very fast radiochemical-separation techniques, in many cases achieving separations in a period of only 5 to 10 minutes. In the author's laboratory [10, 16], such techniques are now regularly used successfully for the radiochemical separation of such short-lived species as 2.3 min ^{28}Al , 3.8 min ^{52}V , 5.8 min ^{61}Ti , 8.7 min ^{49}Ca , 9.5 min ^{27}Mg , 10.5 min $^{60}\text{Co}^m$, and 25 min ^{129}I . The method is thus applicable to severe interference cases formerly considered to be impractical by neutron activation analysis. DeVoe *et al.* [31] and Ruch *et al.* [32] have utilized amalgam-exchange reactions in radiochemical separations. The National Research Council Nuclear Science Monograph Series now provides radiochemical-separation procedures for many of the elements. A number of these monographs have been prepared by Leddicotte [33].

The purely instrumental technique. With the advent of the small neutron generator and the multichannel pulse-height analyzer, it became apparent that neutron activation analysis could be effectively applied in the new area of minor- and major-constituent levels, in competition with the many other methods of elemental analysis widely used at these higher levels. This possibility arose from the fact that neutron activation analysis method could, in many cases, be much faster than other methods of analysis. Also, since the small neutron generator is much less expensive than a nuclear reactor, the equipment cost is not prohibitive. It was also clear that the method could only compete with other methods, in this case, if a purely instrumental technique could be employed. If radiochemical separations are also employed, the great advantage of speed is lost. On this basis, Guinn and Wagner [34] developed a comprehensive system of purely instrumental thermal-neutron activation analysis, based on a $10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ accelerator (C MeV electron Van de Graaff) neutron flux and multichannel gamma-ray spectrometry. This method has been in routine use for the past seven years, competing quite effectively with other analytical methods for some 25 elements of interest. In their laboratories, the method was augmented five years ago by a small Cockcroft-Walton 14 MeV neutron generator for routine fast-neutron activation analysis, at fluxes in the 10^8 - $10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ range. Many elements can be thus detected, either by thermal neutrons or 14 MeV neutrons, down to levels as low as 1-100 ppm (in 10 g samples). This development was greatly aided by the earlier, but more limited,

reactor, single-channel analyzer instrumental work of Morrison and Cosgrove [35, 36], Cosgrove and Morrison [37], Cosgrove *et al.* [38], and Atchison and Beamer [39] (accelerator). Other aspects of this work have been described by Guinn [4], Guinn *et al.* [40], Wagner *et al.* [41], and Johnson [10]. Many other laboratories in the United States, particularly in the petroleum and chemical industries, have set up systems for purely instrumental neutron activation analysis, employing small neutron generators. Interesting results, so obtained, have been reported by Anders [10, 42-44], Burns [10], Gilmore and Hull [4, 45], Gray and Cartwright [10], Guinn [8, 9, 46], Guinn and Johnson [47], Iddings [10], Mott and Rhodes [10], Steele [2], Steele *et al.* [10], Steele and Meinke [4, 48], and Veal and Cook [49].

The instrumental technique, as used in nuclear reactor work, has been described by Buchanan [4], Guinn [4, 10, 16-19], Kramer and Wahl [10], and Meinke [20, 21, 50].

Spectrum stripping. The technique of simplifying complex gamma-ray pulse-height spectra by means of spectrum stripping was first described by Lee [51], although not for activation-analysis work. He employed *live* stripping, that is, counting the radioisotope to be removed in the same counter, under the same conditions, but in a subtract mode and observing complete subtraction on the oscilloscope display of the multi-channel analyzer. This technique was soon extended to stripping by means of taped spectra and a variable multiplier incorporated in the multichannel analyzer. Both magnetic tape and punched-paper tape units became available. This technique is very useful for obtaining analytical answers rapidly, even in the presence of overlapping photopeaks. The same technique can be used, not only to remove interferences, but also directly to compare the desired activity of an unknown with that of the activated standard of that element, or its tape-recorded spectrum. This avoids the necessity of computing photopeak heights or areas, but instead utilizes the counting time required with the standard, or the variable multiplier setting required with the standard, for the complete subtraction of the photopeak of interest.

The spectrum-stripping method has two main disadvantages: its reliance upon visual estimation of complete subtraction, on the oscilloscope display, and its sensitivity to gain shifts. For accurate work, the total gain of the detector-analyzer system must be almost exactly the same for sample and standard. Even a difference of one channel introduces uncertainty, and differences of even a few channels negate the method. Methods of selecting photomultiplier tubes for minimum gain shift have been described by Covell and Euler [4], and Covell [10, 25]. Fite *et al.* [4] have described a drift-control device, and Guinn and Lasch [25] have described methods of minimizing gain shift.

Automation and computer techniques. The instrumental method lends itself well to automation, and to computer techniques. Kuykendall *et al.* [12] and Fite *et al.* [19] have described automatic sample handling and counting systems for such work. Guinn [52] has described the application of such automated systems to process control.

Computer techniques for the resolution of complex gamma-ray spectra have been described by Nostrand *et al.* [47], Kuykendall and Wainerdi [47], Breen *et al.* [53], Anders and Beamer [54], Heath *et al.* [55], Brice and Heath [56], Burrus [24], Morrison and Sunderman [24], Hull and Gilmore [10], Wainerdi *et al.* [2], Nostrand and Rossi [25], Trombka [10, 25], Burrus and Bogert [25], Chester *et al.* [25], Monahan *et al.* [25], Drew *et al.* [25], Nicholson *et al.* [25], Scofield [25], Blotcky *et al.* [25], and Steele [57]. The methods of least squares, spectrum stripping, and iterative unfolding are used by one or more of the above authors. Isenhour and Morrison [10] have described a computer technique for the optimization of irradiation, decay, and counting conditions in activation-analysis work.

Advances in related activation-analysis techniques. Although this paper is essentially limited to the field of neutron activation analysis, some mention should be made of recent advances in the closely related fields of charged-particle, photonuclear, and prompt-gamma activation analysis. The interesting possibilities of helium-3 charged-particle activation analysis have been discussed by Mahony and Markowitz [58] and Markowitz and Mahony [10]. Photonuclear activation-analysis studies have been reported by Lukens *et al.* [53, 59], Otvos *et al.* [60], and Lukens [10]. Photonuclear methods have been applied to the determination of deuterium by Guinn [8], and to the determination of beryllium by Guinn [8], Goldstein [61], Levine and Surfs [62], and Postma and McMurray [19]. Activation analysis by means of the prompt gamma rays emitted in thermal-neutron capture, or in fast-neutron inelastic scattering, has been described by Caldwell [10], Greenwood *et al.* [14, 53], Greenwood and Reed [4, 10, 24], Haffner *et al.* [3], Clark and Rasmussen [24], and Waggoner *et al.* [10].

NEW APPLICATIONS

As the capabilities of neutron activation analysis have increased with the availability of better equipment and new techniques, the method has found increased application in many areas of science and industry. Some of these new areas of application are described below.

The petroleum and chemical industries. These industries have been leaders in the industrial application of neutron activation analysis, especially with the small neutron generators described earlier. A number of

companies employ such generators for routine analyses at the 1-100 ppm and higher levels, to determine such elements as nitrogen, oxygen, the halogens, and numerous metals in cores, crude oils, feedstocks, catalysts, polymers, and synthetic rubber. Relevant published papers include those by Anders [10], Caldwell [10], Caldwell and Mills [63], Gray and Cartwright [10], Guinn and Wagner [34], Guinn *et al.* [40, 64], Iddings [10], Johnson [10], Mott and Rhodes [10], and Steele [2].

The coal industry. Recently, conventional neutron activation analysis and prompt-gamma techniques have been applied to the rapid and routine analysis of coal for its carbon and ash contents (Al, Si, O,) employing a neutron generator. This has been described by Martin *et al.* [10, 24].

The metal and semiconductor industries. With the increasing importance of very pure metals and semi-metals, such as the alkali metals, beryllium, silicon, and germanium, neutron activation analysis is finding increased application in this area. Recent studies in this field are those by Burns [10], Guinn [30, 65], and McCrary *et al.* [4]. The determination of oxygen in metals, especially, has attracted much interest.

Pesticide residues. With the wide-scale use of pesticides in farming, the possible toxic effects to man and lower animals from excessive applications of such pesticides has become of great concern. In the determination of tolerance levels and of violations of government regulations, large numbers of analyses for pesticide residues in crops and processed foods are required. Guinn and Potter [66] found that bromine residues in crops, resulting from soil fumigation with bromine-containing nematocides, could be rapidly determined by neutron activation analysis. In the author's laboratory, as many as 240 samples can be activated in a single 30 min irradiation, and the induced 36 h ^{82}Br activity then rapidly determined instrumentally, after a 2 d decay period. Lindgren *et al.* [67] extended the technique to the determination of bromine residues in stored grain, resulting from fumigations with methyl bromide. Castro and Schmitt [68] studied bromine residues from nematocides and also traces of DDT in plant extracts. Schmitt and Zweig [69] measured the DDT content of butterfat samples by the same technique. Guinn [70] has determined traces of mercury in wheat, resulting from illegal contamination of wheat with mercury-treated seed wheat, by neutron activation analysis. Applications of the technique in the pesticide-residue field have been summarized by Schmitt [71], Buchanan and Guinn [72], and Guinn and Schmitt [73].

Geology and geochemistry. Many interesting applications of the technique have been made in these fields recently. Accurate determinations of all the rare-earth elements have been carried out in meteorite

and rock samples by Schmitt *et al.* [74, 75], Mosen *et al.* [76], Murthy and Schmitt [77], Goldberg *et al.* [78], Schmitt and Goles [10], and Schmitt and Smith [79]. Corless and Winchester [10] have made precise determinations of calcium isotope ratios in rocks, determining the ^{48}Ca by neutron activation analysis, and total calcium chemically.

Scientific crime detection. One of the most fascinating new areas of application of the technique is that of criminalistics. Here, the ultra-sensitivity of the method, using the high neutron flux of a nuclear reactor, can extend the scope of the professional criminalist in his examination of physical evidence. Where the method can be applied in its purely instrumental form, the samples can be preserved for presentation in court.

A new activation analysis technique for the identification of gunshot residues on the gunhand of a suspect has been developed in the author's laboratory. Whereas the very unreliable chemical test (the "paraffin test"), no longer accepted in court, is based on the detection of nitro-compounds removed from the back of the hand by means of paraffin, via the blue color formed with diphenylamine reagent, the activation method is based on the detection of traces of barium and antimony similarly removed from the hand. These elements are present in the primers of bullets, and microgram or sub-microgram amounts deposit on the hand when a revolver, automatic pistol, or rifle is fired. The amounts deposited by even a single firing are readily measured by activation for 30 minutes in the reactor, radiochemical separation of 84 min ^{139}Ba and 2.8 d ^{122}Sb , with carriers, and counting. Only bare traces of these two elements are usually found on the hands of persons who have not recently fired a gun. Rifle firings have been found to also deposit barium and antimony on the face of the person firing. Studies are now in progress in which trace levels of various high-sensitivity elements are incorporated in the gunpowder of the bullets. These elements, less common than either barium or antimony, can be detected even more sensitively by neutron activation analysis than these two, and offer the possibility of various bullet manufacturers coding their gunpowders with different tracer elements.

In the author's laboratory, many other materials of forensic interest have also been examined for their trace-element characterization possibilities. These include soil, paint, glass, paper, tire rubber, automobile grease, and hair. The method shows great promise in identifying the source of even a tiny sample of material evidence, and is now being introduced in court. Portions of this work have been published by Ruch *et al.* [10, 80-82], and by Guinn [83].

Forensic studies of paint, hair, opium, and other types of samples have been reported by Leddicotte *et al.* [80], and Bate *et al.* [19, 80, 84]. Studies of human

hair samples in the author's laboratory, and at the Oak Ridge National Laboratory, have substantiated and extended the findings on hair reported by Jervis in Canada, and Lenihan in Scotland, namely, that the trace-element composition of the hair can provide truly individual characterization. On 16 March, 1964, Pro and Schlesinger presented neutron-activation analysis data, on soil samples involved in a liquor case, in a United States court. This was the first time that such data were introduced in a US court. The data were accepted, and the case was won.

Space studies. A highly miniaturized automatic neutron-activation analysis device has been designed for use for remote, unmanned, analysis of the surface of the moon in one of the forthcoming Surveyor missions. The device consists of a small, sealed-tube, accelerator source of 14 MeV neutrons, a scintillation counter, and a compact 256-channel pulse-height analyzer, the entire device weighing only about 30 pounds. Provisions have been made to measure both prompt gammas and decay gammas, and for activation with both 14 MeV and thermal neutrons. Various aspects of this program have been reported by Greenwood and Reed [10, 24], Haffner and Terrell [24], Lee *et al.* [80], Metzger [10], Steele [85], Trombka [10], and Waggoner *et al.* [10].

Oxygen determinations. The rather special technique, of analyzing virtually any type of sample for trace and higher levels of oxygen, by activation analysis with 14 MeV neutrons, has found very wide application. Many laboratories in the United States now employ a small neutron generator (10^{10} - 10^{11} n/sec output) for the rapid, routine, non-destructive determination of oxygen. The reaction utilized is the high (9.6 MeV) threshold $^{16}\text{O}(\text{n,p})^{16}\text{N}$ reaction. Since ^{16}N has a half-life of only 7.35 s., irradiation and counting periods need only be brief, typically, 15-20 s each. Samples are injected into the neutron flux, and ejected back out to the scintillation counter, in a transit time of 1-2 s. The gamma rays of ^{16}N are exceptionally high in energy (largely 6.13 MeV), thus making the determination unique, except for the presence of fluorine, which also forms ^{16}N via the $^{19}\text{F}(\text{n},\alpha)^{16}\text{N}$ reaction. Fluorine, if also present, however, can be separately detected and corrected for.

In the author's laboratory, Steele has constructed an automated system which employs a dual pneumatic-tube transfer system, rotating the sample and oxygen standard during activation, and sample counting with a pair of 3 in \times 3 in NaI(Tl) crystals. The standard sample is counted by a single 3 in crystal. Two single-channel pulse-height analyzers are employed. The dual transfer system follows the finding by Iddings [10] that this provides better precision than can be attained with flux-monitoring systems. Rotation of sample and standard, during irradiation, is achieved with an electric motor, but is otherwise equivalent to the air-

driven rotation device described by Anders [10]. With a fresh tritium target, samples can be exposed to 14 MeV neutron fluxes of about 10^9 n cm^{-2} s^{-1} . Under such conditions, the limit of practical detection for oxygen, at present, is about 0.1 mg, or 5 ppm in a 20 g sample. At high oxygen levels, precisions and absolute accuracies of about $\pm 2\%$ of the value are attainable in a single determination. The same sample can be analyzed repeatedly, if desired, to provide better precision. Special low-oxygen containers (copper, aluminium, polyethylene), and a nitrogen atmosphere, are used, to decrease the blank correction. Some samples are irradiated with no container. To provide long-term steady flux operation without frequent target replacement, a large-area rotating tritium target and an automatic flux-control mechanism are being installed. Extensive comparisons of the oxygen values obtained by 14 MeV neutron activation in the author's laboratory, with those obtained by the vacuum-fusion method, have been carried out in various metals by Harris. Agreement was excellent, even down to oxygen levels of 20 ppm. This comparison has been reported by Guinn [30]. In the author's laboratory, Lukens and Lasch [10] have developed a Cerenkov counter for the detection of the very high-energy beta particles of ^{16}N (10.4 MeV, E_{max}) even in the presence of very high gamma radiation levels, up to 1 r/h.

Important papers on the fast-neutron method for oxygen have been published by Anders [10], Burns [10], Iddings [10], McCrary *et al.* [4], Steele and Meinke [48], Veal and Cook [49], and Volborth and Banta [86].

Process control and use of stable tracers. The small neutron generator, coupled with the instrumental method, lends itself well to process-control applications. Several such studies, in various industries, are currently in progress in the author's laboratory. Such applications have been described recently by Guinn [52]. Tarras and Pirtle [80] have described an application of stable-element tracers, subsequently detected by neutron activation, in an air-pollution study.

OTHER DEVELOPMENTS

In the area of education, two books on activation analysis have appeared: by Koch [87], and by Lyon [88]. Literature reviews have been published by Meinke [89] for 1958-1959, and by Leddicotte [90] for 1960-1961. A 40 min professional-level training film on neutron activation analysis has been completed for the U.S. Atomic Energy Commission by General Atomic.

REFERENCES

1. Strain, J. E., chapter in *Activation Analysis Guide*, Oak Ridge National Laboratory (1964), in press.
2. Instrument Society of America, Proc. 1962 Nat'l. Anal. Instr. Symp., ISA Proc. 8 (April 1962).

3. American Nuclear Society, *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, 5 (June 1962).
4. Texas A and M College, *Proc. International Conf. on Modern Trends in Activation Analysis*, College Station, Texas (Dec. 1961).
5. Anders, O. U., *Nucleonics*, 18 (11), 178-179 (1960).
6. Burrill, E.A., and MacGregor, M.H., *Nucleonics*, 18 (12), 64-68 (1960).
7. Gillespie, A.S., and Hill, W.W., *Nucleonics*, 19 (11), 170-173 (1961).
8. Guinn, V. P., *Proc. Atomic Industrial Forum*, pp. 308-314 (San Francisco, Dec. 1960).
9. Guinn, V. P., *Intern. Sci. Technol. (Prototype Issue)*, 74-84 (1961).
10. Society for Applied Spectroscopy, *Abstracts of 2nd National Meeting*, San Diego, Oct. 1963.
11. Guinn, V.P., and Steele, E.L., *Neutron Generators and Their Uses (Monograph, National Research Council Nuclear Science Series, 1964)* in preparation.
12. International Atomic Energy Agency, *Proc. Conf. on the Use of Radioisotopes in the Physical Sciences and Industry (Copenhagen, Sept. 1960)*.
13. Meinke, W.W., and Shideler, R.W., *Nucleonics*, 20 (3), 60-65 (1962).
14. American Nuclear Society, *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, 4 (June 1961).
15. Buchanan, J. D., *Atompraxis*, 8, 272-276 (1962).
16. Guinn, V. P., *Proc., IAEA Seminar on Production and Use of Short-Lived Radioisotopes from Reactors*, 2, 3-28, Vienna (Nov. 1962).
17. Guinn, V. P., *Proc., IAEA Study Group Meeting on the Utilization of Research Reactors*, Sao Paulo (Nov. 1963).
18. Guinn, V. P., *Proc. Inter-American Conf. on Radiochemistry*, Montevideo, July 1963.
19. U.S. Atomic Energy Commission, *Report TID-7655. Proc. 6th Conf. on Anal. Chem. in Nucl. Reactor Tech. Gatlinburg*, Oct. 1962.
20. Meinke, W. W., *Proc. IAEA Study Group Meeting on the Utilization of Research Reactors*, pp. 295-337, Bangkok, Dec. 1962.
21. Meinke, W. W., *Proc. IAEA Panel on Chem. Research Using Research Reactors*, pp. 17-59, 73-82, 95-114, Vienna, March 1963.
22. Meinke, W. W., *Anal. Chem.*, 31, 792-795 (1959).
23. Schmitt, R. A., *Proc. IAEA Symp. on the Programming and Utilization of Research Reactors*, Vienna, Oct. 1961.
24. American Nuclear Society, *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, 6 (June 1963).
25. O'Kelley, G. D. (Editor), *Proc. Symp. on Application of Computers to Nuclear and Radiochemistry*, Gatlinburg, Oct. 1962, NAS-NS-3107.
26. Heath, R. L., *Gamma-Ray Spectrum Catalog*, IDO-16408 (July 1957).
27. Anders, O. U., *Gamma-Ray Spectra of Neutron-Activated Elements*, Dow Chemical Co., Midland, Mich. (1961).
28. Strominger, D., Hollander, J.M., and Seaborg, G. T., *Rev. Mod. Phys.*, 30, 585-904 (1958).
29. Crouthamel, C. E. (Editor), *Applied Gamma-Ray Spectrometry* (Pergamon Press, N. Y., 1960).
30. Guinn, V. P., *Abstracts of Pittsburgh Analytical Conf.*, p. 62 (March 1964).
31. Devoe, J. R., Nass, H. W., and Meinke, W. W., *Anal. Chem.*, 33, 1713-1715 (1961).
32. Ruch, R. R., Devoe, J. R., Meinke, W. W., *Talanta*, 9, 33-38 (1962).
33. National Research Council, *Nuclear Science Series (of radiochemistry monographs)*.
34. Guinn, V.P., and Wagner, C.D., *Anal. Chem.*, 32, 317-323 (1960).
35. Morrison, G.H., and Cosgrove, J.F., *Anal. Chem.*, 27, 810-813 (1955).
36. Morrison, G.H., and Cosgrove, J.F., *Anal. Chem.*, 28, 320-323 (1956).
37. Cosgrove, J.F., and Morrison, G.H., *Anal. Chem.*, 29, 1017-1019 (1957).
38. Cosgrove, J.F., Bastian, F. P., and Morrison, G.H., *Anal. Chem.*, 30, 1872-1874 (1958).
39. Atchison, G.J., and Beamer, W.H., *Anal. Chem.*, 28, 237-243 (1956).
40. Guinn, V.P., Johnson, R.A., and Mull, G. C., *Proc. Sixth World Petroleum Congress, Frankfurt*, June 1963.
41. Wagner, C. D., Campanile, V.A., and Guinn, V.P., *Nucl. Instr. Methods*, 6, 238-242 (1960).
42. Anders, O. U., *Anal. Chem.*, 32, 1368-1369 (1960).
43. Anders, O. U., *Anal. Chem.*, 33, 1706-1709 (1961).
44. Anders, O. U., *Anal. Chem.*, 34, 1678-1680 (1962).
45. Gilmore, J. T., and Hull, D. E., *ibid.*, pp. 187-190.
46. Guinn, V. P., *Nucleonics*, 19 (8), 81-84 (1961).
47. American Nuclear Society, *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, 3 (Nov. 1960).
48. Steele, E.L., and Meinke, W.W., *Anal. Chem.*, 34, 178-184 (1962).
49. Veal, D.J., and Cook, C.F., *Anal. Chem.*, 34, 178-184 (1962).
50. Meinke, W. W., *Nucleonics*, 17 (9), 86-89 (1959).
51. Lee, W., *Anal. Chem.*, 31, 800-806 (1959).
52. Guinn, V. P., *Proc. Symp. on Nuclear Applications to the Wood, Paper, and Pulp Industries*, Washington State University, April 1964.
53. American Nuclear Society, *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, 4 (Nov. 1961).
54. Anders, O. U., and Beamer, W. H., *Anal. Chem.*, 33, 226-230 (1961).
55. Heath, R.L., Hestir, W.A., and Yates, E. A., *Report IDO-16760* (1962).
56. Brice, M.K., and Heath, R.L., *Report IDO-16621* (Sept. 1960).
57. Steele, E. L., *Proc. Amer. Petr. Inst., Activation Analysis Meeting*, St. Louis, May 1964.
58. Mahony, J.D., and Markowitz, S.S., *Anal. Chem.*, 34, 329-335 (1962).
59. Lukens, H. R., Otvos, J.W., and Wagner, C.D., *Inter. J. Appl. Radiation Isotopes*, 11, 30-37 (1961).
60. Otvos, J. W., Guinn, V.P., Lukens, H.R., and Wagner, C. D., *Nucl. Instr. Methods*, 11, 187-195 (1961).
61. Goldstein, G., *Anal. Chem.*, 35, 1620-1623 (1963).
62. Lévine, C.A., and Surls, J.P., *Anal. Chem.*, 34, 1614-1617 (1962).
63. Caldwell, R.L., and Mills, W.R., *Nucl. Instr. Methods*, 5, 312-322 (1959).

64. Guinn, V. P., Lukens, H. R., and Steele, E. L., Proc. Amer. Petr. Inst., Activation Analysis Meeting, St. Louis, May 1964.
65. Guinn, V. P., Proc. Fourth Golden Gate Metals Conf., San Francisco, Feb. 1964.
66. Guinn, V. P., and Potter, J. C., Agri. Food Chem., 10, 232-236 (1962).
67. Lindgren, D. L., Gunther, F. A., and Vincent, L. E., J. Econ. Entomol., 55, 773 (1962).
68. Castro, C. E., and Schmitt, R. A., Agri. Food Chem., 10, 236-239 (1962).
69. Schmitt, R. A., and Zweig, G., Agri. Food Chem., 10, 481-484 (1962).
70. CEA Saclay, Proc. Third International Saclay Biological Colloquium, Sept. 1963.
71. Schmitt, R. A., chapter in *Analytical Methods for Pesticides, Plant Growth Regulators and Food Additives* (G. Zweig, editor), 281-324 (Academic Press, N.Y., 1963).
72. Buchanan, J. D., and Guinn, V. P., Food Technol., 17, 17-22 (1963).
73. Guinn, V. P., and Schmitt, R. A., chapter in *Residue Reviews* (F. A. Gunther, editor), 5, 148-174 (Springer-Verlag, Berlin, 1964).
74. Schmitt, R. A., Mosen, A. W., Suffredini, C. S., Lasch, J. E., Sharp, R. A., and Olehy, D. A., Nature, 186, 863-866 (1960).
75. Schmitt, R. A., Smith, R. H., Lasch, J. E., Mosen, A. W., Olehy, D. A., and Vasilevskis, J., Geochim. Cosmochim. Acta, 27, 577-622 (1963).
76. Mosen, A. W., Schmitt, R. A., and Vasilevskis, J. Anal. Chim. Acta, 25, 10-24 (1960).
77. Murthy, F. R., and Schmitt, R. A., J. Geophys. Res., 68, 911-917 (1963).
78. Goldberg, E. D., Koide, M., Schmitt, R. A., and Smith, R. H., J. Geophys. Res., 68, 4209-4218 (1963).
79. Schmitt, R. A., and Smith, R. H., Nature, 199, 550-551 (1963).
80. American Nuclear Society, Trans. Amer. Nucl. Soc., 5 (Nov. 1962).
81. Ruch, R. R., Buchanan, J. D., Guinn, V. P., Bellanca, S. C., and Pinker, R. H., J. Forensic Sci., 9, 119-135 (1964).
82. Ruch, R. R., Guinn, V. P., and Pinker, R. H., J. Nucl. Sci. and Eng. (in press).
83. Guinn, V. P., chapter in *Methods of Forensic Science* (A. S. Curry, editor, 3, Interscience, London, 1964, in press).
84. Bate, L. C., Emery, J. F., Leddicotte, G. W., Lyon, W. S., and pro, M. J., Inter. J. Appl. Radiation Isotopes, 14, 549-556 (1963).
85. Steele, E. L., Anal. Chem., 35, 23A-32A (1963).
86. Volborth, A., and Banta, H. E., Anal. Chem., 35, 2203-2205 (1963).
87. Koch, R. C., *Activation Analysis Handbook* (Academic Press, N.Y., 1960).
88. Lyon, W. S. (Editor), *Activation Analysis Guide* (Oak Ridge National Laboratory, 1964, in press).
89. Meinke, W. W., Anal. Chem., 32, 104R-136R (1960).
90. Leddicotte, G. W., Anal. Chem., 34, 142R-171R (1962).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/197 Etats-Unis d'Amérique

Progrès de l'analyse par activation neutronique

par V. P. Guinn

De grands progrès ont été réalisés depuis 1958 dans l'analyse par activation neutronique. Le mémoire décrit un grand nombre des principaux résultats enregistrés sur le plan de la technique et des applications.

D'importantes améliorations ont été apportées aux trois catégories de sources de neutrons utilisées pour l'analyse par activation: sources radioisotopiques, accélérateurs et réacteurs nucléaires. Aux anciennes sources radioisotopiques s'ajoutent maintenant les sources à l'américium-béryllium, et on disposera sans doute bientôt de sources au californium à fission spontanée. Toutes ces sources donnent évidemment un flux neutronique de faible intensité. De nombreuses améliorations ont été apportées aux accélérateurs de deutérons, à prix de revient peu élevé, qui produisent des neutrons de 14 MeV au moyen de la réaction $^3\text{H}(d,n)^4\text{He}$; ces appareils sont maintenant utilisés largement dans la recherche scientifique et l'industrie pour l'analyse par activation de neutrons thermiques

et de neutrons rapides à flux de moyenne intensité (10^7 à 10^9 n/cm² s). Parmi ces améliorations récentes, on peut citer notamment l'utilisation de pompes ioniques sous vide, de dispositifs de refroidissement des cibles, de cibles à forte teneur en tritium et de grandes cibles rotatives, la recharge des cibles au moyen d'un bombardement par ^3H et la déviation magnétique des ions D_2^+ . Les principaux progrès concernant les réacteurs de recherche utilisés pour l'analyse par activation neutronique comprennent l'utilisation de réacteurs comportant un porte-échantillons de grande capacité, pivotant dans un flux uniforme, ainsi que de réacteurs pulsés.

Les progrès suivants ont été récemment accomplis dans les techniques d'activation neutronique: a) utilisation systématique des flux intenses de neutrons rapides de fission obtenus dans les réacteurs; b) utilisation d'impulsion de forte intensité (10^{16} à 10^{17} n/cm² s) afin d'augmenter la sensibilité de détection des radioéléments artificiels de très courte période; c) utilisation de neutrons retardés pour la détection par activation d'espèces fissiles; d) mise au point de méthodes de séparation chimique très rapide après irradiation, maintenant appliquées avec succès pour les radioéléments artificiels ayant une période de quelques minutes.

A la suite des progrès récemment accomplis sur le plan des techniques et des réalisations, et d'une meilleure compréhension des possibilités offertes par l'analyse par activation neutronique, son application a pris une grande extension dans de nombreuses branches de la science, de l'industrie et de la médecine. L'activation au moyen de petits accélérateurs de deutérons est maintenant largement utilisée, en particulier dans les industries pétrolière et chimique, comme moyen d'analyse élémentaire courante, de sensibilité moyenne. Elle est surtout appliquée pour le dosage rapide de l'oxygène, au moyen de la réaction $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$, jusqu'à des concentrations de l'ordre de 5 ppm. De nombreuses améliorations ont été récemment apportées à cette technique: a) utilisation d'un double système pneumatique de transport (pour l'échantillon et l'étalon); b) mise au point de plusieurs systèmes très efficaces de mesure du flux; c) rotation de l'échantillon pendant l'irradiation; d) corrections pour la diffusion des neutrons et la diffusion des rayons gamma dans l'échantillon; e) mise au point de récipients à très faible teneur en oxygène. L'industrie chimique a aussi ouvert la voie à des applications intéressantes de l'analyse par activation: dosage des résidus de pesticides, dosage des résidus de catalyseurs dans les polymères et détection d'isotopes stables, tels que ^{15}N et ^{18}O , qui sont utilisés dans les études au moyen d'indicateurs. L'industrie charbonnière a fait d'intéressantes études au moyen de l'analyse par activation sur le dosage continu des cendres dans le charbon.

En géochimie, on poursuit d'importantes recherches sur le dosage des terres rares dans les météorites, le rapport des isotopes dans le calcium et la datation par Rb-Sr. Etant donné sa sensibilité extraordinaire, il est naturel que l'analyse par activation, au moyen des flux de neutrons intenses que l'on peut obtenir dans les réacteurs nucléaires, soit de plus en plus utilisée pour les matériaux d'une pureté extrême, tels que les métaux alcalins, Be, C, Al, Si, Ti, Fe, Ge, Zr, Nb et Pb. Un nouveau domaine d'application d'un très grand intérêt est celui des techniques policières, où plusieurs résultats importants ont déjà été enregistrés. Pour ce qui est de la recherche spatiale, un dispositif miniaturisé, entièrement automatique, d'analyse par activation neutronique a été mis au point pour l'étude de la surface de la Lune.

A/197 США

Успехи в области нейтронного активационного анализа

В. П. Гуинн

За время, прошедшее с 1958 года, в области нейтронного активационного анализа были достигнуты большие успехи. В докладе описыва-

ются основные достижения в разработке аппаратуры и способах применения нейтронного активационного анализа.

Значительно усовершенствованы все три источника нейтронов, применявшиеся в нейтронном активационном анализе: изотопы, ускорители и ядерные реакторы. К старым изотопным источникам в настоящее время прибавились америций-бериллиевые источники. В ближайшем будущем ожидается завершение работ по усовершенствованию источников, основанных на использовании спонтанного деления калифорния. Все это, конечно, источники нейтронных потоков малой интенсивности. Значительно усовершенствованы недорогие ускорители дейтронов, генерирующие нейтроны с энергией 14 Мэв с помощью реакции $\text{H}^3(d,n)\text{He}^4$.

В настоящее время такие ускорители широко используются в науке и технике для получения потоков тепловых и быстрых нейтронов средней интенсивности (от 10^7 до 10^9 нейтр/см²·сек), применяемых в активационном анализе.

В число усовершенствований, внесенных в последнее время в конструкцию этих ускорителей, входят: использование вакуумных ионных насосов; охлаждение мишеней; использование мишеней с высоким содержанием трития, больших вращающихся мишеней, мишеней, наполняемых бомбардировкой H^3 , магнитного отклонения ионов D_2^+ .

В число важнейших усовершенствований исследовательских реакторов, применяемых для нейтронного активационного анализа, входит широкое использование реакторов, снабженных вместительным вращающимся стендом для образцов, которые могут облучаться постоянным и импульсным потоком нейтронов.

Новые разработки в области методов активации нейтронами позволяют: 1) использовать потоки быстрых нейтронов спектра деления реактора, имеющие высокую интенсивности; 2) использовать импульсы высокой интенсивности (от 10^{16} до 10^{17} нейтр/см²·сек) для повышения чувствительности к обнаружению наведенных короткоживущих радиоактивностей; 3) использовать запаздывающие нейтроны для обнаружения делящихся изотопов; 4) успешно применить после облучения методы очень быстрого радиохимического разделения, что позволит определять наведенные радиоактивности, период полураспада которых исчисляется несколькими минутами.

Благодаря достигнутым успехам применение нейтронного активационного анализа расширилось во многих отраслях науки, промышленности и медицины.

В настоящее время небольшие дейтронные ускорители с успехом используются в нефтяной и химической промышленности для анализа элементов со средней чувствительностью. Особенно широкое применение этот метод на-

шел для быстрого определения кислорода с помощью реакции $O^{16}(n, p)N^{16}$ при концентрациях кислорода до $5 \cdot 10^{-4} \%$. В число осуществленных в последнее время усовершенствований данного метода входят: 1) использование двойной пневматической системы транспортировки (для образца и эталона); 2) применение ряда очень удачных систем для непрерывной регистрации интенсивности нейтронного потока; 3) осуществление вращения образца во время облучения; 4) внесение поправки на рассеяние нейтронов и γ -излучения в пробе; 5) разработка конструкции контейнера для образцов с крайне низким содержанием кислорода.

Химическая промышленность также нашла ряд новых интересных применений нейтронного активационного анализа: для исследования инсектицидного осадка, определения количества остатков катализаторов в полимерах и для радиоактивационного обнаружения стабильных изотопов, например N^{15} и O^{18} , которые используются в работах с изотопными индикаторами. Угольная промышленность провела интересное радиоактивационное изучение изменения состава золы в угле.

К наиболее важным геохимическим применениям нейтронного активационного анализа следует отнести количественный анализ содержания редкоземельных элементов в метеоритах, анализ относительного содержания изотопов кальция и датирование системой $Rb - Sr$.

Благодаря огромной чувствительности при использовании нейтронных потоков высокой интенсивности ядерных реакторов нейтронный активационный анализ находит все более широкое применение для работы с материалами высокой чистоты, например такими, как щелочные металлы Be , C , Al , Si , Ti , Fe , Ge , Zr , Nb и Pb .

Новой, очень интересной областью применения нейтронного активационного анализа является криминология. В этой области также сделаны большие успехи. Разработана малогабаритная автоматическая система нейтронного активационного анализа, которая в будущем будет использоваться для проведения анализа поверхности Луны.

A/197 Estados Unidos de América

Progresos en el análisis por activación neutrónica

por V. P. Guinn

En la memoria se describen los principales adelantos logrados en la técnica y las aplicaciones del análisis por activación desde 1958.

Se han registrado progresos considerables en los tres tipos de fuentes neutrónicas utilizadas para trabajos de análisis por activación: isótopos, aceleradores

y reactores nucleares. A las fuentes isotópicas ya utilizadas, se han añadido las de americio-berilio, y se confía en disponer pronto de fuentes de californio de fisión espontánea. Todas éstas son, desde luego, fuentes de bajo flujo neutrónico. Asimismo, se han perfeccionado considerablemente los aceleradores de deuterones, de costo reducido, que producen neutrones de 14 MeV por la reacción $^3H(d, n)^4He$; tales aceleradores se utilizan ampliamente en la ciencia y en la industria para análisis por activación con flujos medios de neutrones térmicos y rápidos (10^7 - 10^9 n/cm²s). Entre estos adelantos recientes cabe citar: el empleo de bombas iónicas de vacío, refrigeración del blanco, la utilización de blancos de elevado contenido de tritio y de blancos rotativos de grandes dimensiones, la regeneración del blanco por bombardeo con 3H y la deflexión magnética de los iones D_2^+ . Entre las novedades más notables referentes a los reactores de investigación utilizados para el análisis por activación neutrónica, figura el empleo generalizado de reactores de gran capacidad, de portamuestras rotativos en flujo uniforme y de flujos pulsados en reactores.

En los adelantos registrados en las técnicas de activación neutrónica cabe citar 1) el empleo sistemático de elevados flujos de neutrones rápidos del espectro de fisión, presentes en los reactores; 2) el empleo de flujos pulsados de elevada intensidad (10^{16} - 10^{17} n/cm²s) para acrecentar la sensibilidad de detección de actividades inducidas de período muy corto; 3) la utilización de neutrones retardados para la detección por activación de especies fisibles; 4) la elaboración de técnicas ultrarrápidas de separación química después de la irradiación, que ahora se aplican con éxito a las sustancias de radiactividad inducida cuyo período es sólo de contados minutos.

Paralelamente a estos progresos en cuanto a técnicas y posibilidades, y a la aceptación cada vez más amplia del método en razón de su utilidad, se ha registrado una considerable expansión de las aplicaciones del análisis por activación neutrónica, que se han extendido a muchos campos de la ciencia, la industria y la medicina. Dicho método se practica en la actualidad ampliamente, con ayuda de pequeños aceleradores de deuterones, sobre todo en las industrias químicas y del petróleo, para ejecutar con carácter regular análisis elementales de sensibilidad media. El método ha encontrado una aplicación especialmente intensiva para determinaciones rápidas del oxígeno por la reacción $^{16}O(n, p)^{16}N$, para concentraciones de hasta 5 ppm de oxígeno, aproximadamente. Algunos de los progresos efectuados recientemente en esta técnica son: 1) el empleo de un sistema neumático doble de transporte (para la muestra y el patrón); 2) varios sistemas excelentes de medición de flujo; 3) la rotación de la muestra durante la irradiación; 4) correcciones para tener en cuenta la dispersión neutrónica y de rayos gamma en la muestra; 5) perfeccionamiento de

portamuestras de muy reducido contenido de oxígeno. La industria química también ha explorado interesantes aplicaciones para la determinación de residuos de pesticidas, de residuos de catalizadores en polímeros y la detección, por análisis de activación, de isótopos estables, tales como el ^{15}N y el ^{18}O , utilizados para investigaciones con ayuda de indicadores. La industria del carbón ha realizado interesantes estudios mediante análisis por activación, sobre la determinación continua de los componentes de las cenizas del carbón.

En geoquímica, se realizan estudios sobre la determinación de la abundancia de tierras raras en los meteoritos, las razones isotópicas del calcio y la

determinación de edades con ayuda de Rb-Sr. Dada su extraordinaria sensibilidad, el método, practicado con los elevados flujos neutrónicos que proporcionan los reactores, encuentra cada vez más aplicación para la obtención de materiales ultrapuros, tales como los metales alcalinos, Be, C, Al, Si, Ti, Fe, Ge, Zr, Nb y Pb. Un nuevo campo de aplicación sumamente interesante es la criminología, en la que ya se han logrado importantes progresos. En la esfera de las exploraciones espaciales, se ha elaborado un dispositivo miniaturizado de análisis por activación neutrónica, completamente automático, para el estudio de la superficie lunar.

Separation and purification of certain radioisotopes for medical use

By A. A. Abdel-Rassoul, H. Fouad, A. Abdel-Aziz, S. S. Wahba and S. Mohammed*

This paper describes processes investigated recently for the separation and purification of certain radioisotopes for medical applications. All the radionuclides separated proved to be of a radiochemical purity exceeding 99%.

SULPHUR-35

Several methods are known for the production of carrier-free ^{35}S [1]. Potassium chloride is particularly suitable for the routine production of this radioisotope, wherein the neutron-induced ^{35}S ($T_{1/2} = 87$ d; $\beta = 0.17$ MeV) is subsequently separated from the gramme quantities of the irradiated target. Extraneous activities expected on pile-irradiation of chlorine in the target are due mainly to ^{36}Cl ($T_{1/2} = 3 \times 10^5$ yr; $\beta = 0.71$ MeV) and ^{32}P ($T_{1/2} = 14.5$ d; $\beta = 1.7$ MeV) radioisotopes.

The method described has been developed, therefore, for the production of carrier-free ^{35}S completely free from any contaminating ^{32}P activity. The behaviour of both carrier-free ^{35}S (as sulphate) and ^{32}P (as phosphate) on the strong basic anion exchanger, Dowex-1, was investigated and both activities quantitatively separated [2]. Distribution coefficient measurements for both $^{35}\text{SO}_4^{2-}$ and $^{32}\text{PO}_4^{3-}$ ions in potassium chloride solutions of different concentrations on the basic resin used were carried out resulting in a linear relationship between the logarithms of the values obtained and the eluant concentration in each case. Under similar experimental conditions, the distribution coefficient values for both ions are markedly different (cf. Fig. 1) thus ensuring a successful separation of both ions, particularly from dilute target solutions.

PROCESSING OF IRRADIATED TARGET

A suitable target weight (35 g) of A.R. grade KCl is irradiated in the 2 MW research reactor at Inchass for a convenient period, and subsequently cooled to allow for the complete decay of the 12.5 h ^{42}K activity

before being treated. The irradiated salt is dissolved in double-distilled water containing a few drops of H_2O_2 (30%) to oxidise any ^{32}P activity to the phosphate form. Excess H_2O_2 is removed by boiling and the target solution adjusted to a molarity of 0.01 to 0.02M in a polyethylene stock solution bottle.

The dilute solution is passed through a column of about 15 g freshly activated resin, Dowex-1, 8X, 100-200 mesh, in the chloride form. The collected effluents containing ^{32}P activity are carefully concentrated before being allowed to pass to the radioactive liquid waste. Under these conditions, carrier-free ^{35}S is firmly combined with the resin and subsequently freed from last traces of ^{32}P by further washing with 5 to 6 litres of 0.01M KCl solution. Traces of potassium can be removed by washing the charged column repeatedly with water till a negative sodium tetraphenylborate test for potassium is achieved [3].

To elute the ^{35}S quantitatively, 100 to 200 ml of 0.1M HCl solution are passed through the column

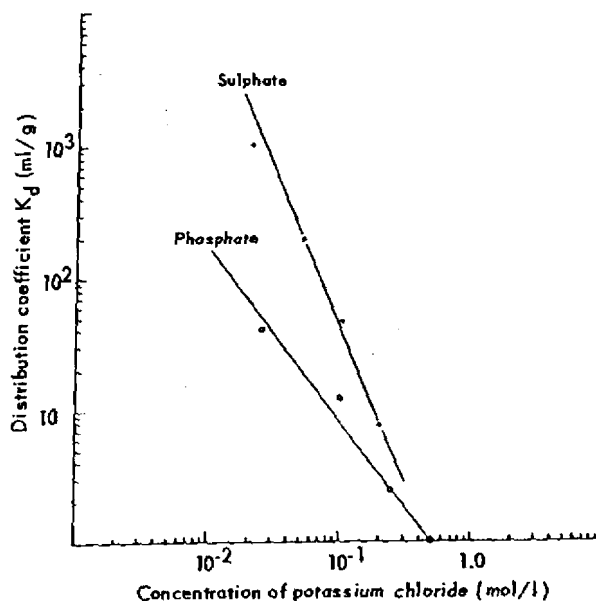


Figure 1. Distribution coefficient change with concentration of KCl eluant

* Nuclear Chemistry Department, Atomic Energy Establishment, Inchass.

and the collected eluants evaporated to dryness. The product is dissolved in dilute HCl and filtered.

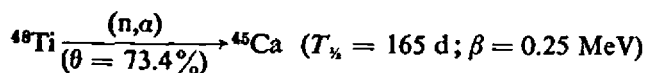
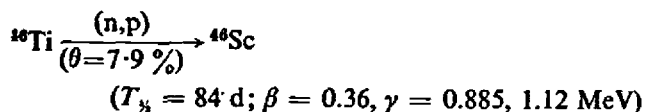
The radiochemical purity of the end product exceeded 99.9%, wherein no hard beta-emitters were detected, and all gamma-emitting isotopes proved to be absent. The absence of trace quantities of potassium, iron, aluminium, boron and other toxic elements was spectroscopically checked.

The method consumes practically no resin and requires only small quantities of chemicals.

CALCIUM-45 AND SCANDIUM-46

Calcium-45 of high specific activity is generally produced from neutron irradiated calcium targets enriched in the ^{44}Ca isotope, due to the low abundance of ^{44}Ca in targets of natural composition ($\theta = 2.06\%$) [4]. On the other hand, carrier-free ^{45}Ca and ^{46}Sc radioisotopes are obtainable from deuteron-bombarded titanium targets [5].

In the present work, both radioisotopes are separated successively in the carrier-free state from pile-irradiated potassium fluorotitanate K_2TiF_6 with an ion-exchange chromatographic technique. The nuclear reactions concerned are the following:



Other induced activities present after a short cooling period of the irradiated target are mainly due to ^{47}Sc ($T_{1/2} = 3.4 \text{ d}$), ^{48}Sc ($T_{1/2} = 1.8 \text{ d}$), and ^{47}Ca ($T_{1/2} = 4.5 \text{ d}$) radioisotopes.

The behaviour of both scandium and calcium ions on the strong acidic ion exchanger, Dowex-50, in hydrochloric acid solutions of different molarities has been investigated and the optimum conditions for their separation ascertained.

Distribution coefficient measurement

For the determination of the distribution coefficient K_d for both ions on resin in different HCl concentrations, the column method was used and the following equation applied [6]:

$$K_d = (V - i) / M$$

where V in ml represents the volume of eluant passing through the column until the maximum activity of the species investigated is eluted, and i is the volume of resin of weight M g used per experiment.

The results obtained under the same experimental conditions show that both ions behave differently

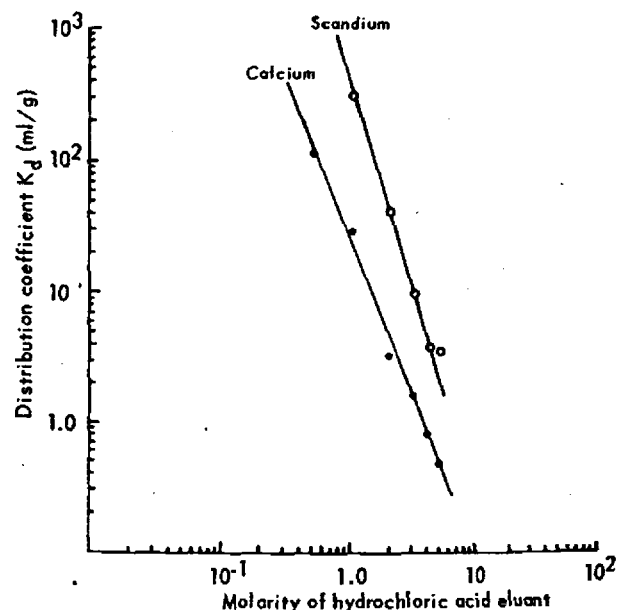


Figure 2. Distribution coefficient change with concentration of HCl eluant

(cf. Fig. 2; Table 1) and their separation can be successfully achieved with dilute HCl eluant concentrations. This allows calcium ions to be readily eluted and scandium left as a strongly combined ion on the resin.

Processing of the irradiated target

The pile-irradiated K_2TiF_6 target (10 g portion) after being left to cool a sufficient period to allow for the decay of any short-lived activities, is dissolved in one litre 0.2M HCl. The solution is filtered (G3 sintered glass disc) and passed through a column of 20 g

Table 1. Distribution coefficient change with HCl eluant concentration

Molarity of HCl	Eluant calcium	Volume (V) scandium	Distribution coefficient (K_d)	
			Calcium	Scandium
5.00	10.0	29.0	0.52	3.84
4.00	11.0	33.0	0.82	3.92
3.00	14.5	52.0	1.70	9.59
2.00	21.0	182.0	3.32	42.20
1.00	140.0	1 352.0	32.55	334.50
0.50	524.0	—	128.00	—

Notes:

1. The experiments were carried out at room temperature with 2 g portions of dried resin, Dowex-50, 8X, 100 to 200 mesh in the acid form, packed in a column 1 cm diameter. The resin was first charged with suitable aliquots of ^{45}Ca and ^{46}Sc activities and subsequently subjected to the eluting action of HCl solution investigated passing through the column at a flow-rate between 0.8 and 1 ml per minute.

2. The values of K_d are expressed in ml/g, and the eluant volume has the meaning in the above equation.

freshly activated resin, Dowex-50, 8X, 100 to 200 mesh, in the H⁺ form, previously freed from any resin particles of smaller size. The charged column is subsequently washed with one litre 0.2 – 0.3M HCl to effect the removal of last titanium traces as first runs (until peroxide test negative [7], and to elute quantitatively any target potassium [3]). Both collected effluents and HCl washings are then passed to the radioactive liquid waste.

The fractional separation of calcium-45 free from any ⁴⁶Sc takes place by allowing 1.2 to 1.5 litres of 1M HCl to pass through the column at a flow rate of 0.8 to 1.0 ml/min. The collected effluents are concentrated by evaporation, dissolved in dilute HCl and filtered before being ready for purity control tests.

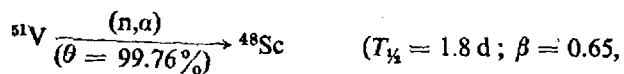
For the quantitative separation of carrier-free ⁴⁶Sc, on the other hand, 500 ml 4M HCl eluant are passed through the column and the effluents collected are concentrated, dissolved in dilute HCl and filtered.

Both products proved to be practically free from chemical residues, particularly titanium. The radiochemical purity of the ⁴⁵Ca finished product exceeds 99.9%. Hard beta-emitters proved to be absent as testified by an aluminium absorption curve, and gamma-emitters, particularly due to ⁴⁶Sc, were not detected from gamma ray spectrum determinations. Calcium-47 ($T_{1/2} = 4.5$ d), however, is only detectable in ⁴⁶Ca products processed from newly irradiated targets.

The radiochemical purity of the ⁴⁶Sc product was also tested (>99%) wherein a pure gamma scintillation spectrum is obtained from a cooled target after the complete decay of both the 3.4 d ⁴⁷Sc and 1.8 d ⁴⁸Sc.

SCANDIUM-48

A mixture of carrier-free scandium isotopes has been separated from pile-irradiated titanium targets [8]. Mixed scandium activities due to ⁴⁶Sc ($T_{1/2} = 84$ d), ⁴⁷Sc ($T_{1/2} = 3.4$ d), and ⁴⁹Sc ($T_{1/2} = 57.5$ min.), together with ⁴⁸Sc ($T_{1/2} = 1.8$ d) radioisotopes are, therefore, expected. A selective method has been presented for the preparation of carrier-free ⁴⁸Sc from neutron irradiated vanadium targets by both solvent extraction and ion exchange techniques [9]. The nuclear reaction concerned is represented:



$$\gamma = 1.31, 1.04, 0.99 \text{ MeV}).$$

Due to the possible formation of this reaction [10], and to the high percentage abundance of the ⁵¹V isotope ($\theta = 99.76\%$) in targets of natural isotopic composition, vanadium (as V₂O₅ and NH₄VO₃) is, therefore, chosen as a suitable target.

In neutron-irradiated vanadium, the formation of both ⁴⁶Sc and ⁴⁹Sc radioisotopes is not possible and the only extraneous scandium activity expected is due to the ⁴⁷Sc formed by (n,α) reaction on ⁵⁰V. The low percentage abundance of the isotope ($\theta = 0.24\%$), however, gives rise to an induced ⁴⁷Sc activity not appreciably affecting the radiochemical purity of the ⁴⁸Sc product.

Processing of the irradiated target

The irradiated target (15 g portions V₂O₅) after a 1 day cooling, is dissolved in concentrated HCl (about 150 ml) and carefully evaporated to a moist mass. 60 ml of 0.5M HCl and 53 g NH₄CNS are added and the pH of the mixture adjusted to between 1 and 2. The mixture is shaken twice with 100 ml portions of diethyl ether for 5 minutes each, the organic layer separated and evaporated gradually in presence of 10 ml concentrated hydrochloric acid. 20 ml concentrated nitric acid are carefully added and the mixture subsequently boiled to dryness. The residue left contains about 60% of the ⁴⁸Sc activity mixed with about 5% of target vanadium. It is dissolved in 4 ml concentrated hydrochloric acid together with 1 g oxalic acid as a complexing agent and the solution adjusted to 0.1M with respect to both acids. It is allowed to pass through a freshly activated column (1 × 25 cm) of the strong basic anion exchanger, Dowex-1, 8X, 100 to 200 mesh in its chloride form, whereby carrier-free ⁴⁸Sc is gradually eluted, leaving vanadium as firmly bound deep blue complex.

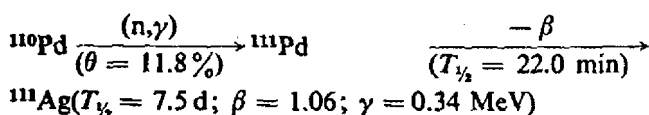
To the collected effluents containing ⁴⁸Sc and hydrochloric acid-oxalic acid washings (2 column volumes of 0.1M mixed acids) after being concentrated by distillation, H₂O₂ (30%) is added to effect the decomposition of oxalic acid on heating. Complete decomposition takes place by repeating this process, the residue being dissolved in 0.1M HCl and filtered.

The finished product gave negative tests for both vanadium [11] and oxalate ions. Its radiochemical purity was checked by decay curve determination ($T_{1/2}$ obtained is 1.8 d over a period of more than 6 half-lives), aluminium-absorption curve measurements and by gamma ray energy investigation. Within the accuracy of the measurements carried out, the radiochemical purity of the product exceeded 99%.

SILVER-111

The methods so far reported for producing carrier-free ¹¹¹Ag from neutron irradiated palladium [12] are either unsatisfactory or subject to a number of substantial defects. In the method presented, carrier-free ¹¹¹Ag is separated by co-crystallisation with NaCl and further purified by electrodeposition [13]. The ¹¹¹Ag activity induced in neutron-irradiated palladium

is formed as the beta decay product of the intermediate 22 min, ^{111}Pd radioisotope formed:



Preliminary experiments showed that silver is readily separable on NaCl crystals, while palladium remains in solution. This was further verified by evaluating the co-crystallisation coefficient of this process ($\lambda = 7.0 \pm 0.4$ at 50°C), which confirms the possible concentration of ^{111}Ag activity on NaCl crystals separated (*cf.* Table 2).

The product of processed ^{111}Ag in a saline medium can be readily used for medical preparations, or else it can be easily separated by electrodeposition on a platinum electrode and subsequently dissolved in nitric acid.

The method requires no special chemicals and renders possible the regeneration and repeated use of the palladium.

Processing of the irradiated target

Palladium used for pile irradiations is prepared by reducing a 0.1M hydrochloric acid solution of palladium chloride (A.R. grade) with 10% formic acid solution. The presence of trace metallic impurities in the target is first checked. If gold, silver or certain other metallic impurities are present, the target is subjected to the following purification procedure:

A solution of PdCl_2 in 8M HNO_3 , after being dissolved in the minimum of concentrated hydrochloric acid, is shaken successively with suitable portions of ether to effect the quantitative removal of gold in the organic layer [14]. Palladium is subsequently complexed with dimethylglyoxime by being shaken repeatedly with a chloroform solution of the complexing

agent in 1M H_2SO_4 [15], after the removal of nitric acid. The collected chloroform extracts are distilled and the residue decomposed by a dropwise addition of *aqua regia* followed by gradual heating. The residue freed from acid vapours is dissolved in 0.5M HCl and reduced to the metallic state.

The irradiated target (1 g) is left 48 hours to allow for the transformation of the 22 min ^{111}Pd to ^{111}Ag before being processed. It is dissolved in *aqua regia* (5 ml) and the solution evaporated to dryness, then concentrated HCl is added and subsequently evaporated. The residue is dissolved in 50 ml of a saturated NaCl solution (previously saturated at 50°C) and filtered through a G3 sintered glass disc into a double jacketed vessel kept at 50°C . By continuous stirring for 3 to 4 hours, about 45% of the NaCl is separated. The crystals formed are filtered and repeatedly washed with 10 ml portions of saturated NaCl solution (kept at 50°C) to remove any palladium activity.

A 20% solution of the NaCl crystals separated with carrier-free ^{111}Ag in a 0.1M HCl medium is electrolysed between two 1 cm² platinum electrodes placed 1 cm apart with a potential difference of 1.5 volts and a current density of 0.2 mA. With continuous stirring for about 4 hours, more than 95% of the ^{111}Ag is deposited. Subsequently, traces of NaCl are removed by repeated washing and the carrier-free ^{111}Ag is dissolved in 0.1M nitric acid.

The product proved to be free from all extraneous activities and its radiochemical purity exceeded 99.9%, as testified by the decay curve and a careful gamma ray energy investigation (*cf.* Fig. 3). The complete absence of the long-lived $^{110}\text{Ag}^m$ ($T_{1/2} = 253 \text{ d}$) in the finished product was also tested.

Irradiated palladium can be regenerated from the collected PdCl_2 filtrates and NaCl washings by reduction with concentrated formic acid and prolonged boiling. Complete reduction is indicated when the PdCl_2 solution is quantitatively changed to metallic granules with the subsequent decolorization of the solution. The collected palladium is separated by decantation, repeatedly washed and dried before being ready for re-use.

Carrier-free ^{111}Ag processed from regenerated palladium proved to be of an equal purity to that processed from newly purified irradiated palladium targets.

GOLD-199

Carrier-free ^{199}Au is obtained as the beta-decay product of the ^{199}Pt radioisotope formed as neutron induced activity in pile-irradiated platinum targets.

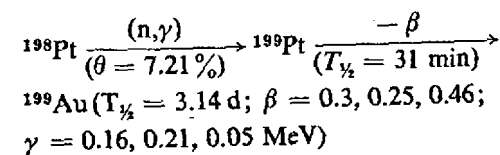


Table 2. Separation of carrier-free ^{111}Ag by co-crystallisation at 50°C

NaCl separated (per cent)	Silver activity (cpm)		Co-crystallisation coefficient (λ)	Silver separated (per cent)
	Original	Remaining		
9.53	115 670	59 780	6.62	48.32
12.62	114 450	31 190	7.37	72.75
24.27	115 590	12 340	7.36	89.33
52.90	122 780	470	7.26	99.62
53.70	131 200	760	6.70	99.40
55.30	117 000	380	7.12	99.68
			Mean 7.0 ± 0.4	

Notes:

1. The method used for evaluating λ depends on the isothermal evaporation of a saturated NaCl solution containing carrier-free ^{111}Ag at 50°C . The Doerner-Hoskins logarithmic equation is applied [21].

2. The rate of isothermal evaporation was about 0.1 ml/min.

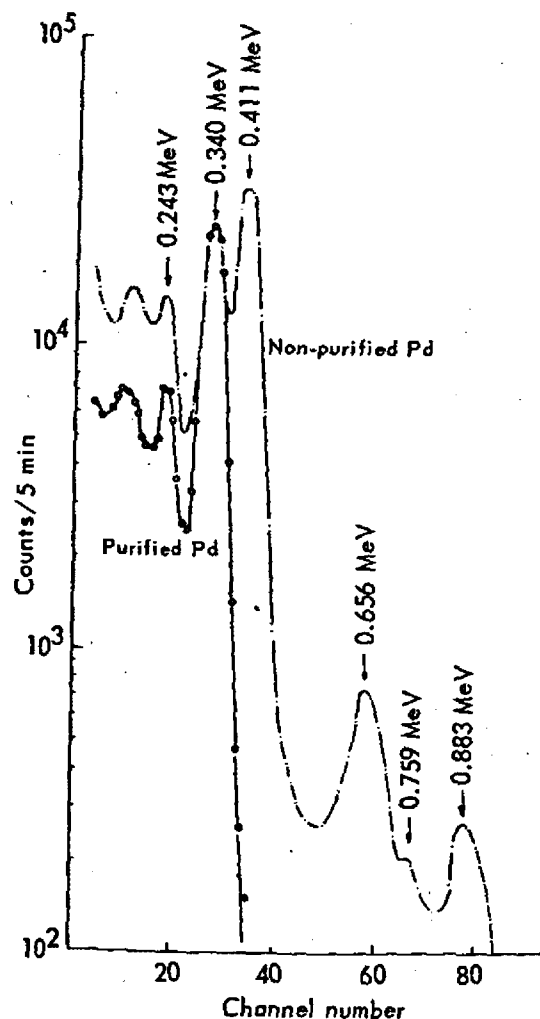


Figure 3. Compound gamma-ray spectrum of pile-irradiated palladium targets

It is generally separated from the target platinum by a solvent extraction technique [16]. However, from preliminary experiments carried out, carrier-free ^{199}Au proved to be readily separable by co-crystallisation with NaCl crystals. The different factors governing this phenomenon, as well as those affecting the chemical and radiochemical purity of the product, are still under investigation. These include the co-crystallisation coefficient determination, both in the presence and absence of platinum, the optimum conditions for the separation of carrier-free ^{199}Au from macro-quantities of target platinum, and the subsequent regeneration and repeated use of processed irradiated platinum.

GOLD-ON-CARBON PREPARATIONS

Suspensions of carbon with ^{198}Au are generally formed either by the adsorption of colloidal gold on carbon particles [17], or by the adsorption of gold in its $(\text{AuCl}_4)^-$ form and subsequent reduction [18]. In the procedure described, a solution of irradiated gold

is allowed to be adsorbed on carbon and then reduced with ascorbic acid. Accordingly, hazardous effects due to extraneous activities are not expected since the carbon particles are not subjected to pile neutrons.

By following the isothermal adsorption equilibrium of a neutralised solution of NaAuCl_4 containing ^{198}Au on carbon, the results obtained (*cf.* Table 3) show that in the absence of reducing agents, quantitative adsorption takes place only with optimum amounts not exceeding 20 mg gold per 100 mg carbon. By increasing the gold content, however, partial adsorption takes place and aggregation readily occurs. Nevertheless, the presence of a suitable reducing agent favours the adsorption of gold.

Recommended procedure

The active carbon used (Merck grade) was completely freed from trace iron and phosphate impurities by washing repeatedly with 3M HCl. To overcome difficulties due to aggregation when dealing with increased gold concentrations, the optimum quantities for the preparation of stable gold-on-carbon suspensions are those equivalent to 200 mg gold per gramme of carbon.

To a neutralised $\text{Na}^{198}\text{AuCl}_4$ solution (20 ml containing not more than 200 mg Au) and 10 ml water, 1 g purified freshly activated carbon is added and the mixture stirred for 30 to 45 minutes. A 1% ascorbic acid solution is then introduced (10 ml) and reduction completed by further stirring for 30 minutes. The gold-on-carbon particles are separated by filtration, washed repeatedly with double-distilled water and suspended in a dispersion medium suitable for medical use. This is prepared by mixing carboxymethyl cellulose (750 mg), 300 mg Nonex (polyethylene-glycol-600 oleate) and 150 mg NaCl in 150 ml hot water (70–75 °C) and vigorously stirred to form a completely clear viscous medium. It is added to the carbon particles with ^{198}Au and stirred for 15–20 minutes.

Table 3. Isothermal adsorption of gold on carbon at 25 °C

Gold content (mg)		Per cent adsorption	Observation
Original	Adsorbed		
I. Without reducing agent			
20	19.9	99.5	No aggregation
40	28.8	72.0	Aggregation
50	24.0	58.0	Aggregation
80	22.4	28.0	Aggregation
II. With reducing agent			
40	38.0	95.0	Aggregation

Notes:

- In all cases a suspension of activated carbon (100 mg portions) was equilibrated with 20 ml aqueous NaAuCl_4 solution at pH 7.
- Adsorbed gold is based on activity measurements of ^{198}Au in suitable aliquots from the aqueous phase before and after equilibrium.

CARBON PREPARATIONS WITH MIXED ^{198}Au AND ^{111}Ag RADIOISOTOPES

Due to the comparatively short half-life of ^{198}Au ($T_{1/2} = 2.7$ d), the problem of prolonged treatment of areas infected with tumors without being repeatedly injected can be solved by using colloidal ^{198}Au solutions with various levels of carrier-free ^{111}Ag [19]. The longer half-life of ^{111}Ag ($T_{1/2} = 7.5$ d) confers on such preparations a comparatively long effective action. The method described has, therefore, been developed for the preparation of carbon particles impregnated with mixed ^{198}Au and ^{111}Ag radioisotopes, in which case carrier-free ^{111}Ag is deposited on carbon particles previously coated with ^{198}Au . This can be achieved by mixing ^{198}Au , from an irradiated target solution, with carbon followed by the addition of carrier-free ^{111}Ag and subsequently reducing the mixture with ascorbic acid [20].

A layer of carrier-free ^{111}Ag is quantitatively dispersed on the preformed gold-on-carbon particles and is outstandingly stable.

Recommended procedure

A mixture of purified carbon (1 g), 20 ml of an aqueous solution of $\text{Na}^{198}\text{AuCl}_4$ (equivalent to 200 mg gold in a solution adjusted to pH 7), and 10 ml water is stirred continuously for 30-45 minutes. 100 ml of the saline solution containing the required level of carrier-free ^{111}Ag are added with further stirring for 15 minutes, after which period only about 50% of the original ^{111}Ag was found to have been adsorbed. 10 ml of a 1% ascorbic acid solution are introduced and reduction is completed by further stirring for 30 minutes, when more than 99% of the original ^{111}Ag is deposited in the solid phase.

The particles impregnated with both ^{198}Au and ^{111}Ag radioisotopes are filtered through a G3 sintered glass disc, washed and finally suspended in the dispersion medium previously used for gold-on-carbon preparations.

Both products, namely gold-on-carbon as well as carbon preparations with mixed ^{198}Au and ^{111}Ag , have proved to be comparatively stable, resisting desorption of either or both activities to any measurable extent in the dispersion medium used. Furthermore, sedimentation of carbon particles in both cases does not occur before the elapse of 30 minutes.

The same procedure can also be applied for the production of carbon particles coated with carrier-free ^{111}Ag ; in which case carbon coated with inactive gold is used and the method followed in the order given. Other trials for the preparation of stable carbon suspensions with carrier-free ^{111}Ag in the absence of gold, with and without a reducing agent, did not lead to satisfactory results.

REFERENCES

- (a) Hudswell, F., Miles, B. J., Payne, B. R., Payne, J. A., Scargill, P., and Taylor, K. J., U.K. Atomic Energy Authority, Report No. AERE-I/R-1386 (1954).
(b) Milenkovic, S., Teofilovski, C., Dizdar, Z., and Bircanin, Lj., Bull. Inst. Nucl. Sci. 'Boris Kidrich' (Belgrade), 12, 89-95 (1961).
(c) Giethoff, D., and Schneider, V., *Atompraxis*, 11, 423 (1961).
(d) Bresenti, M., Del Turco, A. M., Lauz, R., and Restelli, G., CNEN (Italy), Centro di Studi Nucleari, Ispra, Report No. CNI - 101, 14 (1961).
(e) Deshpande, R. G., *J. Chromatog.*, 2, 117-118 (1959).
- Abdel-Rassoul, A. A., and Abdel-Aziz, A., *Z. Anorg. Chem.*, 330, 91-95 (1964).
- Kohler, M., *Z. Anal. Chem.*, 138, 13 (1953).
- Hudswell, F., Miles, B. J., Payne, B. R., Payne, J. A., Scargill, P., and Taylor, K. J., U.K. Atomic Energy Authority, Report No. AERE-I/R-1386 (1954).
- Gile, J. D., Garrison, W. M., and Hamilton, J. G., *J. Chem. Phys.*, 18, 1685 (1950).
(b) Walter, R. I., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 6, 63-66 (1958).
(c) Anders, —, National Academy of Science, Nuclear Science Series, Report No. NAS - NS 3020, 204 (1961).
(d) Hall, K. L. and Meinke, W. W., *ibid.*, 210.
- (a) De Vault, D., *J. Am. Chem. Soc.*, 65, 532 (1943).
(b) Iguchi, A., *Chemistry*, 145 (1959).
- Sandell, E. B., *Colorimetric Determination of Trace Metals*, 870, Interscience Publishers Ltd., 3rd ed., London (1959).
- Abdel-Rassoul, A. A., Fouad, H., and Mohammed, S., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 26, 890-892 (1964).
- Abdel-Rassoul, A. A., and Mohammed, S., *Z. Anorg. Chem.*, 330 (1964) in press.
- (a) Mellish, C. E., Payne, J. A., and Otlet, R. L., Proceedings of the International Conference on Radioisotopes in Scientific Research, held in Sept. 1957, Paris, Pergamon Press, London (1958).
(b) Rochlin, R. S., *Nucleonics*, 17, 54 (1959).
- Sandell, E. B., *Colorimetric Determination of Trace Metals* p. 929, Interscience Publishers Ltd., 3rd ed., London (1959).
- (a) Haymond, H. R., Larson, K. H., Maxwell, R. D., Garrison, W. M., and Hamilton, J. G., USAEC Report No. AECU 624 (1949).
(b) the same, *J. Chem. Phys.*, 18, 391 (1950).
(c) Mellish, L. E., and Payne, J. A., U.K. Atomic Energy Authority, Report No. AERE-I/M-53 (1959).
(d) Taylor, D. M., *Intern. J. Appl. Radiation Isotopes*, 12, 66-67 (1961).
- Micheev, N. B., Abdel-Rassoul, A. A., and Fouad, H., *Z. Anorg. Chem.*, in press.
- Bock, R., and Bock, E., *Z. Anorg. Chem.*, 263, 146 (1950).
- Young, R. S., *Analyst*, 76, 49 (1951).
- Mellish, L. E., and Payne, J. A., U.K. Atomic Energy Authority, Report AERE-I/M-53 (1959).
- Spoda, E., and Prosch, U., *Strahlentherapie*, 114, 113 (1961).
- (a) Muller, J. H., and Rossier, P. H., *Acta Radiol.*, 35, 449 (1951).
(b) Hudswell, F., Miles, B. J., Payne, B. R., and Taylor, K. J., U.K. Atomic Energy Authority, Report No. AERE-I/R-1341 (1954).
- Serebriakov, N. G., and Gratcheva, M. A., *Radioactive isotopes of gold, ^{198}Au* , Atomizdat, Moscow (1960).
- Micheev, N. B., Fouad, H., and Abdel-Rassoul, A. A., *Strahlentherapie*, 164, 308-310 (1964).
- Doerner, A. H., and Hoskins, W. M., *J. Am. Chem. Soc.*, 47, 662 (1925).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/457 République arabe unie

Séparation et purification
de quelques radioéléments à usage médical

par A. A. Abdel-Rassoul et al.

Le mémoire est consacré à divers procédés nouveaux en vue de la séparation et de la purification de certains radioisotopes à des fins médicales. Ces méthodes sont recommandées pour produire ^{35}S , ^{45}Ca , ^{48}Sc , ^{49}Sc , ^{111}Ag et ^{199}Au sans entraîneur, des préparations de mélange ^{198}Au et ^{111}Ag sur carbone, ainsi que les suspensions de carbone avec de l'or inactif imprégné de ^{111}Ag . Tous les radioisotopes séparés atteignent une pureté chimique dépassant 92%.

A/457 OAP

Выделение и очистка некоторых
радиоактивных изотопов для использо-
вания в медицине

A. A. Абдель-Рассул et al.

В докладе рассматриваются некоторые недавно исследованные процедуры выделения и

очистки некоторых радиоактивных изотопов для использования в медицине. Описанные методы рекомендуются для получения ^{35}S , ^{45}Ca , ^{46}Sc , ^{48}Sc , ^{111}Ag и ^{199}Au без носителя, ^{51}Cr повышенной удельной активности, смеси ^{198}Au и ^{111}Ag в виде препаратов с углеродным покрытием или же в виде угольной суспензии с неактивным золотом, пропитанным ^{111}Ag . Все выделенные радиоактивные изотопы имеют радиохимическую чистоту выше 99%.

A/457 República Arabe Unida

Separación y purificación de ciertos
radioisótopos para uso médico

por A. A. Abdel-Rassoul et al.

Esta memoria trata de algunos procedimientos, estudiados recientemente, para la separación y purificación de ciertos radioisótopos para aplicaciones médicas. Los métodos descritos se refieren a la producción de azufre-35, calcio-45, escandio-46, escandio-48, plata-111 y oro-199, libres de portador; preparaciones de mezclas de oro-198 y plata-111 recubiertas de carbón, así como suspensiones de carbón con oro inactivo impregnadas con plata-111. Todos los radionúclidos separados tienen una pureza radioquímica que excede del 99%.

New developments in the accelerated isotopic labelling of organic compounds

By N. A. Ghanem *

This work is a continuation of a project first started in the Division of Nuclear Chemistry at the Royal Institute of Technology, Stockholm, Sweden. It is based upon the use of microwave energy to produce gaseous discharges in radioactive gases [1-3]. Tritium was the gas under study, but runs were also performed with $^{14}\text{CO}_2$ [12]. The work received favourable reviews [4] and offered such advantages that it was interesting to follow up and elaborate. Ions, free radicals, excited states and other energetic entities produced in the discharge can exchange with corresponding atoms in the organic target and result in labelling. Interest is concentrated on the parent molecule and not on the products eventually produced by the decomposition that is usually concurrent with labelling by accelerated techniques. These decomposition products are highly labelled, but their nature is not always predictable and they are usually present in such minute quantities that their separation from the parent compound and isolation for further use is very laborious.

There are slow methods for labelling of organic compounds. One of them is the Wilzbach method [5] which has found widespread application and which is based on mere exposure to tritium. This method is claimed to involve very little decomposition [6]. A disadvantage of it is that it requires days or even weeks and curie quantities of tritium for ionization. Another slow method, but which requires only milli-curie amounts of tritium, is that proposed by us [2, 3] which depends on excitation by ultraviolet radiation with or without a photosensitizer. The method is now being elaborated [8].

On the other hand, there are much quicker methods which depend on the acceleration of ions. A group of these methods involve the use of nuclear reactions such as $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ and $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ yielding radioactive charged labelling before and after they are thermalized [7]. The organic compound is simultaneously exposed to the γ flux of the reactor and vast decomposition occurs. The methods remain of academic interest [4]. Another group of these methods involve

the use of electrical gaseous discharges in which the ions gain energy from the field, e.g., the acceleration of positive ions towards a cathode coated with the target material in a d.c. discharge, [9, 10] or the use of a Tesla coil leak tester [11] connected to one electrode of a discharge cell with the target material on the other. These methods also entailed considerable decomposition of the organic material by sparking at the coated electrode.

In this work we have attempted to optimize the conditions in such a way that while the reaction is catalyzed, the material itself is protected from accelerated ions, sparking and high energy radiation; that is to say, conditions which are intermediate between the above two sets of methods. The microwave electrodeless discharge allows no sparking on the material which is placed at a measurable distance from the discharge zone.

MATERIALS

Target substances are given in Table 1.

Tritium gas was obtained from the Radiochemical Centre, Amersham, U.K., in small glass ampoules with fragile hook seals of capacity approximately 0.5 cm^3 and packed as shown in Fig. 1. The activity ordered was 100 mc per ampoule of tritium. Measuring the exact volume of the ampoule and the reaction tube with its accessories, and using the value of 2.580 c as the activity of 1 cm^3 of tritium at NTP, [13] it was possible to determine the activity in the amount of tritium supplied.

APPARATUS

Vacuum line: Reaction tubes had to be evacuated, heated *in vacuo* and sealed off before tritium was let in. The material to be labelled had also to be freed of adsorbed gas. For these reasons a vacuum line was used giving a steady vacuum of 10^{-4} to 5.10^{-5} mm Hg.

Vacuum gauge: This is a self-balancing Pirani-type instrument made by LKB-Produkter AB with a

* The National Research Centre, El-Dokki, Cairo.

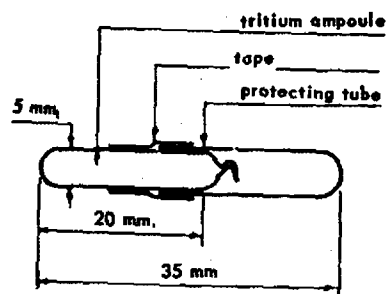


Figure 1. The tritium ampoule

rial, is fitted to the main discharge tube. The vacuum gauge tube is also fitted to the discharge tube at the opposite end. The reaction tube is shown in Fig. 2. A, B, C, D, E and F on this figure indicate positions of material and plasma in the runs to explore the effect of distance of material from the plasma zone.

Recorder: A "Speedomax" pen recorder of 10 mV total range was coupled to the special connections at the back of the vacuum gauge. The change of pressure with microwave energy could thereby be simultaneously recorded.

Microwave source: A Siemens "Radatherm" unit giving up to 200 W and operating nominally at 2 425 Mc/s was used. The newer model of the same firm's "No. 304 Radiotherm" microwave therapy apparatus is now available at the UAR Atomic Energy Establishment and was put into operation. Its main useful new feature for our purpose is its continuous power output control between 20 and 200 W. The antenna was replaced by a resonance cavity in order to use the microwave more efficiently and to increase the field strength in the gas. The production of a steady reproducible discharge in the reaction tube was not an easy job, as it is governed by several factors, some of which are unpredictable. The

measuring range of 10^{-3} to 70 mm Hg. The instrument is supplied with calibration charts for use when gases other than air are being measured. The heat-conductivity gauge tube was very appropriate for our purpose as it has a very small volume (less than 2 ml) and can be fitted conveniently to the reaction tube.

Reaction tubes: These were designed to fulfil the requirements of the microwave frequency and cavity dimensions. The tubes should be made of pyrex glass of thickness 1.3 mm and external diameter of 14.5 mm. In order to explore the bent-section technique, as is the case here, a small ampoule containing the finely divided material, mixed with glass wool to extend the surface and covered with a thin layer of this mate-

Table 1. Material for tritium labelling

Substance	Formula	M.W.	M.P. °C	Source
<i>l</i> -Cocaine hydrochloride		339.8	197	Astra A.B.
Astracaine hydrochloride		256.8	168	" "
Procaine hydrochloride		272.8	156	" "
Tetracaine hydrochloride		302.9	42-43	" "
Xylocaine hydrochloride, hydrated		288.8	74-75	" "
Carbocaine (base)		246.4	235.5	" "
Carboxymethyl cellulose		—	—	Prof. O. Samuelson, Gothenburg

main factors which had to be checked and standardized were the microwave resonance frequency, the cavity diameter and surface, and the type of glass of the reaction tubes and its wall thickness. Dr. B. Enander of the Microwave Division of the Royal Institute of Technology of Stockholm took a leading part in assessing such factors and making the use of microwave labelling feasible. The steps that lead to the successful utilization of the technique are discussed briefly in the following section; the complete picture will be discussed later.

THE CAVITY

Description: The cavity was made of massive brass bored cylindrically until the right diameter was reached. This diameter was calculated from microwave equations involving the wave frequency [1]. A hole in the centre of the bottom wall of 16 mm diameter and a similar one in the lid provide for the reaction tube. The generator cable and a tuning device are connected to the cylindrical wall, opposite to one another. A coaxial cable connects the generator to the cavity body by the use of a coupling ring. The cable ends inside the cavity with a wire loop, acting as the antenna, size 5×6 mm, fixed with its plane normal to the cavity discs. The tuning device is simply a rod-type micrometer terminating with a steel ball of 10 mm diameter. A drawing of the cavity is given in Fig. 3.

Tuning the cavity: The wave frequency of the generator was ascertained and was found to be 2 469 Mc/s instead of the value of 2 425 Mc/s given by the maker. The cavity diameter expected to include the resonance frequency within the range of the tuning device is accordingly 86.8 mm. When the cavity with this diameter was put on test, the results plotted in Fig. 4 [1] are obtained. It is shown that under these conditions a discharge can be obtained in the cavity only when a pyrex tube of 1.3 mm thickness is used. It is obtained near the zero position of the ball, since only then the resonance frequency coincides with the generator wave frequency. This critical situation was much improved when 0.5 mm of the cavity wall was removed bringing the diameter to 87.5 mm. It was then possible to keep the resonance frequency at an intermediate point on the tuning device and to provide a reasonable range for the plasma to set in as shown in Fig. 4 [2]. In this graph it is also noticed that in a quartz tube of the same wall thickness, a discharge cannot take place. This is probably due to differences in specific gravity and dielectric constant between the silicate glass and quartz. However, it was decided to use pyrex glass throughout the experiments, since it is easier to seal off in a vacuum and because it was found that it is less susceptible to microwave heating.

Modifications: At this stage some modifications were made to the cavity wall and discs. A thin window of 30 mm length and 0.5 mm breadth was made in the cylindrical wall to provide a view of the discharge intensity, and the discs were fitted with small brass leads allowing for forced air cooling when required. The cavity was again tested to ensure that the openings caused no shifting of the resonance frequency. This was actually so, and the results are plotted in Fig. 4 [3]. After that, to improve the electrical characteristics, the cavity was electrolytically plated with silver and again tested. The measured frequencies were found to have been slightly lowered as shown in Fig. 4 [4], giving perfect conditions for producing a discharge in a pyrex tube of 1.3 mm wall thickness.

Working pressure: A pyrex tube with the correct diameter and glass thickness was inserted in the cavity and connected through a three-way tap to a pumping system and the vacuum gauge. In this way, the tube could be evacuated to any required pressure, and, in reverse, air could be let in gradually to any measurable pressure up to atmospheric. A continuous plasma was produced at pressures between 0.1 and 25 mm. When, in reverse, the pressure was decreased, a plasma with the same characteristics was produced at a pressure of 20 mm and continued until it reached 0.5 mm. The process was reproducible with quite fair accuracy.

The cavity was then ready for work.

PROCEDURES

Evacuation and sealing: The reaction tubes were thoroughly cleaned with chromic mixture, distilled water, alcohol and ether, and heated *in vacuo*. With the tritium ampoule inside, the material in the side ampoule and the vacuum gauge tube in position, the tube is connected to the vacuum line and air pumped out; at first gradually and then thoroughly until a constant vacuum of at least 10^{-3} mm is attained. It was then sealed off. No measures were taken to reduce the loss of atoms by wall recombination [14].

Exposure: The tube is inserted to the required position at the centre of the cavity with the steel ball in the zero position. The set-up for microwave discharge labelling is shown in Fig. 5. After breaking open the tritium ampoule, simply by tilting, the generator is switched on at a selected power. The tuning device is rotated until the discharge commences. The change in pressure is followed by the vacuum gauge alone at intervals or continuously together with the pen recorder. It was found that the pressure falls in most cases but rises in some others. The catalytic reaction ends when the pressure reaches approximately the upper or lower limit specified in the previous section.

Purification: Purification is governed by the nature of the compound under question. As we are interested

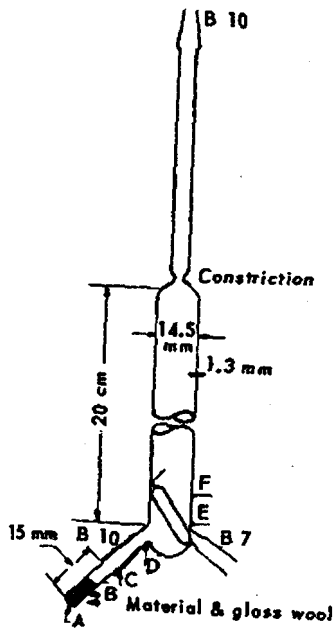


Figure 2. The reaction tube

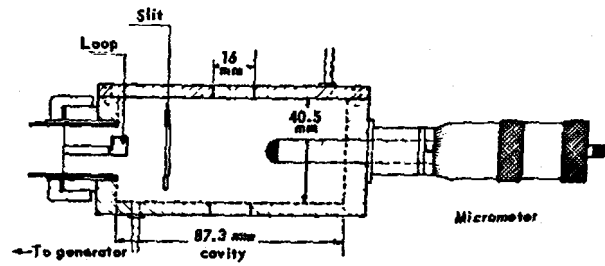


Figure 3. The resonating cavity

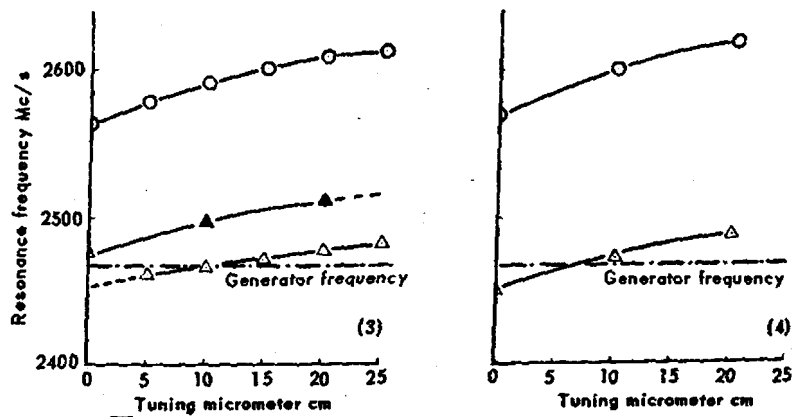
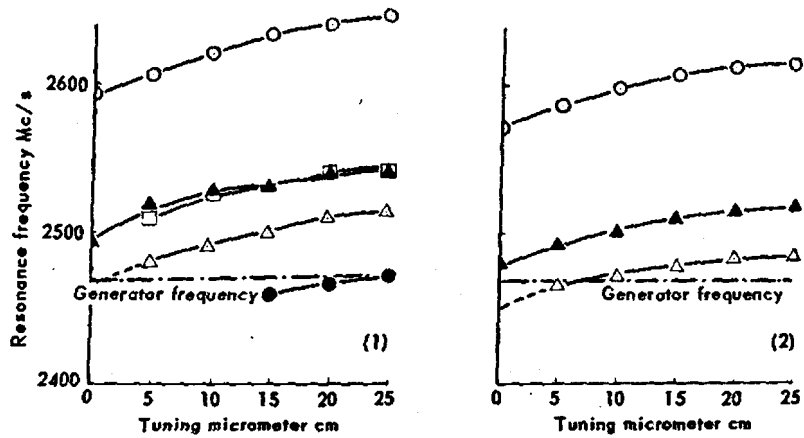


Figure 4. Tuning the resonating cavity
 White circles: without tube; white squares: with 1.0 mm thickness pyrex tube; White triangles: with 1.3 mm thickness pyrex tube; Black circles: with 1.9 mm thickness pyrex tube; Black triangles: with 1.3 mm thickness quartz tube

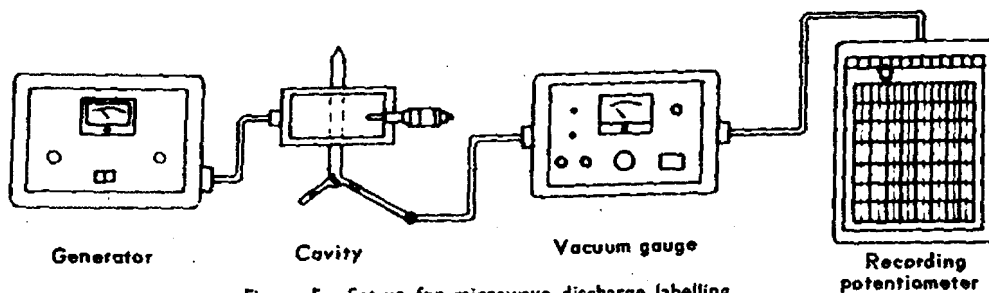


Figure 5. Set-up for microwave discharge labelling

in the parent molecule and not in the decomposition products, the methods are somewhat simplified. They include re-crystallization, paper and column fractionation, with and without isotopic dilution, and freeze drying. Purity criteria were obtained by passing the chromatographic paper under a windowless flow-counter connected to a recorder and observing spots corresponding to known R_f values of the compound in question.

Counting: The technique of β -liquid scintillation-counting was found quite convenient and reliable. Diphenyloxazole was used as the phosphor. Scintillation-counting was always performed at -20°C in darkness using toluene as the solvent. Applying 3 000 V to the photomultiplier tube with a discrimination level of 6 V, the background was usually around 20 counts per second and the efficiency of counting was very near 15%. The newer universal counter, type N664B, offers the improved feature of an increased counting efficiency for tritium, to 30%, with a reduced background down to 7.5 cps using a wide channel.

RESULTS

Cocaine hydrochloride: The initial conditions of all experiments are summarized in Table 2. Two runs were performed each with a portion of *l*-cocaine. In run 1 the reaction was followed intermittently by the use of the vacuum gauge alone, while in run 2 the reaction was followed continuously both by the gauge and the recording potentiometer. The change of pressure with microwave energy for both runs is given in Fig. 6, and the recorder trace for run 2 is reproduced in Fig. 7. In both runs a gradual elevation of pressure is observed, indicating that it is a characteristic of the compound undergoing labelling, rather than a function of the reaction conditions. As it was intended to examine the effect of distance on the reaction rate, the runs were conducted at variable relative distances of the target material to the discharge zone. In run 1, the material was always within the space marked A-B in

Fig. 2, and the lower edge of the cavity at position E, allowing a constant distance of about 4 cm between the centre of the material and the beginning of the plasma zone. In run 2 the cavity lower edge was fixed at position F, while the material was first kept within A-B for a period of 15 minutes, the distance being about 5 cm. The material was then gradually brought nearer to the discharge through positions C and D until finally some material was dropped inside the discharge zone. It is clear from the curves in Fig. 6 that the change of pressure, which is a function of the rate of reaction, depends on the distance between the target material and the region of the highest concentration of reactive entities in the gas. This concentration drops to zero or perhaps to a very small value for entities having a low kinetic energy at a distance of approximately 4.5 cm in this particular geometry.

The specific activity of *l*-cocaine after successive recrystallization from 1:1 ethanol: water, extraction of the base in toluene and chromatographic separation, reached a steady value of 8.2 mc/g for run 1 and 19 mc/g for run 2. Starting with almost the same weight of material and quantity of tritium, the results indicate that the extent of labelling is inversely proportional to the decomposition occurring simultaneously in this case, and that there is probably a maximum limit to the degree of labelling.

The optical activity of the substance was measured using a 1% solution in a 1 dm cell and sodium light at 20°C . Compared with the initial rotation, the labelled material was only slightly higher (35 to 40°C). It was, therefore, concluded that the optical activity of tritiated *l*-cocaine was, to a large extent, retained.

Procaine and tetracaine hydrochlorides: The hydrochlorides of procaine and tetracaine are discussed together since they exhibit similar behaviours in their response to excited isotopic gas and in their tritium fixation yield.

The material mixed with glass wool was distributed along the length A-C in the side tube and the cavity bottom disc was at position E; the shortest distance of

Table 2. Initial conditions for tritium labelling

Material	Weight (mg)	Vol. of reaction tube (cm ³)	Vol. of tritium ampoule (cm ³)	Starting pressure (mm T_d)	Tritium (mc)
<i>l</i> -Cocaine-HCl, run 1	70.9	23.5	0.47	1.1	86
<i>l</i> -Cocaine-HCl, run 2	71.0	26.0	0.47	0.96	83
Procaine-HCl	73.3	23.5	0.47	1.0	76
Tetracaine-HCl	75	23.5	0.47	1.15	86
Xylocaine-HCl.H ₂ O	78.0	26.0	0.48	0.98	80
Astracaine-HCl	72	23.5	0.45	0.98	73
Astracaine-HCl	72	26.0	0.48	0.96	79.5
Carbocaine (base)	73.6	23.5	0.47	1.1	86
Carboxymethyl cellulose	100.75	23.5	0.47	1.0	67

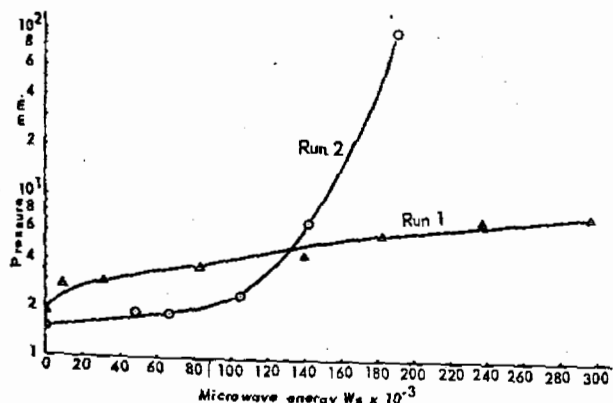


Figure 6. Increase of pressure with microwave energy

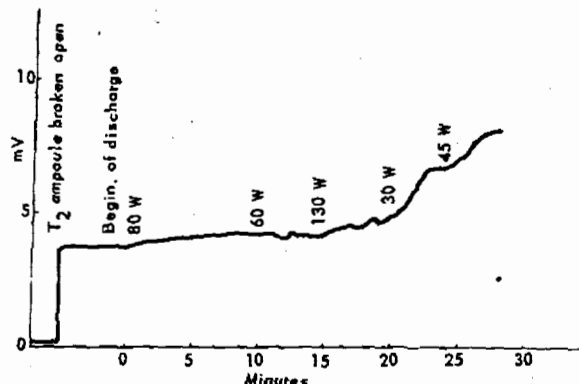


Figure 7. Recording potentiometer trace for *l*-cocaine labelling, Run 2

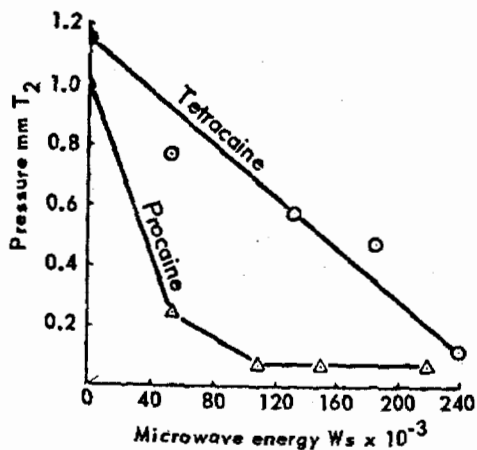


Figure 8. Decrease of tritium pressure with microwave energy in the labelling of procaine and tetracaine

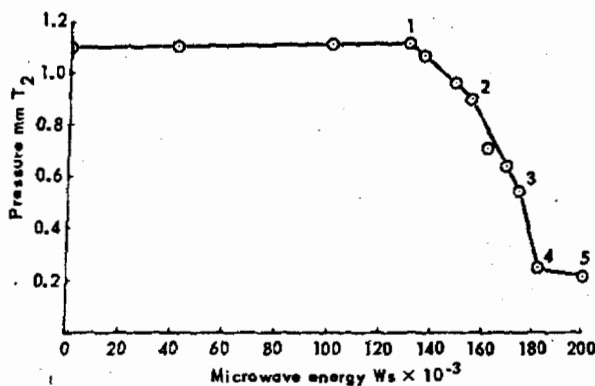


Figure 9. Decrease of tritium pressure with microwave energy in the labelling of carbocaine. Points 2, 3 and 4 indicate when the substance was brought nearer to the discharge zone

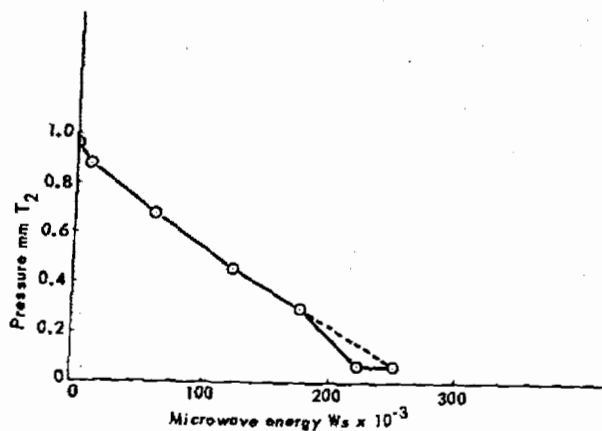


Figure 10. Decrease of tritium pressure with microwave energy in the labelling of Astracaine

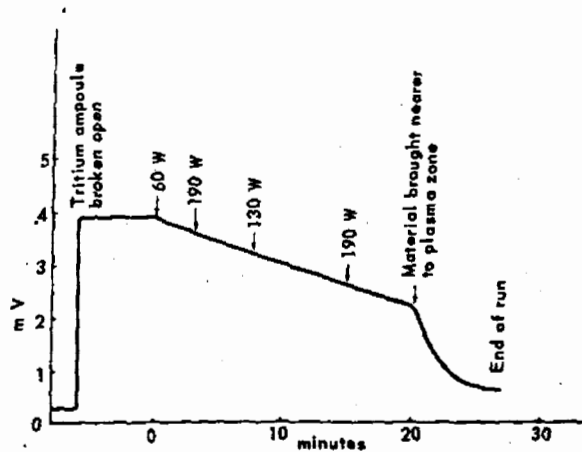


Figure 11. Recording potentiometer trace for the microwave discharge labelling of Astracaine

the material from the discharge zone was 2 cm. Tritium pressure was found to decrease with the applied microwave energy as it is shown in Fig. 8. This decrease was quicker in the case of procaine-HCl, indicating its higher response to tritium adsorption than tetracaine-HCl. This does not necessarily mean a higher percentage of fixation, as will be seen and discussed later.

The final activities of procaine and tetracaine were 4.83 and 9.57 mc/g, respectively.

Xylocaine hydrochloride, hydrated: As shown by its formula in Table 1, this compound contains one molecule of water of crystallization. It is probable that this water interfered with the continuity of the discharge. The reaction ended prematurely resulting in a lower specific activity of 1.95 mc/g.

Carbocaine base: The drop of pressure with microwave energy is given in Fig. 9. The material was kept in the side section over A-B with the bottom disc of the cavity at E (Fig. 2), about 4 cm apart from each other. Until point 1 on the curve was reached, no change of pressure occurred although 130×10^{-3} Ws of microwave energy were applied. This most probably means that the reactive entities of the gas are recombining without contacting the material, and that no tritium is lost by adsorption on the tube wall. At point 1, some material was patted to position C when a gradual consumption, indicated by the pressure drop, was observed. The rate of tritium consumption was increased when the material was patted further to position D. This is indicated by the steeper slope of the curve between points 2 and 3. At point 3, more material was brought to position D by patting and rotating the side section, resulting in a still steeper slope of the curve between points 3 and 4. At point 4 the tritium pressure reached a very low value and its consumption was again slow.

The constant specific activity of purified carbocaine was 21.73 mc/g.

Astracaine hydrochloride (called also by Astra AB, L67-HCl): In an attempt to obtain a higher specific activity, the material was exposed to microwave discharge in two successive runs. In the second run, the material, without purification, was again exposed to interaction with a fresh amount of tritium. The drop in pressure with microwave energy in the second exposure is represented graphically in Fig. 10, while the change of potential with time is reproduced in Fig. 11. The first exposure gave similar features. The power of the discharge was varied throughout the reaction time, and from the figures it is possible to conclude that it had almost no effect on the reaction course, since no change in the slope of the curve was observed by so doing. Only when the target material was deliberately brought within the discharge zone by the end of the exposure time was a sharper pressure

drop observed, meaning an increased rate of adsorption.

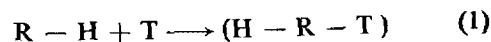
The final specific activity of the Astracaine was 64 mc/g.

Carboxymethyl cellulose: The material underwent tritium consumption rapidly and the reaction was completed in about 3 minutes. The process was followed simultaneously by the vacuum gauge and the recording potentiometer.

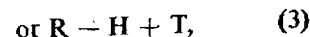
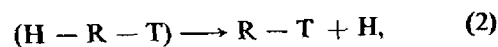
The specific activity of the material was 15 mc/g after several purification cycles, but after rigorous purification was found to be reduced to a very low value [15]. The case of carbosymethyl cellulose is considered unsuccessful and the reasons are explained in the next section.

DISCUSSION AND CONCLUSIONS

The production of labelled compounds by accelerated exchange is perfectly feasible without causing much radiation damage by the use of the bent section technique. It is possible that, with compounds having configurational instability or water of crystallization, such as cocaine and xylocaine respectively, collisions of the molecule with reactive entities cause decomposition of the compound with the evolution of gaseous fragments. It appears in most cases that bombardment is followed by a firm adsorption of the atomized gas. Under conditions similar to ours, but in a continuously pumped stream of low pressure hydrogen, Shaw [16] produced dissociation to atomic hydrogen of up to 90% yield. The walls were treated to reduce the loss of atoms by recombination, and an electron spin-resonance spectrometer and recombination calorimeter, placed at an unstated distance from the resonator, were used to measure the number of atoms in the gas flowing from the discharge. Our system was static, and when the target material in the bent section was about 4.5 cm away from the discharge region, no reaction took place. The evidence for this is the unaltered tritium pressure under these conditions due to its being unconsumed. As the target is brought nearer to the discharge a decrease of pressure was noticed in most cases. It is therefore possible to conclude that the mechanism can be represented as follows:



where $(H - R - T)$ is an unstable intermediate, of as yet uncertain nature, of the parent molecule and tritium which eventually dissociates:



depending upon the kinetic energy with which the atoms impinge on the target surface and the nature of the material itself. The ionizing β -radiation of

tritium in the intermediate complex (1) may also favour the possibility of (2). However the mechanism represented by (1) and (2) is plausible when activation energies of only 5 to 7 kcal/mol are adequate. All the compounds used for labelling, with the exception of carboxymethyl cellulose, contain aromatic rings (see Table 1) which are within the activation energy requirements [17]. In carboxymethyl cellulose, which should need a higher activation energy for substitution, the absence of any considerable radioactivity after purification indicates that the mechanism followed is that governed by (1) and (3). Hence, in the anaesthetic products, it can be suggested that most of the radioactivity introduced went to the benzene rings.

In Table 3, it is shown that the amount of tritium actually fixed in the organic material does not exceed 2% in the best case. Only in the case of Astracaine, when the compound was treated twice, the fixation percentage was increased to 2.97. These low values of fixation were the price of keeping the material away from possible radiation damage. This entailed a competition between reaction (3) and reaction (2) due to an insufficient activation energy for substitution at the target/gas interface.

The table also gives the fixation yield per unit of energy applied. The values tabulated are very small and indicate that the bent section technique does not, as expected, utilize the energy well. This state of affairs leads also to small equivalent G values for fixation, of the order of 10^{-6} . The order of fixation yields and equivalent G values are as low as those calculated from the data of Lemmon and Tolbert [18] although the reasons are different [3].

The power of the electrical energy does not seem to play an important role, as is shown in the runs involving variation in the power input. This is probably because of the very low fraction used in producing excited molecules and in breaking chemical bonds [1]. On the other hand, the distance of the material from the discharge seems to be much more decisive. In the case of carbocaine, for example, the fixation yields at various stages of the reaction were calculated and the

Table 3. Activity, percentage of fixed tritium and fixation fields

Compound	Activity mc/g	% Fixation	Fixation yield mc/Ws $\times 10^4$
<i>l</i> -Cocaine-HCl, run 1	8.2	0.68	0.31
<i>l</i> -Cocaine-HCl, run 2	19.0	1.61	0.45
Procaine-HCl	4.83	0.47	0.36
Tetracaine-HCl	9.57	0.84	0.36
Xylocaine-HCl	1.95	0.19	—
Astracaine-HCl	64.0	2.97	1.90
Carbocaine (base)	21.78	1.86	1.80
Carboxymethyl cellulose	—	—	—

Table 4. Effect of distance on fixation yield in carbocaine labelling

Position on curve (Fig. 9)	Distance from discharge	mc fixed	Energy input, Ws	Fixation yield $\times 10^4$
1—2	2 cm	0.830	25×10^3	1.1
2—4	1 cm	0.830	26×10^3	3.2

data are given in Table 4. It can be seen that the fixation yield is almost exactly tripled when the distance is reduced from 2 cm to 1 cm within the effective range.

ACKNOWLEDGEMENT

The author is deeply grateful to Professor T. Westermark for stimulating discussions and for proposing the use of the recording potentiometer; to Civ. Ing. N. Walde for supplying and purifying the anaesthetic products; to Mr. H. T. Hanna for technical assistance, and to the United Arab Republic Atomic Energy Establishment for providing facilities to continue and elaborate work on the labelling of organic compounds and their applications.

REFERENCES

1. Westermark, T., Lindroth, H., and Enander, B., *Intern. J. Appl. Radiation Isotopes*, **74**, 331 (1960).
2. Ghanem, N.A., and Westermark, T., *J. Am. Chem. Soc.*, **82**, 4432 (1960).
3. Ghanem, N. A., and Westermark, T., in *Radioisotopes in the Physical Sciences and Industry*, Vol. III, 43-67, IAEA, Vienna (1962).
4. Antony, Evans, E., *Reports on the Progress of Applied Chemistry*, **47**, 112 (1962).
5. Wiltzbach, K. E., *J. Am. Chem. Soc.*, **79**, 1013 (1957).
6. Roth, L. J., Wiltzbach, K. E., Heller, A., and Koplan, L., *J. Am. Pharm. Assoc.*, **48**, 415 (1960).
7. Rowland, F. S., and Wolfgang, R.; Wolf, A. P., Mackay, C. S., and Libby, W. F., in *Radioisotopes in Scientific Research*, Vol. II, 105-145, Pergamon Press (1958).
8. Ghanem, N. A., and Abdel-Ghany, A. H. (to be published).
9. Guillaume, M., *Radioisotopes in the Physical Sciences and Industry*, Vol. III, 69, IAEA, Vienna (1962).
10. Wolfgang, R., Pratt, T., and Rowland, F. S., *J. Am. Chem. Soc.*, **78**, 5132 (1956).
11. Dorfman, L. M., and Wiltzbach, K. E., *J. Phys. Chem.*, **63**, 799 (1959).
12. Lindroth, H., Preliminary private communication on 31.10.62.
13. Jones, W. M., *Phys. Rev.*, **100**, 124 (1955).
14. Wittke, J. P., and Dicke, R. H., *Phys. Rev.*, **103**, 620 (1956).
15. Private Communication from, and in collaboration with Professor O. Samuelson, Gothenburg, Sweden.
16. Shaw, T. M., *J. Chem. Phys.*, **27**, 1366 (1959).
17. Schiff, H. I., and Steacie, E. W. R., *Can. J. Chem.*, **29**, 9 (1951).
18. Lemmon, R. H., Tolbert, B. M., Strohmeier, W., and Whittemore, I. M., *Science*, **129**, 1740 (1959).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/458 République arabe unie

Nouveaux développements
dans le marquage isotopique accéléré
des composés organiques

par N. A. Ghanem

Les composés organiques marqués se montrent d'une utilité croissante dans les applications scientifiques, dans les domaines médical, biologique et chimique aussi bien que dans l'industrie chimique organique. Après avoir passé en revue des travaux précédents, le mémoire décrit une nouvelle méthode permettant de préparer en quelques minutes de tels composés en laboratoire et montre les avantages de la méthode.

Un générateur de micro-ondes du type laboratoire a été utilisé pour produire de l'énergie d'environ 12 cm de longueur d'onde, de fréquence 2 425 MHz et d'une puissance variant de manière continue entre 20 et 250 W. On s'en est servi comme un moyen d'accélérer la réaction d'échange — mais non d'accélérer les ions — entre le tritium gazeux et divers anesthésiques et d'autres produits pour obtenir un marquage non spécifique et spécifique de l'ordre de 50 mCi/g ou plus, selon la quantité de substance. Parmi ces produits on peut citer la carbocaïne, la procaine, la tétracaïne, la xylocaïne et la L-cocaïne. L'énergie est concentrée dans une cavité sphérique simple spécialement construite, où la fréquence de résonance obtenue par un appareil de syntonisation permet de produire une décharge sans électrodes dans le tube de réaction.

Deux particularités nouvelles sont soulignées. La première est l'enregistrement simultané du cours de la réaction. Pour cela, le manomètre de vide est couplé à un enregistreur Speedomax à aiguille de 10 mV d'échelle totale; ainsi la variation de la pression du gaz avec l'énergie micro-onde est enregistrée de manière continue. Dans le cas de la plupart des composés on a noté une diminution de la pression, et un accroissement graduel avec le reste. On formule des conclusions quant à l'importance relative de la puissance de la décharge et de la distance de la substance cible de la zone du plasma. La seconde particularité est l'emploi d'un tube recourbé. La substance à marquer est pulvérisée et mélangée avec de la laine de verre dans un raccord recourbé relié au tube principal dans lequel la décharge a lieu. Ainsi, la substance est protégée des rayonnements UV et est éloignée des entités chargées. La méthode convient donc pour le marquage d'une manière générale, y compris celui des matières sensibles au rayonnement et à la chaleur,

puisque aucun étincellement n'a lieu. En refroidissant le tube dans de l'azote liquide, on peut aussi marquer des liquides et les gaz condensables, comme dans le cas du benzène et de l'oxyde d'éthylène.

La méthode est caractérisée par la présence d'un minimum de produits de décomposition, et des techniques de purification relativement simples sont suffisantes pour obtenir une pureté radiochimique. Les résultats confirment le mécanisme atome-molécule proposé précédemment par l'auteur, car il est peu probable que des particules chargées de la zone du plasma atteignent la substance cible dans la section recourbée. Le rendement de fixation et l'efficacité du procédé ont été calculés.

A/458 OAP

Новый быстрый способ получения
меченых органических соединений

Н. А. Ганем

Меченые органические соединения находят все большее применение в медицине, биологии и химии, а также в производстве органических соединений. После литературного обзора в докладе описываются новые исследования, в результате которых получение этих соединений в лабораторных условиях стало делом нескольких минут, а также указываются преимущества данного способа.

В работе использовался генератор сверхвысокой частоты с длиной волны 12 см и частотой 2425 Мгц и плавным изменением мощности на выходе от 20 до 250 вт. Этот генератор использовался как инструмент, ускоряющий обменную реакцию (отнюдь не за счет ускорения ионов) между газообразным тритием и различными анестезирующими веществами и другими материалами, в результате которой они становились неспецифически и специфически мечеными, причем их активность достигала 50 мкюри/г или более в зависимости от количества исходного материала. Среди изученных продуктов были: карбокаин, прокаин, тетракаин, ксилокаин и L-кокаин. Энергия концентрировалась в специально изготовленной простой по конструкции сферической полости, в которой при помощи настраиваемого устройства создавалась резонансная частота и проходил безэлектродный разряд в реакционной трубке.

Следует отметить две важные особенности. Первая заключается в непрерывной регистрации хода реакции. Это достигнуто путем соеди-

нения вакуумметра с самопишущим электронным потенциометром типа «спидомакс» со шкалой на 10 мв, в результате чего изменение давления газа при поглощении энергии регистрируется без перерывов. Для большинства изученных соединений имело место падение давления, а для других — постепенный рост. Сделаны выводы об относительной важности энергии разряда и расстояния мишенного материала от зоны плазмы. Вторая особенность заключается в использовании бокового отростка. Материал, в который нужно ввести тритий, измельчается в порошок и смешивается со стеклянной ватой в боковом отростке, соединенном с основной трубкой, в которой происходит разряд. Таким образом, материал предохраняется от ультрафиолетовых лучей и удаляется от места разряда. Поэтому данный метод является подходящим для получения самых разнообразных меченых соединений и в том числе чувствительных к действию излучения и тепла, поскольку материал не вступает в непосредственный контакт с искровым разрядом. При охлаждении трубки жидким азотом можно произвести также меченые жидкостей и конденсирующихся газов, например бензола и окиси этилена.

Характерной особенностью метода является минимальное образование продуктов разложения и для получения нужного препарата в радиохимически чистом состоянии достаточно относительно простой техники очистки. Полученные результаты являются дополнительным обоснованием ранее предложенного одним из авторов механизма атом — молекула, так как заряженные частицы из зоны плазмы, вероятно, не достигают мишенного материала в боковом отростке трубки. Приводятся данные о выходах и эффективности метода.

A/458 República Árabe Unida

Progresos recientes en el mercado de compuestos orgánicos por aceleración isotópica

por N. A. Ghanem

Los productos orgánicos marcados están teniendo aplicaciones cada vez más útiles en el campo de las ciencias médicas, biológicas y químicas, así como también en la industria de los productos químicos orgánicos. Después de revisar los trabajos precedentes, esta memoria describe los últimos progresos realizados en la producción de estos compuestos en el laboratorio en cuestión de pocos minutos, exponiendo las ventajas del método.

Se utilizó un generador de microondas de laboratorio para producir microondas con una longitud de

onda aproximada de 12 cm, una frecuencia de 2425 MHz y una potencia de salida continuamente variable entre 20 y 250 W. Se las utilizó como medio de acelerar reacciones de intercambio, sin producir aceleración iónica, entre tritio y una variedad de anestésicos y otros productos, dando lugar a procesos de marcado específico y no específico del orden de 50 m/g o más, según la cantidad de material. Entre estos productos se encuentran la carbocaina, procaína, tetracaina, xilocaina, y la L-cocaina. La energía se concentró en una cavidad esférica de construcción especial pero sencilla, donde la frecuencia de resonancia obtenida por un sistema de sintonía permite que se produzca en el tubo de reacción una descarga sin electrodos.

Se hacen resaltar dos importantes innovaciones. La primera consiste en el registro simultáneo del curso de la reacción. Se consiguió acoplado el vacuómetro a un registro gráfico («Speedomax») con una amplitud máxima de escala de 10 mV, con el que se registra continuamente la variación de la presión del gas en función de la energía de la microonda. Con la mayor parte de los productos se observa una disminución de la presión, mientras que con el resto, se advierte un aumento gradual de la misma. Se deducen conclusiones respecto a la importancia relativa de la potencia de la descarga y a la distancia entre la sustancia blanco y la zona de plasma. La segunda innovación consiste en la utilización de un tubo acodado. El producto que se quiere marcar se introduce pulverizado y mezclado con lana de vidrio en un tubo lateral acodado unido al tubo principal, en el que tiene lugar la descarga. De esta forma se consigue proteger al material de la acción de la radiación ultravioleta, alejándolo también de las partículas cargadas. Por lo tanto, el método es apropiado para marcar los productos más diversos, incluyendo aquellas sustancias sensibles a la acción del calor y de la radiación, ya que durante la operación no se produce chispa de ningún tipo. Enfriando este tubo con nitrógeno líquido, pueden marcarse también sustancias líquidas y gases condensables, como en el caso del benceno y óxido de etileno.

El método se caracteriza por la presencia de productos de descomposición en cantidades mínimas, bastando técnicas de purificación sencillas para conseguir purezas radioquímicas. Los resultados conseguidos aportan una nueva confirmación del mecanismo átomo-molécula propuesto con anterioridad por el autor, ya que no es probable que llegue ninguna partícula cargada procedente del plasma al material blanco depositado en el tubo acodado. Se calculan los rendimientos de fijación así como también las eficacias conseguidas.

Neutron counting in activation-analysis

By S. Amiel *

Neutron emission is a relatively rare phenomenon in radioactive decay. When it is observed under specified conditions, or when it is taken together with another property (e.g., half-life), it can be used for the identification and assay of specific nuclides and elements in an irradiated sample. The same is true for the emission of neutrons from a nuclear reacting system, especially with radioactive sources, where the emission is frequently characteristic of the source or target nuclides.

Neutrons can be detected selectively without any interference from beta and gamma ray background. This is advantageous in comparison with beta or gamma ray counting, where there is practically no specificity if chemical separation is not done. It has also advantages over gamma-ray spectrometry, where the identification of characteristic peaks and their resolution might be very difficult without chemical separation in complex samples, because of interferences due to the multitude of peaks, shifts and variations in the spectra. Another favourable feature of neutron counting is the relatively high efficiency of detection with apparatus which is simple and made of inexpensive components, such as boron trifluoride proportional counters, water or paraffin moderator and rather conventional electronic gear. The specificity of neutron emission together with the salient features of neutron counting make neutrons a very useful probe for analyses, which can be performed in a non-destructive manner making radiochemical separations unnecessary. This paper reviews recent and current work carried out in this laboratory on the development and use of neutron counting techniques for analysis. The processes which were investigated for their analytical possibilities consist of delayed neutron emission, photoneutron emission and (α , n) reactions.

DELAYED NEUTRON EMISSION

Except for the isotopes of heavy elements, which undergo spontaneous fission, the number of radioactive nuclides known to emit neutrons in the course of

their decay is very limited and their half-lives are short, ranging from a fraction of a second to some tens of seconds. These nuclides, known as *delayed neutron precursors*, originate from nuclear reactions leading to neutron-rich nuclides having a few neutrons more than a closed shell configuration. They decay by beta-ray emission to an excited state of the daughter from which de-excitation by neutron emission is energetically possible. The neutron emission is an instantaneous process, but its rate is determined by the decay of the precursor and has the same half-life.

Most of the known delayed neutron precursors are fission products; a few others have been observed in the products of high energy spallation of medium weight nuclei and in fast-neutron or triton-induced reactions on some light nuclei. This review deals only with the observation of delayed neutrons from reactor irradiations, where delayed neutron emission from fission products and nitrogen-17 are the only practical sources.

Delayed neutron emission is quite rare, and the two sources have significantly different half-lives. Their production can be made specific by an appropriate choice of source materials and irradiation conditions. The detection of delayed neutrons without interference is of great importance, since an intense background is always present as a result of the radioactivation of other components of the sample. The application of delayed neutron emission from these sources will be discussed in connection with the analysis of uranium, thorium and other fissionable nuclides. The delayed emission from nitrogen-17 is applied to the analysis of lithium, lithium-6, oxygen-18 and nitrogen-15.

DELAYED NEUTRON EMISSION FROM FISSION [1]

The delayed neutrons emitted after fission are divided into six groups whose half-lives range from a fraction of a second to just under one minute. The groups themselves are composites of several, mostly unresolved activities, as can be seen from the small discrepancies between the same groups from different fissioning sources [2]. These differences are not

* Israel Atomic Energy Commission.

important when the total neutron emission is used for analytical purposes.

When delayed neutron emission is observed in a sample irradiated with neutrons, the presence of a heavy nuclide which undergoes fission, or of reactions leading to formation of $4.2 \text{ s } ^{17}\text{N}$ due to the presence of oxygen or nitrogen and ^6Li , can be inferred. A fissionable nuclide is indicated unambiguously by delayed neutron emission, if the half-life is long enough to exclude the presence of ^{17}N . If the sample is of natural origin and is irradiated with thermal neutrons, the delayed neutron emission arises from ^{235}U . If the sample is not of natural origin, ^{235}U , ^{239}Pu , or other transuranic nuclides which undergo fission with thermal neutrons, may also be present. Natural heavy nuclides in which fission is induced by energetic neutrons from a reactor are ^{232}Th and ^{238}U . Other nuclides should be taken into account in which transuranic elements may be present also. The difference in fissionability with respect to different neutron energy ranges in various nuclides enables discrimination against some nuclides while fissioning and measuring others. The conventional methods for determining trace quantities of uranium or thorium in complex matrices are time-consuming and require elaborate chemical processing prior to measurement. The experimental difficulties in these methods and the need to cope with large numbers of analyses for geological survey programs, and the nuclear energy raw material industries, emphasize the need for a faster and preferably non-destructive analytical procedure, such as is offered by delayed neutron counting. Since the half-life of delayed neutron activity is short ($<1 \text{ min}$), prolonged irradiation only increases the total radioactivity of the sample without contributing to the delayed neutron emission. An irradiation time of 60 seconds was used in the experiments.

Some delay between the end of irradiation and the start of counting is required to transfer the sample from the irradiation position to the counting assembly. This period should be short, though too short a delay requires high reproducibility in the timers controlling the delay period. Fluctuations in the delay period could introduce appreciable errors into the results, due to rapidly decaying short-lived components of the delayed neutron activities from fission or ^{17}N in the first 10 seconds or so after the end of irradiation. Since the 22-second group contributes most of the activity, a delay of ~ 20 seconds was used. The duration of counting should be chosen as long as possible commensurate with the half-life of the group counted, and should be sufficient to record most of the neutrons emitted. Too long a counting period increases the contribution of background without adding appreciably to the neutron count and thus actually reduces the accuracy of the measurement. An optimal counting period of 60 seconds appears to be convenient.

Table 1. Measured delayed neutron activities and cadmium ratios of uranium and thorium

Samples of $1 \mu\text{g}$ of uranium and thorium irradiated at a mixed flux of $10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ thermal neutrons and $3.6 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ fast neutrons

Element	Net count (at mixed flux)	Net count (with cadmium cover)	Cadmium ratio
Uranium . . .	800	36.0	22.5
Thorium . . .	10.2	9.4	1.1

The analysis of uranium [1, 4]

Of the isotopes of natural uranium, ^{235}U undergoes fission with thermal neutrons with a high cross section, while ^{238}U requires fast neutrons with energies over 1 MeV and has a cross section smaller by about two orders of magnitude. For the analysis of the total uranium content of natural isotopic composition, use of thermal neutrons is preferred, since fast neutrons can cause fission in other nuclides as well. However, neutrons in reactors usually consist of thermal neutrons mixed with partially moderated fission-spectrum neutrons with sufficient energy to cause fission of ^{238}U . Even under such conditions, fission of ^{235}U is predominant and when uranium is the only fissionable element in the sample to be analyzed, the presence of fast neutrons in the reactor flux is not disadvantageous. If thorium is present in relatively large amounts, fission by fast neutrons can introduce errors in analysis for uranium, and the use of thermal neutron screens and comparison with standards become necessary.

Natural uranium ($1 \mu\text{g}$) irradiated for 60 seconds at a flux of 10^{13} thermal neutrons per $\text{cm}^2 \text{ s}$ yields, after a delay of 20 seconds, an emission of about 11 500 neutrons during the 60-second counting period. The delayed neutron count is directly proportional to the uranium content. Experimental values are given in Table 1. The precision of this method is shown in Table 2. Because the total uranium content is assayed rather than its concentration, the precision stated in the table can be increased with larger weights of samples of even lower concentrations. The maximum weight of sample to be analyzed is limited only by

Table 2. Error estimates in assay of natural uranium^a
Standard deviation (%) for different U samples at a background of 30 counts

No. of measurements	$10 \mu\text{g U}$	$1 \mu\text{g U}$	$0.1 \mu\text{g U}$	$0.03 \mu\text{g U}$
1	1.12	3.66	14.8	35.6
2	0.80	2.59	10.5	24.4
3	0.65	2.12	8.5	19.9
5	0.50	1.64	6.6	15.5
10	0.36	1.16	4.7	9.2

^a $1 \mu\text{g U} = 800$ counts, obtained with a flux of $10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$.

experimental conditions. Improved precision for lower uranium contents is obtainable by repeating the irradiation (each analysis takes only a little over 2 minutes) and summing the neutron counts obtained. An important advantage is that the analysis is non-destructive and if the samples are weighed into suitable containers, analyzed samples may be stored for reference or returned unopened.

The isotopic analysis of uranium [1,3]

Because fission, especially by thermal neutrons, is so specific a characteristic of the minor but most important constituent of uranium, ^{235}U , delayed neutron emission may be a good probe for the isotopic composition of uranium. The analysis must be carried out on a sample free from other nuclides which undergo fission with thermal neutrons. In such a sample, fission induced by thermal neutrons can only be due to ^{235}U and counting the delayed neutrons gives a measure of the content of this isotope, irrespective of the uranium-238 content or the presence of other elements. The isotopic ratio of ^{235}U to ^{238}U can then be derived if the total uranium content is known.

When a mixed neutron flux is used for the analysis, delayed neutrons are emitted from both ^{235}U and ^{238}U , but as the effect of the lighter isotope is predominant, the value obtained can serve as a measure of the uranium-235 content. Re-irradiating the same sample in a flux from which the thermal neutrons have been removed by a cadmium screen enables the uranium-238

content to be deduced, since much of the contribution from uranium-235 is eliminated. Irradiation of the uranium sample with and without a cadmium screen enables the determination of both ^{235}U and ^{238}U , irrespective of the presence of foreign non-fissionable materials.

The determination of ^{235}U in a mixed flux with and without a cadmium screen is shown in Table 3: corrections due to the mutual interference of the uranium isotopes as well as self-shielding and coincidence losses are also presented. The principal sources of error arise from fluctuations in the reactor flux. This may be kept to a minimum by calibrating the reactor fluctuations by repeated measurements with a standard unopened sample.

Analysis of thorium [1,4]

Thorium resembles ^{238}U in that it undergoes fission with fast neutrons, but it has a somewhat lower fission rate and a lower delayed neutron emission than uranium-238 under identical irradiation conditions, and hence the sensitivity for thorium analysis is lower than for uranium. As the sensitivity depends on the abundance of fast neutrons, thorium analysis requires the use of more intense neutron fluxes of fast neutrons and relatively larger samples than does uranium analysis. Table I gives representative values obtained experimentally.

A major hindrance in the assay of thorium is that thorium ores usually contain uranium, and hence the contribution from fast neutron fission of uranium has

Table 3. Accuracy and precision of isotopic analyses of uranium-235

I Sample No.	II Meancount		III Corrections		IV Difference V - III	V Weight ^{235}U		VI Error $\mu\text{g VII-VIII}$	VII Relative error % 100.(IX)/ (VIII)	VIII Count per unit weight ^{235}U
	Open	With Cd	Coincidence	Self- shielding		Found μg	Present μg			
1	21 568	993	21 713	21 755	20 762	854.3	849.7	+ 4.6	+0.54	24 435
2	41 223	1 263	41 723	41 899	40 636	1 669.5	1 670.2	- 0.7	-0.04	24 330
3	42 879	1 136	43 429	43 647	42 511	1 746.3	1 733.7	+ 12.6	+0.73	24 520
4	65 275	1 487	66 555	65 044	65 557	2 691.2	2 667.5	+ 23.7	+0.89	24 576
5	49 733	1 067	50 453	50 817	49 750	2 043.7	2 040.6	+ 3.1	+0.15	24 380
6	46 263	920	46 903	47 290	46 370	1 905.1	1 888.8	+ 16.3	+0.86	24 550
7	48 498	853	49 188	49 732	48 879	2 007.9	1 997.9	+ 10.0	+0.50	24 465
8	33 736	1 184	34 076	34 188	33 004	1 356.1	1 367.7	- 11.6	-0.85	24 131
9	3 901	133	3 905	3 908	3 775	155.3	158.4	- 3.1	-1.96	23 837
10	45 246	865	45 856	46 343	45 478	1 867.9	1 878.4	- 10.5	-0.56	24 211
11	66 610	1 260	67 910	68 993	67 733	2 781.1	2 814.2	- 33.1	-1.18	24 068
12	90 964	1 668	93 464	95 459	93 791	3 847.3	3 808.3	+ 39.0	+1.02	24 628
13	177 625	3 266	186 925	194 830	191 564	7 826.2	7 971.3	-145.1	-1.82	24 032
14	268 023	5 140	289 023	310 867	305 727	12 455	12 760	-305	-2.39	23 960
15	283 131	5 344	306 631	331 306	325 962	13 279	13 559	-280	-2.07	24 040
16	310 257	5 301	338 257	367 939	362 638	14 742	14 966	-224	-1.50	24 231
17	328 709	6 278	360 609	393 861	387 583	15 754	15 643	+111	-0.71	24 777
								Mean:	± 1.04	24 304

Mean relative error: - 0.41 %. Relative standard deviation: 1.09 %.

Table 4. Error estimates of thorium assay in uranium-thorium mixtures

Thorium (μg)	Uranium (μg)						
	1	5	10	50	100	500	1 000
	Relative standard deviation (%)						
5	28.4	46.0	61.2	—	—	—	—
10	16.0	24.1	31.5	46.7	—	—	—
50	5.2	6.3	7.5	10.2	18.7	28.9	—
100	3.5	3.9	4.4	5.6	9.6	14.7	28.7
500	1.5	1.52	1.58	1.7	2.3	3.2	5.9

NOTE. — 9.4 counts per μg. of thorium (in cadmium). 36.0 counts per μg. of uranium (in cadmium). Background = 30 counts. Irradiation flux consists of 10^{13} n/cm² s thermal neutrons and 3.6×10^{14} n/cm² s fast neutrons.

to be determined as a correction. These analyses require the removal of thermal neutrons, e.g., by cadmium screens, from the irradiation flux. The interference by uranium is corrected for by determining the uranium-235 content as described previously and, assuming the sample to be of natural isotopic composition, the corresponding contributions from the epithermal neutron fission of both uranium isotopes can be deduced (Table 1). The precision of thorium assay in different uranium-thorium mixtures is shown in Table 4.

Determination of ²³³U and ²³⁹Pu in thorium and uranium breeding [4]

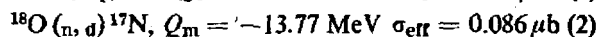
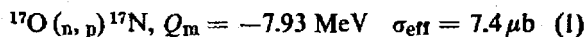
Determination of the ²³⁹Pu and ²³³U produced by breeding from their parent elements is usually done by remotely controlled radiochemical techniques, which are required because of interference from the accompanying intense beta and gamma ray activities from fission. Uranium-233 and ²³⁹Pu have similar fission properties to ²³⁵U, while thorium resembles ²³⁸U. The assay of ²³⁹Pu produced in ²³⁸U or natural uranium fuel elements, or ²³³U in thorium blankets, is again therefore analogous to the uranium-thorium determination. The adaptation of the delayed neutron emission technique for process control might have great advantages, since the need for chemical processing prior to assay is avoided or minimized considerably. A further in-line control could also be developed along the lines of the present method, using portable neutron sources.

Prospecting for uranium and thorium [4]

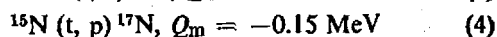
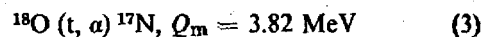
By introducing a neutron source into a bore hole, fission will be caused in the uranium and thorium present in the irradiated volume, resulting in delayed neutron emission. The presence of delayed neutron activity of half-life longer than about 4 seconds would establish the presence of uranium and thorium and give an indication of the concentration.

DELAYED NEUTRON EMISSION FROM NITROGEN-17

The delayed neutron precursor, 4.1 s ¹⁷N, can be produced directly by neutron irradiation in the reactions [5]:



or by secondary reactions using the 2.7 MeV tritons from ⁶Li (n, α) t:



The application of delayed neutron counting for analysis of oxygen by reactions (1) and (2) is possible only with high fluxes of fast neutrons; when lithium-6 is present together with oxygen, the production of ¹⁷N from the reaction ¹⁸O (t, α) ¹⁷N, induced by the tritons emitted from the thermal neutron reaction with ⁶Li, becomes predominating. The very high cross section of the reaction ⁶Li (n, α) t with thermal neutrons leads to a high yield of ¹⁷N and makes it possible to use its delayed neutron emission for analysis. When nitrogen is present together with lithium-6, nitrogen-17 can also be produced by the reaction ¹⁵N (t, p) ¹⁷N.

The extent of production of nitrogen-17 depends on the degree of mixing of lithium-6 with the oxygen- or nitrogen-containing medium, because of the short range of the tritons. Solutions provide maximum intimacy and homogeneity, and when dilute, corrections due to self-shielding and attenuation of tritons are avoided. The production of ¹⁷N in dilute ⁶Li solutions irradiated with thermal neutrons has been found to be proportional to the total ⁶Li content of the sample and to the atom fraction of oxygen-18 [6,7], but independent of the water content. Hence, the neutron emission from nitrogen-17 can be used to determine the lithium-6 content of a solution if the atom fraction of oxygen-18 of the sample is known; conversely, if the lithium-6 content is known, the atom fraction of oxygen-18 can be determined. Nitrogen-15 can be determined by an analogous process. The analysis of ⁶Li, ¹⁸O or ¹⁵N by this technique need not be limited to solutions since any other intimate mixture of ⁶Li - ¹⁸O or ⁶Li - ¹⁵N will yield ¹⁷N when irradiated with neutrons. The ¹⁷N production parameters for solid mixtures, colloidal systems or compounds should be determined specifically for each case since they depend on the physical properties of the sample.

A 20-second irradiation results in the build up of ¹⁷N virtually to its saturation level, and counting its activity over an equal period is sufficient to record >95% of its decay. Therefore, analyses based on measuring ¹⁷N are very rapid, requiring less than 45 seconds for the entire procedure of irradiation and counting.

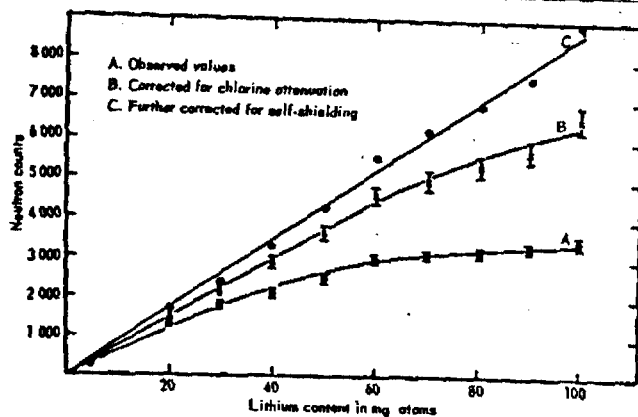


Figure 1. Variation of neutron counts from ^{17}N with lithium content, for LiCl solutions in natural water

Analysis of lithium [6]

Since the production of nitrogen-17 in a thermal neutron flux is a specific property of the ^6Li isotope, the determination of total lithium can be carried out only on samples of natural or otherwise known isotopic composition. When irradiation is carried out with a mixed reactor flux fast neutron interaction with the oxygen in the sample might interfere with the analysis and the count obtained from this source must be subtracted as part of the background effect. This can be done by repeating the analysis with cadmium screens which absorb the thermal neutrons and the difference between the results obtained from unscreened and screened irradiation represents the net effect of the ^6Li induced reaction.

An experimental curve of delayed neutron counts from ^{17}N obtained for lithium in solution in natural water is shown in Fig. 1. Deviation from linearity due to self-shielding is observed at higher concentrations of lithium. Corrections for self-shielding may be calculated [8] or may be made experimentally by repeating the measurement with a smaller sample.

Interference due to fission can be detected by following the decay of the neutron emission. A half-life appreciably longer than 4.1 seconds is indicative of the presence of fissionable material. The amount of fissionable material can then be determined following the procedure for the analysis of uranium, and the extent of interference by this amount of uranium in the lithium analysis can be obtained by comparison with a uranium standard irradiated and measured under the same conditions as the lithium sample.

Isotopic Analysis of lithium [6]

The determination of lithium as described in the previous section is essentially a determination of ^6Li . Four $\times 10^4$ neutrons are obtained from a solution containing 1 mg of ^6Li irradiated to saturation at a thermal flux of 10^{13} n/cm 2 s. With samples in which the total lithium content is known, analysis by counting

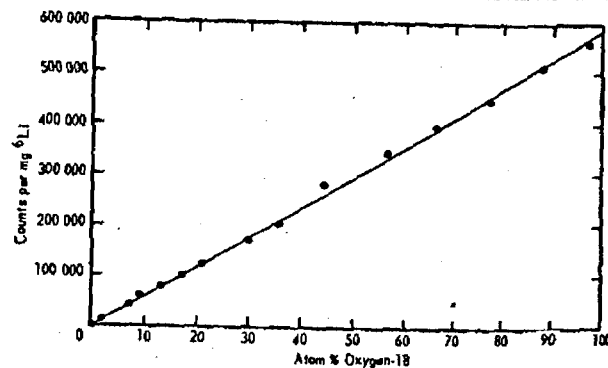


Figure 2. Variation of neutron count per mg lithium-6 with isotopic composition of oxygen

delayed neutrons from nitrogen-17 gives the isotopic composition. The neutron count of lithium dissolved in natural water is proportional to the atom fraction of lithium-6 over the entire range. For ^6Li -depleted samples, the low count obtained with natural water can be overcome by higher fluxes, by using water enriched with oxygen-18 as described in the next section, or by the use of more concentrated solutions.

Analysis of oxygen-18 [7]

The importance of oxygen-18 as a stable tracer for oxygen has created the need for rapid analytical methods. The delayed neutron count is directly proportional to the atom per cent of ^{18}O , provided that the lithium content is fixed and that the irradiation conditions are kept constant. This proportionality is shown in Fig. 2, and its independence of sample size, in Fig. 3. Hence, analysis could be carried out even on a single drop of solution. The ratio of oxygen-18 to lithium-6 atoms does not affect the proportionality between the neutron counts per unit weight of ^6Li and the ^{18}O concentration, for ratios ranging over many orders of magnitude. This enables a selection of suitable ^6Li contents to be made, to give a neutron count in a predetermined range, and thus reduces statistical errors in counting, provided the lithium-6 content is kept below a level where errors from self-shielding become important.

The reaction $^{18}\text{O}(t, \alpha)^{17}\text{N}$ may be used for the determination of total oxygen. Intimate mixtures of the sample and lithium-6 can be made with fine particles in an inert gas atmosphere, or by fusing them together or by dissolution in an inert medium. The measurements are made in a way analogous to the analysis of oxygen-18, the total oxygen content being derived if the isotopic composition of the oxygen is known.

Other analytical uses of nitrogen-17

The formation of nitrogen-17 by fast neutron irradiation of oxygen (in the absence of lithium-6) can

form the basis for the analysis of total oxygen in a sample. This can be done either with a high flux of fast neutrons in a reactor or with neutrons from an accelerator. A fission spectrum neutron flux of 10^{14} n/cm² s will give at saturation a total neutron emission of about 650 neutrons per mg oxygen [5].

The production of nitrogen-17 by the reaction $^{15}\text{N}(t, p)^{17}\text{N}$ could form the basis for the analysis of nitrogen-15, which is an important stable tracer for nitrogen. Such an analysis requires oxygen-18 to be absent from the sample, or to be present only in known and very low amounts, since its presence would be revealed as a background which would have to be deducted from the measured count of the sample.

DELAYED NEUTRONS COUNTING METHOD

The procedure of analysis by counting delayed neutrons involves the irradiation of the sample in a neutron flux from a reactor or from an alternative neutron source of sufficient strength, transfer to a neutron-counting assembly and counting after a certain delay.

The apparatus used in conjunction with the reactor IRR-1 is outlined diagrammatically in Fig. 4. The counting assembly consisted of a ring of six $^{10}\text{B F}_3$ neutron counters embedded in a block of paraffin wax. During counting, the sample was situated in the centre of the block. Pulses from the counters were fed through an amplifier to a fast scaler, which was started automatically by an electronic timer at a definite preset delay period after the end of irradiation. An array of borated paraffin bricks around the counting assembly was used to shield the counters against background radiation.

Gamma-ray background was discriminated against efficiently. The counting assembly results were found to be stable and reproducible over long periods of time. Photo-neutron emission induced by the action of high-energy gamma rays from other activities in the sample or sample container on the deuterium of the paraffin was negligible.

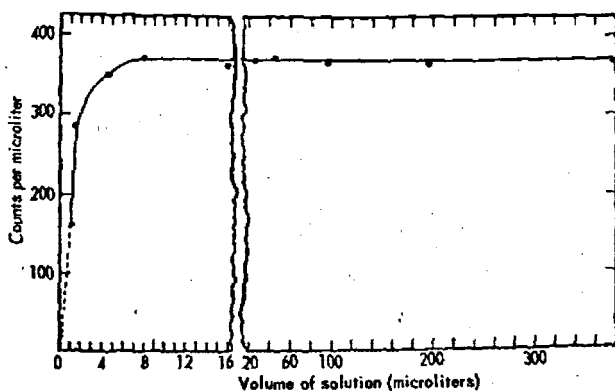


Figure 3. The effect of sample volume on the ^{17}N neutron counts obtained from $^6\text{Li-}^{18}\text{O}$ solutions

The counting efficiency of delayed neutrons from fission and ^{17}N was about 10%.

PHOTONEUTRON EMISSION

Radioactivation analysis is commonly based on the formation of a specific radioactive nuclide and the subsequent measurement of its radiations. When other activities are present, and chemical treatment should be avoided, or is impossible due to the short half-life of the nuclide in question, gamma-ray spectrometry is used to resolve the characteristic gamma ray of interest. When the resolution is insufficient due to a complex spectrum, coincidence analysis is practised in favorable cases, e.g., for $\gamma\text{-}\gamma$ cascades. These techniques require relatively expensive instrumentation and results are on occasion unsatisfactory. Destruction of the sample by chemical separation is then unavoidable, and when the half-life concerned is very short, the concentration at trace level and the matrix complex, conventional activation analysis does not give results.

When the radionuclide in question has a relatively high energy gamma ray, it is sufficient in most cases to discriminate against lower energy γ -rays and to measure the gross activity of radiation above this level. Further differentiation from other activities in the same energy range is made by following the half-life. When this nuclide occurs in a complex matrix, and its activity forms only a small part of the gross activity of a highly active sample, analysis without prior chemical processing is hindered by the overloading of the detector and its paralysis during most of the counting time. Electronic discrimination becomes difficult and the accuracy and sensitivity decrease, giving rise to the need either for chemical separations or, if non-

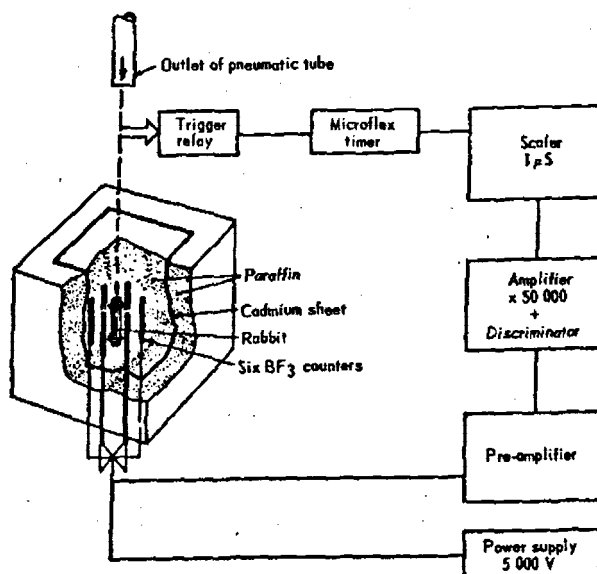


Figure 4. Neutron counting assembly and block diagram of electronic circuit

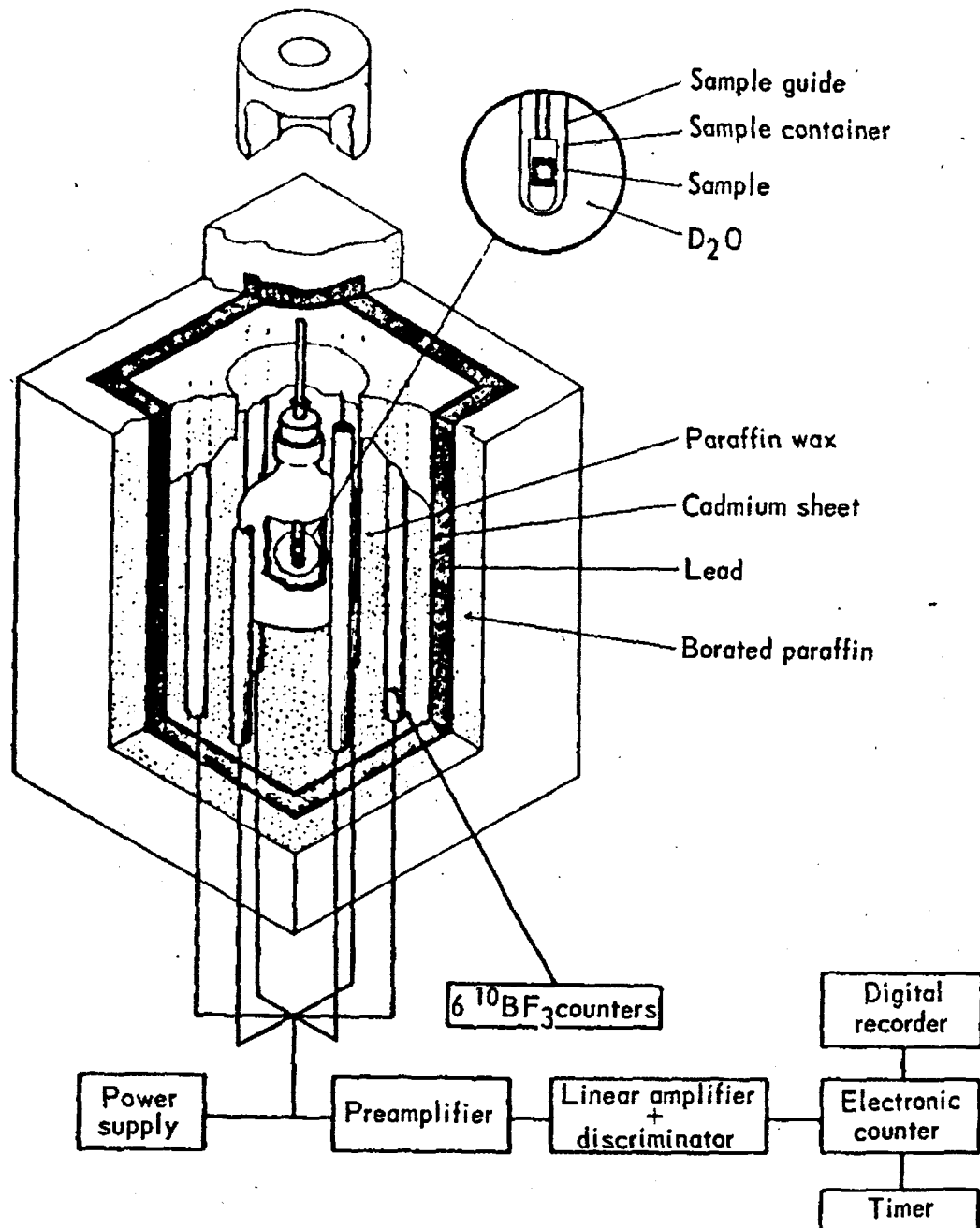


Figure 5. Photoneutron measurement assembly and block diagram of electronic circuit

destructive analysis is essential, for a detector insensitive to gamma radiation below the γ -ray energy in question. The photo-disintegration of beryllium or deuterium and the emission of photoneutrons take place with gamma rays of energies greater than 1.67 and 2.23 MeV respectively. This suggests that a detecting system based on counting the emission of photoneutrons from beryllium or deuterium would be naturally biased and would be entirely insensitive to energy quanta below the photoneutron threshold. An additional advantage of such a system would be that the emitted neutrons can thus be detected against any beta or gamma background.

The number of radionuclides which emit gamma rays of energy greater than 1.67 or 2.23 MeV is relatively small and their number can be still further reduced when a specific half-life range is selected. Thus a great degree of selectivity is indicated, forming the basis for the assay of nuclides emitting high energy gamma rays and for their determination by neutron or charged particle radioactivation. The emission of photoneutrons from deuterium was used for the analysis of deuterium in water samples [9] by comparing their neutron activities with those of standards placed as targets around an intense source of sodium-24. Photoneutron emission from beryllium was used

analogously for its assay. The present method of analysis is the same in principle, but has the roles of source and target interchanged, that is, whereas for beryllium or deuterium analysis the source is constant and the target unknown, here the source is unknown and the target constant.

It is clear that the form of the sample for such a mode of analysis is important; it should not contain large quantities of neutron absorbers, or material which could lead directly to neutron emission.

Samples containing large amounts of neutron absorbers lead to low values. This is indicated when the photoneutron emission is not proportional to the sample weight. The true result can be obtained by adding a known amount of the element in question to the sample as an internal standard ("spike"). To obtain the maximum output of photoneutrons from a source it is necessary to surround the source with a sufficiently thick layer of beryllium or deuterium, as the case may be. An efficient way to detect the photoneutrons is to count them after they have been thermalized by a moderator. Ideally, the thermal neutron counters should be placed in a 4π -arrangement around the photoneutron source and immersed in a bath of heavy water, or embedded in a beryllium block. $^{10}\text{B F}_3$ proportional neutron counters are efficient neutron detectors of very low sensitivity to gamma radiation. The irradiated sample is dropped into the counting assembly (Fig. 5) so as to lie at the centre of a flask containing 1 litre of heavy water (>99% D_2O). Neutrons generated from this container are counted using a ring of six $^{10}\text{B F}_3$ proportional neutron counters connected in parallel to a scaler and supplied from a common high-voltage source. The entire assembly is embedded in a block of paraffin and external neutrons and external gamma sources are shielded against by a wall of lead and borated paraffin bricks. The operating background is ~ 10 cpm. Pulses from the counters are fed to a recording scaler, the counting period of which is controlled by an electric timer. Another check on spurious counts due to intense gamma radiation is obtained by replacing the heavy water container by an identical one filled with natural water, and a measurement is again taken. The difference between the count rate obtained with heavy water and that with natural water gives the photoneutron count rate of the source. The ratio of the counts obtained with the two measurements agrees well with the ratio of their deuterium contents (1.5×10^{-4}).

Possible interference from sample constituents which lead to neutron emission was determined in the same way. Thus, in samples in which (α , n) reactions or fission could occur, leading to neutron counts not arising from deuterium, the interferences were detected and counted with natural water around the sample. Photoneutron emission from beryllium-containing

samples when heavy water was the photoneutron radiator was checked similarly. When beryllium was used as a radiator, interference was checked by the removal or replacement of the beryllium from the assembly.

Analysis of sodium [10]

Radioactivation analysis of sodium is based on the formation of sodium-24 by neutron capture. This isotope has a half-life of 15.0 hours and decays through a cascade of gamma rays of 2.75 and 1.36 MeV.

The photoneutron counting apparatus, given in Fig. 5, was calibrated and the precision of the method determined using samples of known sodium content, which were irradiated in various fluxes for varying times and the photoneutron emission rates determined. No deviation from the 15.0 h half-life was observed during an activity decay of several orders of magnitude.

Absolute calibration of the apparatus was carried out by observing the count rate of photoneutron emission from standardised sodium-24 sources. In the experimental apparatus described above, sodium-24 gave one photoneutron count for every 2.45×10^4 disintegrations; by using a larger D_2O container the ratio will decrease proportionally.

The photoneutron count rate obtained from sodium upon irradiation for 1 hour at a flux of 10^{13} n/cm² s was 15.6 ± 0.29 counts per minute per microgram sodium. The method permits for instance, the analysis of a sample containing 0.3 μg of sodium with a precision of 10%, when irradiated at a flux of 10^{13} n/cm² s for 1 hour. Higher sensitivities and better precision are possible with higher flux or longer irradiation.

A serious interference might arise from 14.1-hour ^{72}Ga , which, at present, cannot be distinguished from 15-hour ^{24}Na due to similar relevant properties (photoneutron emission and half-life).

Analysis of manganese [11]

Gamma rays of the high energy part of the spectrum of 2.58-hour ^{56}Mn are effective in producing photoneutrons both from beryllium and deuterium, in the same manner as ^{24}Na . This property was used for the non-destructive activation-analysis of manganese and assay of ^{56}Mn by counting photoneutrons from heavy water. Although only one photoneutron for every 1.37 million disintegrations of ^{56}Mn was observed under the experimental conditions (Fig. 5), the detectability of manganese was 10 μg for 1 minute irradiation at a flux of 10^{13} n/cm² s. The photoneutron activity observed is ~ 300 cpm per mg manganese and the precision of the method is $\sim 1\%$.

Analysis of sulphur and calcium [12]

Both sulphur and calcium are very difficult to analyse by radioactivation using gamma-ray spectroscopy

since their major respective products upon neutron irradiation are rather long lived and pure beta emitters. Therefore chemical processing and beta ray counting are used. 5.1-min ^{37}S produced from neutron capture in ^{36}S and 8.8-min. ^{49}Ca produced from ^{48}Ca are high energy gamma-ray emitters, but due to the very low abundance of their parent nuclides (0.014% of ^{36}S and 0.18% of ^{48}Ca , their assay by gamma-ray spectrometry, even with a multichannel analyzer, is normally very difficult due to summation peaks and other interference which prevent their resolution in a highly active sample. Their short half-life makes chemical processing inconvenient. These difficulties are avoided by counting photoneutrons from D_2O in a mode similar to that of Na and Mn.

One neutron count was observed for $\sim 1.1 \times 10^4$ disintegrations of ^{37}S or for $\sim 1.7 \times 10^4$ disintegrations of ^{49}Ca . The specific activity measured experimentally was ~ 15.0 cpm for $1 \mu\text{g}$ of sulphur irradiated for 10 minutes in a flux of 10^{13} n/cm 2 s and the corresponding value for calcium was ~ 600 counts. Both values were proportional over a wide range. The precision of the method for the analysis of both sulphur and calcium was 2-3%.

Analysis of aluminium [13]

2.3 min ^{28}Al is the only isotope of aluminium produced upon neutron capture. Due to its short half-life it is extremely difficult to separate it chemically when it is present in a complex sample, for subsequent activation analysis. When present at trace levels, its 1.78 MeV gamma ray is frequently masked by the tail or sum peaks of the lower but very intense gamma rays of accompanying activities. Gamma rays of 1.78 MeV are sufficient to cause photoneutron emission from beryllium. This property was used for the analysis of Al in different alloys, where, upon activation, the formation of activities of gamma rays of $E > 1.67$ MeV is rare. This was verified by experiments which demonstrated the specificity of photoneutron counting for the analysis of Al. The photoneutron activity observed was 430 counts per second per mg of Al irradiated for 1 minute at a flux of 10^{13} n/cm 2 s. This value was proportional to the Al content. The precision of the method was found to be $\sim 2\%$, and one neutron count was observed for each 3.12×10^4 disintegrations of ^{28}Al .

Other applications

The assay of ^{38}Cl for the analysis of chlorine, ^{140}La for lanthanum, ^{72}Ga for gallium, ^{151}Ne for neodymium and several other cases are similarly being studied. Special attention is paid to fission, which might be present as an interference.

NEUTRON EMISSION FROM (α , n) REACTIONS

Only the light elements interact with alpha particles from radioactive sources to emit neutrons. By selecting a sample matrix and a suitable alpha particle source, assay can be made of certain light elements present in the sample, for example, the determination of beryllium in ores by a polonium source. Another possibility is the determination of the intensity of a certain alpha emitter present in contact with a given light element.

Of great importance is the interaction of alpha particles with the heavy isotopes of oxygen. A very high yield of neutrons was obtained upon interaction of alpha particles with oxygen-18 [14, 15]. This property was utilized for the construction of a new type of neutron source [16].

Analysis of oxygen-18 [14]

The determination of the concentration of the isotope oxygen-18 is very important in studying processes and reactions involving oxygen and tracing its path in different chemical and biological systems. The nuclear reaction $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$ was used for the ^{18}O analysis of various ^{18}O -labelled substances by bombarding the samples (in the form of gases, solids or liquids) in an alpha particle flux and counting the neutron emission. The method is made feasible by the substantial yield of neutrons from a thick ^{18}O target, 30 neutrons per 10^6 alpha particles of ^{228}Th and active deposit of thoron [15].

An experimental assembly adapted for scanning paper chromatograms is given in Fig. 6. An efficiency of $\sim 3\%$ was obtained using four BF_3 neutron detectors. Sensitivities of about a few micrograms oxygen-18 per cm 2 , were obtained when fluxes of $\sim 10^7$ alpha particles per second (from an active deposit of thoron, $T_{1/2} = 10.6$ h) strike the paper chromatogram. The limiting factor was the structural oxygen background of the paper. A typical scan of a paper chromatogram containing three nearly identical bands of an ^{18}O -containing material is given in Fig. 7.

REFERENCES

1. Amiel, S., *Anal. Chem.*, **34**, 1683 (1962).
2. Keepin, G. R., Wimett, T. F., and Ziegler, R. K., *Phys. Rev.*, **107**, 1044 (1957).
3. Amiel, S., and Peisach, M., *Israel Journal of Chemistry*, **1** (3a) (1963).
4. Amiel, S., *Israel AEC, Report No. IA 621* (1961).
5. Amiel, S., and Gilat, J., *Nucl. Sci. and Eng.*, **18**, 105 (1964).
6. Amiel, S., and Welwart, Y., *Anal. Chem.*, **35**, 566 (1963).
7. Amiel, S., and Peisach, M., *Anal. Chem.*, **35**, 323 (1963).
8. Gilat, J., and Gurfinkel, Y., *Nucleonics*, **21**, 143 (1963).

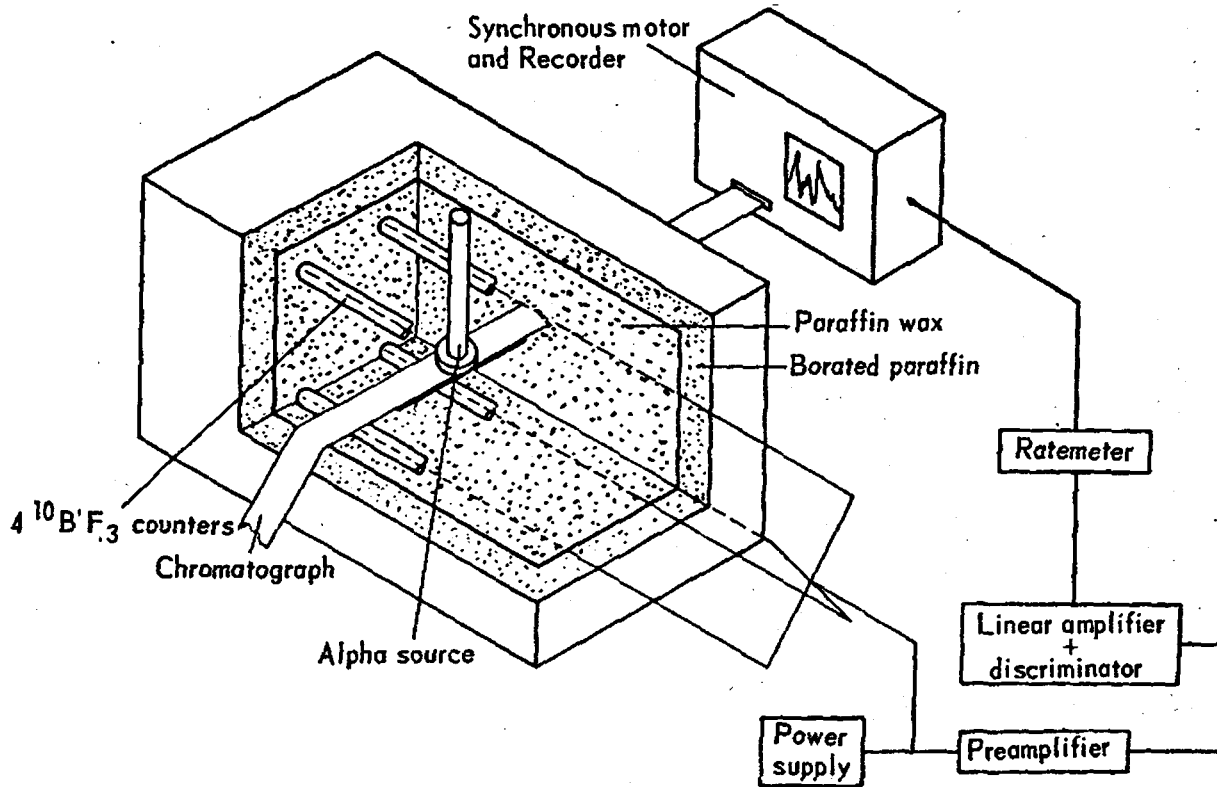


Figure 6. Oxygen-18 paper chromatogram analyzer consisting of an alpha source and 4 neutron detectors embedded in a paraffin block

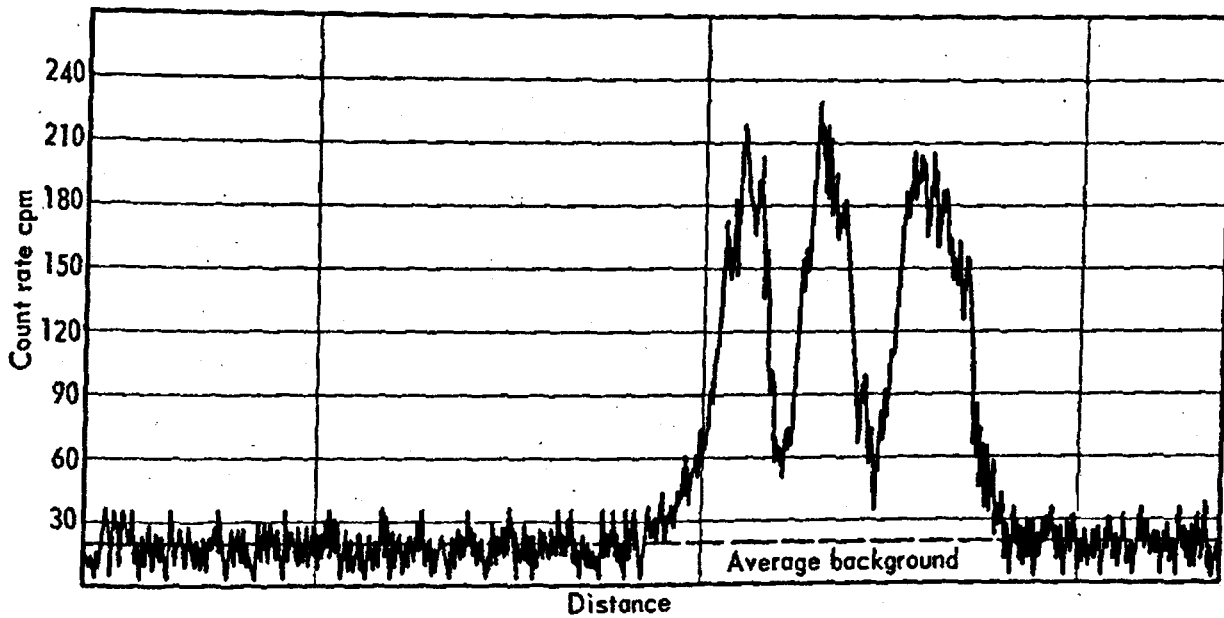


Figure 7. Neutron emission scan of a paper chromatogram containing three nearly identical bands of ^{18}O -containing material

9. Haigh, C. P. in *Second Radioisotope Conference (Oxford, 1954) II*, Butterworth, London (1954).
10. Amiel, S., and Peisach, M., *Anal. Chem.*, **35**, 1072 (1963).
11. Amiel, S., and Stuhl, Z., Israel AEC, Report No. IA 932 (1964).
12. Amiel, S., and Joliano, J. O., Israel AEC, Report No. IA 933 (1964).
13. Amiel, S., and Welwart, Y., Israel AEC, Report No. IA 934 (1964).
14. Amiel, S., and Nir, A., unpublished report (1960).
15. Gurfinkel, Y., M. Sc. Thesis, Hebrew University, Jerusalem (1963).
16. Amiel, S., Nir, A., and Notea, A., unpublished results (1963).
17. Amiel, S., and Nir, A., Israel Patent No. 15594 (1962).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/825 Israël

Le comptage de neutrons dans l'analyse par activation

par S. Amiel

Le mémoire traite des travaux récents et en cours consacrés à la mise au point et à l'utilisation du comptage des neutrons dans l'analyse par activation. Quoique n'étant pas d'un usage courant, l'utilisation des neutrons pour l'analyse est très avantageuse du fait que les neutrons peuvent être détectés sélectivement et efficacement sans qu'on soit gêné par le champ bêta et gamma ambiant. De plus, l'émission de neutrons est un phénomène relativement rare dans la décroissance nucléaire et peut être utilisée — conjointement avec d'autres propriétés — pour l'identification et le dosage de nucléides et éléments particuliers. Il en est de même pour l'émission de neutrons lors des réactions nucléaires obtenues avec des sources radioactives, où l'émission est souvent caractéristique de la source et des nucléides bombardés.

Les caractères particuliers de l'émission et du comptage de neutrons rendent possible l'analyse d'un échantillon sans traitement chimique avant ou après l'irradiation; de même, ils facilitent les méthodes instrumentales rapides et non destructives de grande précision, et ce avec un appareillage relativement simple.

Ces méthodes de comptage de neutrons sont les suivantes: analyse des nucléides fissiles (par exemple, ^{235}U , ^{238}U , ^{233}U , ^{232}Th , ^{239}Pu et rapports isotopiques de l'uranium) par comptage des neutrons retardés émis par des produits de fission à vie courte; l'analyse de ^6Li et du lithium, ^{15}N , ^{17}O , ^{18}O et de l'oxygène par comptage des neutrons retardés de ^{17}N (4 s); détermination de plusieurs nucléides émettant des rayons gamma de grande énergie (par exemple, ^{24}Na , ^{56}Mn , ^{140}La et ^{28}Al) dans des échantillons à haute radioactivité où la discrimination électronique est inefficace, par comptage des photoneutrons produits dans D_2O et le béryllium; et analyse de ^{18}O dans diverses phases, par comptage des neutrons de la réaction $^{180}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$.

Les différentes méthodes ainsi que leurs applications sont exposées en détail. On discute la possibilité de

l'extension et de la mise au point de nouvelles méthodes fondées sur les mêmes principes.

A/825 Израиль

Подсчет нейтронов в активационном анализе

С. Амьел

В докладе рассматриваются работы, проведенные недавно и проводимые в настоящее время в этой лаборатории, по разработке и использованию счета нейтронов в активационном анализе. Использование нейтронов для анализа, хотя и не нашло пока всеобщего применения, имеет большие преимущества, поскольку нейтроны можно детектировать селективно и эффективно без помех со стороны фонового β - и γ -излучения. Кроме того, эмиссия нейтронов — сравнительно редкое явление в ядерном распаде, поэтому совместно с другими свойствами может быть использовано для идентификации и оценки определенных изотопов и элементов. Это же справедливо для эмиссии нейтронов в ядерных реакциях с радиоактивными источниками, где эмиссия часто является характерной для изотопов данного источника и мишени.

Характерные особенности эмиссии и счета нейтронов позволяют провести анализ образца без химической обработки до и после облучения и облегчить быстрые измерения при помощи приборов без разрушения образца при высокой точности и наличии сравнительно простой аппаратуры.

Эти методы счета нейтронов состоят в анализе делящихся изотопов (например, U^{235} , U^{238} , U^{233} , Th^{232} , Pu^{239} и изотопных отношений урана) путем подсчета запаздывающих нейтронов, испускаемых короткоживущими продуктами деления; в анализе Li^6 и лития, N^{15} , O^{17} , O^{18} и кислорода путем подсчета запаздывающих нейтронов из N^{17} с периодом полураспада 4 сек; в определении нескольких изотопов, испускающих γ -излучение высокой энергии (например, Na^{24} , Mn^{56} , La^{140} и Al^{28}) в сильно активных образцах, для которых электронная дискримина-

ция неэффективна, путем подсчета фотонейтронов, образующихся в тяжелой воде и бериллии, а также в анализе O^{18} в различных фазах путем подсчета нейтронов, образующихся в реакции $O^{18}(\alpha, n)Ne^{21}$.

Детально описаны различные методы и их применение. Обсуждаются возможности дальнейшего расширения и развития новых методов, основанных на тех же принципах.

A/825 Israel

El recuento de neutrones en el análisis por activación

por S. Amiel

Esta memoria da cuenta de los trabajos recientes y en marcha de nuestro laboratorio sobre el desarrollo y empleo de recuento de neutrones en el análisis por activación. Aun cuando no sea de uso corriente, el empleo de neutrones para el análisis resulta ser muy ventajoso puesto que los neutrones pueden detectarse selectivamente y eficientemente sin la perturbación del fondo de radiación β y γ . Además, la emisión de neutrones es un fenómeno relativamente raro en la desintegración nuclear y puede utilizarse con otras propiedades para la identificación y análisis de núclidos y elementos específicos. Esto también es

válido para la emisión de neutrones de reacciones nucleares con fuentes radiactivas en donde frecuentemente la emisión es característica de la fuente y del blanco.

Las características específicas de la emisión y recuento de neutrones permite analizar una muestra sin tratamiento químico antes de la irradiación o después de ella y emplear métodos instrumentales rápidos y no destructivos de gran precisión usando aparatos relativamente sencillos.

Estos métodos de recuento de neutrones consisten en el análisis de núclidos fisibles (p.ej. ^{235}U , ^{238}U , ^{233}U , ^{232}Th , ^{239}Pu y relaciones isotópicas del uranio) mediante el recuento de neutrones retardados procedentes de productos de fisión de vida corta; análisis del 6Li y del litio, ^{15}N , ^{17}O , ^{18}O y oxígeno mediante el recuento de neutrones retardados del ^{17}N de 4 s; análisis de varios núclidos emisores de radiación gamma de alta energía (p. ej. ^{24}Na , ^{56}Mn , ^{140}La y ^{28}Al) en muestras de actividad elevada, en donde no es eficaz la discriminación electrónica, mediante recuento de fotoneutrones producidos en D_2O y berilio; y análisis del ^{18}O en varias fases mediante el recuento de neutrones de la reacción $^{18}O(\alpha, n)^{21}Ne$.

Se exponen con detalle los métodos diferentes y sus aplicaciones. Se comentan otras posibilidades para la ampliación y desarrollo de nuevos métodos basados en los mismos principios.

Choice of most suitable radiation characteristics for any given gauging problem

By P. Platzek and A. C. Meyer *

In gauging problems the task mainly consists of monitoring mass variations of a given object, rather than of determining its average mass (thickness, density) as such. It may be necessary to detect thickness variations of a moving foil or sheet; to determine density changes in a flowing liquid or ups and downs in the amount of transported powder-like substances. Finally, level variations can equally be interpreted in terms of varying mass across a line of observation.

In general, these mass difference measurements start from the following data:

d : average thickness of object [cm];

ρ : average density of object [g cm^{-3}];

ρd : object mass per cm^2 of surface = surface density [g cm^{-2}];

$\Delta \rho \sqrt{d}$: minimum mass variation to be detected or measured. It results from a thickness variation Δd , a density variation $\Delta \rho$ or from a combination of both Δd and $\Delta \rho$;

t : time interval available to collect significant signal information [s].

The radiometric solution of such a problem involves the choice of:

μ/ρ : a suitable radioisotope characterized by its mass-attenuation coefficient [$\text{g}^{-1} \text{cm}^2$] as defined

by the attenuation law $N_x = N_0 \exp\left(\frac{-\mu}{\rho} \rho d\right)$

(symbols N cf. below);

a source of sufficient activity to warrant significant signal variation;

the kind of detector;

source-detector geometry.

The last three data together with t determine the magnitude of the basic signal. The object reduces the basic signal to the standard average signal and the measurement of mass differences finally involves the registration of signal variations and/or sometimes

triggering of servo-mechanisms as soon as a pre-determined change of the standard value occurs. In any case, significant signal changes have to be distinguished against a background of inevitable statistical fluctuations limiting the effect of signal amplification or compensation. To facilitate the calculation of signal difference over noise ratios, signals are preferentially defined as:

N : total count or count-rate \times time,

since \sqrt{N} represents the standard deviation of the statistical noise. Also, the important parameter of measuring time is taken into account by this procedure.

Derived symbols to be applied in the course of this paper read as follows:

$$x = \rho d \quad [\text{g cm}^{-2}]$$

Δx : mass variation to be detected

$$m = \mu/\rho \quad [\text{g}^{-1} \text{cm}^2]$$

N_0 : detector signal without presence of object

N_x : *idem* after passage through standard object

ΔN : signal variation caused by $\Delta x = N_x - N_{x+\Delta x} = N_x - N_{x-\Delta x} - N_x$

The following sections will try to show that:

(a) the average object mass x alone determines the choice of the most suitable radiation characterized by m_{opt} ;

(b) at given x and m , a postulated Δx determines the requirement of a minimum signal N_x (or N_0) to be effected by choosing a sufficient source-strength depending on source-detector geometry and detector efficiency; experimental evidence will be given;

(c) a diagram can show the interdependence of all variables and serve to read the signals required in cases of optimum as well as of non-optimum conditions;

(d) these considerations hold for both gamma and beta emitters whenever representative attenuation coefficients can be taken into account.

* Central Laboratory T.N.O., Delft.

The results of this investigation are considered to be of practical interest, since they facilitate a quick orientation evaluation of gauging problems. This is why EURATOM's Bureau Eurisotop had readily sponsored this experimental work to back up and to refine the existing presentation.

OPTIMUM RADIATION CONDITIONS

The absorbing mass-ranges in which different gamma and beta energies can favourably be applied are empirically well-established and listed in literature [1-5]. They can easily be predicted on the ground of the exponential attenuation law and of attenuation coefficient data. These ranges are relatively broad, but there is a true optimum absorbing mass for each attenuation-coefficient, the position of the optimum depending on the postulated optimizing conditions.

There are authors [6, 7] claiming $m_{opt} = \frac{1}{x}$ as result of their optimizing procedure which starts from the assumption that $\frac{\Delta N}{N_0} / \frac{\Delta x}{x}$ should be maximum. Other papers [8-11] are aware of the necessity to maximize $\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} / \frac{\Delta x}{x}$, since the significance of a reading and hence the accuracy of its result primarily depends on the ratio $\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}}$. For small mass-differences $\frac{\Delta x}{x}$

up to about 0.1, this condition leads to the result

$$x \cdot m_{opt} = 2^* \quad (1)$$

Since mass attenuation-coefficients m for gammas and betas are spread over four orders of magnitude, it might be argued that both optimum values are more or less equivalent. For exact sensitivity considerations, however, the latter derivation deserves preference, as will be shown in due course. Theory predicts a maximum signal difference over noise ratio

for any case where radiation of $m = \frac{2}{x}$ is available.

Since the maximum is rather flat, $\frac{1.2}{x} < m < \frac{3}{x}$ is recommended by the present authors.

Table 1 lists mass attenuation-coefficients of some practical kinds of radiation together with the corresponding mass-ranges.

CHOICE OF A SIGNAL OF SUFFICIENT MAGNITUDE

In practically all gauging problems a standard signal can be correlated to the standard mass to be monitored for the occurrence of variations. The meaning of the *variation* should be carefully defined, before discussing its influence on signal requirements.

* See Appendix to this paper.

Table 1. Typical mass attenuation-coefficients and corresponding approximate object mass-ranges

Isotope and principal (casu quo maximum) energies (MeV)	Mass attenuation-coefficient m ($g^{-1} cm^2$)	Mass-ranges ($g cm^{-2}$)	References
^{107}Pm β : 0.22	160 - 110 250 - 175 (Al)	0.001 - 0.02 0.006 - 0.018	[1, 2, 4] This paper (Fig. 4, § 2)
^{85}Kr β : 0.69	28 (Al) 25 (Al)	0.002 - 0.10 0.45 - 0.12	[1] This paper (Fig. 4, § 2)
^{204}Tl β : 0.77	25	0.005 - 0.17	[1-4, 6]
^{90}Sr - ^{90}Y β : 0.61; 2.2	5 5 (Al)	0.02 - 0.7 0.2 - 0.6	[1-4, 6] This paper (Fig. 4, § 2)
^{170}Tm β : 0.97; 0.88 γ : 0.084; $x = 0.052$	0.19 - 0.29 (Al) 0.20 - 0.40 (Fe)	0.5 - 10	[1]
^{192}Ir β : 0.67 γ : 0.31; 0.47; 0.60	0.092 (Al) 0.091 (Fe) 0.175 (Pb)	8 - 30	[1, 2]
^{137}Cs β : 0.52; 1.18 γ : 0.66	0.066 (Al) 0.064 (Fe) 0.088 (Pb)	10 - 70	[1, 2, 5]
^{60}Co β : 0.31 γ : 1.17; 1.35	0.050 (Al) 0.046 (Fe) 0.051 (Pb)	20 - 100	[1, 2, 5]

Let us consider the case of a moving sheet, where 1% of variation is acceptable. It is then necessary to state the surplus of variation which must at any rate be indicated or rejected. This could be $\geq 0.5\%$, in which case $\frac{\Delta x}{x} \geq 0.005$. The standard signal would be a band between $N_{0.99x}$ and $N_{1.01x}$ diffusely widened at both limits by about $2.5 \sqrt{N_x} \Delta N$ corresponding to $\frac{\Delta x}{x} = 0.005$ must be significantly distinguished against this unsharpness notwithstanding its own uncertainty of $\pm 2.5 \sqrt{N_{x+\Delta x}} \cong \pm 2.5 \sqrt{N_x}$. For small values of $\frac{\Delta x}{x}$ the following conditions must in general be fulfilled:

$$\left. \begin{aligned} N_{x+\Delta x} + 2.5\sigma &< N_x - 2.5\sigma \\ N_{x-\Delta x} - 2.5\sigma &> N_x + 2.5\sigma \end{aligned} \right\} \Delta N > 5\sigma \quad (2)$$

The consequence of such a condition is that in the example chosen all signals exceeding $N_{0.99x} + 2.5 \sqrt{N_x}$ or less than $N_{1.01x} - 2.5 \sqrt{N_x}$ will be outside the alarm thresholds. Then 1% variation is not observed in 98% (corresponding to 2.5σ) of its occurrence, 1.5% variation or more is indicated in all cases but 2% of the 1.5% limit (again corresponding to 2.5σ) and variations in the range 1.0–1.5% are sometimes indicated.

This example illustrates the necessity of being fully aware of the accuracy wanted. A statement like "measuring $\pm 1\%$ deviation" would actually postulate the significant monitoring of all 1% deviations or more, whilst smaller deviations as well would often give rise to an alarm signal increase or decrease.

When applying the preceding considerations to thickness and density gauging, little difficulty is encountered in attributing standard signals to the band of allowed mass-values, nor in defining the size of the minimum mass-variation to be found*. In level-gauging as well, the situation can be very easy in cases of "black or white" measurements, where tens to hundreds per cent of mass-difference can occur. In cases, however, where the position of a level must be ascertained with an accuracy corresponding to part of the detector cross section, an exact analysis of x as a function of level position is essential to correlate value of $\frac{\Delta x}{x}$ with small shifts in level.

As soon as a justified value of the relative mass difference of interest, $\frac{\Delta x}{x}$, has been defined, it is pos-

* Environmental influences can, of course, broaden secondarily the standard band and thus, together with the limitations of all measuring equipment, set a limit to extreme accuracy requirements.

sible to predict the minimum signal required for significant detection of Δx , in correlation to any kind of radiation chosen. The minimum signal can be calculated in terms of N_x or of N_0 . Both values are, of course, connected by the attenuation law, but both have their merits in determining the required source strength in dependence of the measuring time ($= 2 RC$ in the case of count-rate or chamber-current measurements). N_x will point to the kind of detector able to follow the necessary signal rate, whereas N_0 together with the detector data and general geometry will allow for calculation of the source-strength required.

A simple derivation shown in the Appendix leads to the formulæ

$$\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} = \sqrt{N_0} \exp \frac{-mx}{2} (1 - \exp \left(-mx \cdot \frac{\Delta x}{x} \right)) \quad (3a)$$

$$= \sqrt{N_x} (1 - \exp \left(-mx \cdot \frac{\Delta x}{x} \right)) \quad (3b)$$

displaying the interdependence of five variables:

$$\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} : \text{signal difference/noise ratio}$$

$$\frac{\Delta x}{x} : \text{relative mass difference to be found}$$

$$\left. \begin{aligned} m \\ x \end{aligned} \right\} : \text{occurring as the product } mx$$

$$N : \text{either } N_0 \text{ or } N_x$$

In a previous publication [10], a nomogram has been presented on the basis of Eq. 3a to facilitate the calculation of one variable as a function of four data, mostly N_0 as a function of m , x , $\frac{\Delta x}{x}$ and a value of

$$\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} \text{ adapted to the required accuracy } \left(\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} = 3 \text{ to } 6 \right).$$

It is now preferred to define $\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} = 5$ following the considerations above and to modify Equations 3 accordingly:

$$N_0 = 25 e^{mx} \left(1 - \left(\exp - mx \frac{\Delta x}{x} \right)^{-2} \right) = \frac{25 e^{mx}}{m^2 x^2 \left(\frac{\Delta x}{x} \right)^2} \quad (4a)$$

for small $\frac{\Delta x}{x}$

$$N_x = 25 \left(1 - \left(\exp - mx \frac{\Delta x}{x} \right)^{-2} \right) = \frac{25}{m^2 x^2 \left(\frac{\Delta x}{x} \right)^2} \quad (4b)$$

for small $\frac{\Delta x}{x}$

Since in Eq. 4 both N_0 and N_x are functions of mx and $\frac{\Delta x}{x}$, it is possible to display both signals as para-

meters in a diagram mx versus $\frac{\Delta x}{x}$, as has been done

logarithmically in Fig. 1. A simple monogram to compute mx from its constituting factors has been added. Thus the former general nomogram has now been replaced by a simpler graph based on the

postulate $\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} \cong 5$.

DISCUSSION OF MINIMUM SIGNAL DIAGRAM (Fig. 1)

If one could always work with the optimum kind of photons or particles defined according to Eq. 1, Eq. 4 would further reduce to show the two signals as an explicit function of $\frac{\Delta x}{x}$. These minimum values

of N_0 appear in Fig. 1 at $mx = 2$. Larger basic signals are obviously needed both at higher and at lower values of m , if x is fixed.

The fact that N_0 does not change very much in the neighbourhood of $mx = 2$, is stressed by shading a region on the mx axis which can be interpreted as equivalent for the evaluation of m - x combinations by means of the left-hand nomogram.

Well-known facts with respect to detector choice are obvious from Fig. 1.

GM tubes, even in a multiple arrangement, cannot produce more than about $N_x = 3.10^3$ cps, which means that their application is restricted to 4% of mass-variation or more at optimum conditions ($N_0 = 3.10^4$), unless much more than 1 s measuring time is available. In level-detection, where mostly large mass variations are involved, GM tubes are preferred.

In order to detect small mass variations of 0.5–1%, $N_x = 5.10^4 - 3.10^5$ is required at optimum conditions. At measuring times (or RC constants) of the order of seconds, only scintillation detectors or ionization chambers can do the job.

A few words have still to be said about the concept of optimum conditions. It is characterized by the fact that a significant signal difference over noise ratio is effected at as low a basic signal N_0 as possible. In theory it does not seem attractive to achieve the same sensitivity at the cost of more millicuries than strictly necessary. In practice, the ideal radioisotope is not available in all cases and analysis using Fig. 1 can reveal interesting possibilities. Suppose an attenuation coefficient $m = 3 m_{opt}$ can be chosen to make

$mx = 6$, well outside the optimum range. This would bring N_x down by a factor of 10, which could be advantageous. To maintain optimum sensitivity, however, N_0 must be raised about 5 times. In view of the easier shielding of weaker radiation, these cases should be evaluated with care, since higher radioisotope cost can be more than compensated by specific activity advantages. Figure 1 enables one to weigh all these factors against each other and to deviate from optimum conditions only as far as safety and cost would justify.

The calculation of the number of millicuries to achieve the required basic signal N_0 must be based on data such as detector cross section (or window surface), detector efficiency and general geometry. A formula for such calculations can be given [10, 11], but is omitted here as trivial.

It remains to give experimental evidence to the sensitivity considerations given earlier and further to show to what extent valid attenuation coefficients can be ascribed to beta radiation as has been done in Fig. 1.

EXPERIMENTS SHOWING THE IMPORTANCE OF SUFFICIENT N_0

A ^{137}Cs source of 25 mc placed in a lead container with a small opening was positioned opposite a GM-tube to give a count-rate of 1000 cps. Dead-time corrections have been duly applied. By scaler-counting for 100 s and 1000 s, N_0 values of 10^5 and 10^6 were obtained. Suitable brass absorbers served to obtain absorption curves which are shown in semilogarithmic plot in Fig. 2. The upper full lines represent the attenuation of $N_0 = 10^5$ in Fig. 2a and of $N_0 = 10^6$ in Fig. 2b. At certain x values, extra brass-absorbers of

mass $\frac{2}{3}\%$ of those x values ($\frac{\Delta x}{x} = 0.0067$) were added

and the corresponding signals were counted 10 times. The points in Fig. 2a and 3b represent the average signal differences ΔN as found by subtracting $N_{x+\Delta x}$ from $N_x = N_0 e^{-mx}$ where $m = 0.064$. The size of observed deviations is indicated.

Keeping in mind that the lower full lines in Figs. 2 represent the standard deviation $\sigma = \sqrt{N_x}$ as a function of x , while the dotted lines correspond to $2.5 \sqrt{N_x}$ accordingly, two noteworthy facts can be stated:

(a) Figure 2a shows ΔN values to be generally lower than 2.5σ , which means that $N_0 = 10^5$ can never lead to the significant detection of $\frac{\Delta x}{x} = 0.0067$. In

Fig. 2b, however, ΔN uncertainty ranges just exceed 2.5σ at $x = 26$ and 35 g cm^{-2} . For these latter objects

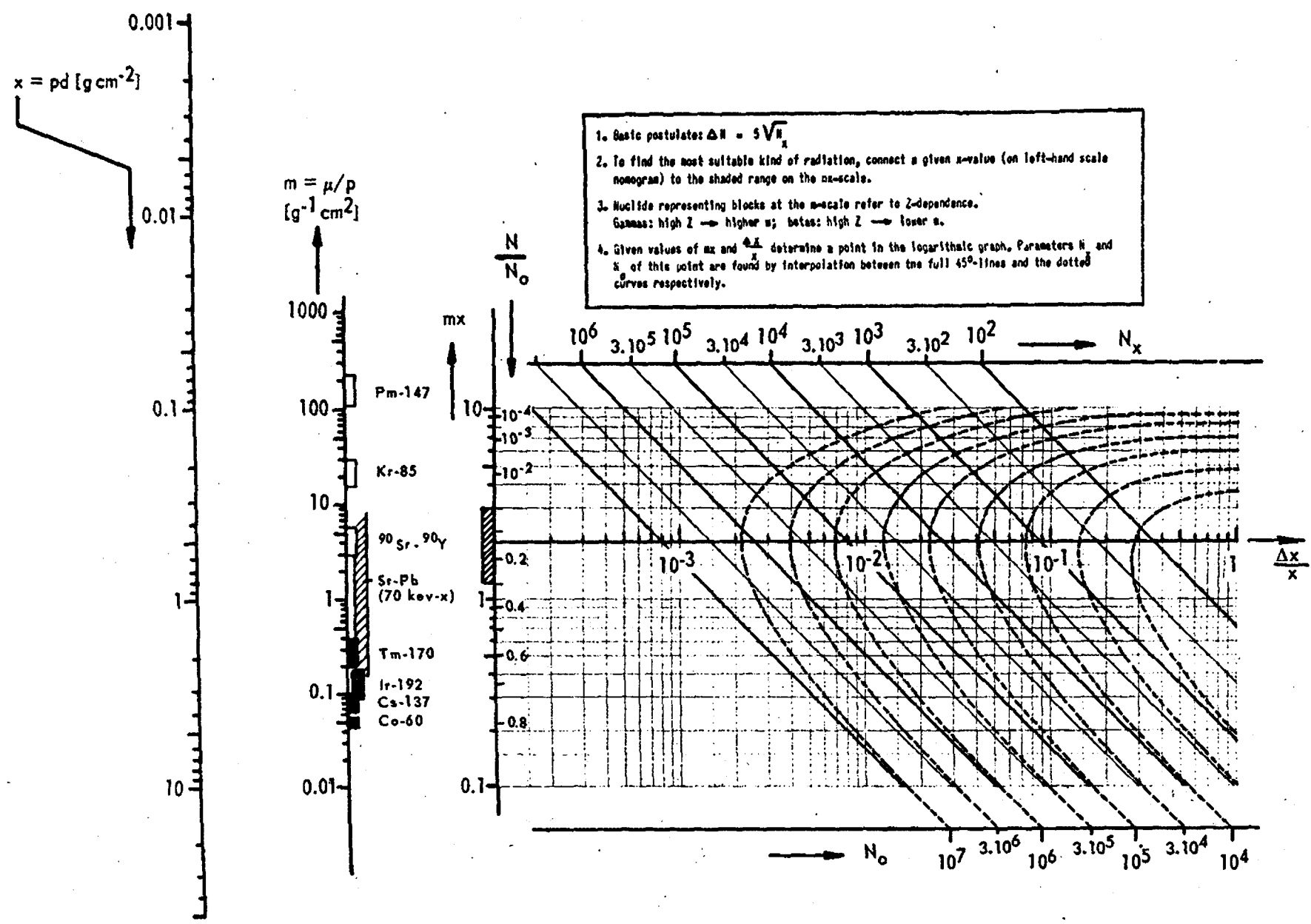


Figure 1. Main graph for the evaluation of optimum as well as non-optimum conditions in gauging problems

^{137}Cs signals, i. e., $N_0 = 10^6$, are just sufficient to detect $\frac{\Delta x}{x} = 0.0067$. Both facts can be read from Fig. 1 as well, which is obvious, since the attenuation of ^{137}Cs gammas follows the exponential law.

(b) The meaning of the proposed optimization procedure can be illustrated by drawing the function

$$\Delta N = N_0 \frac{\Delta x}{x} m x e^{-mx} \quad (5)$$

which is valid for small values of $\frac{\Delta x}{x}$ as shown in the Appendix to this paper, sub 2. The maximum of this function is found at $x = \frac{1}{m} = 16 \text{ g cm}^{-2}$ in the examples of Fig. 2.

It is obvious, however, that significant Δx determinations are found in Fig. 2b at $x \approx 30 \text{ g cm}^{-2}$. This x value corresponds to $x_{\text{opt}} = \frac{2}{m}$, the position of the maximum in the function

$$\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} = \sqrt{N_0} \frac{\Delta x}{x} m x e^{-\frac{mx}{2}} \quad (6)$$

Function (6) is represented in Figs. 2 by the difference between the curves and the lower full lines, which has been shaded in Fig. 2a. This difference of logarithms corresponding to $\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}}$ has its maximum at

$x_{\text{opt}} = \frac{2}{m}$. Experimental points in Fig. 2 tend to become significant just around this latter maximum and not at $x = \frac{1}{m}$, which is in concordance with the prediction of Fig. 1.

While Figs. 2 hold for scaler counting, Figs. 3 demonstrate similar results obtained by ratemeter and ionization chamber measurements.

Two series of ratemeter measurements have been carried out in analogy to the scaler experiments just mentioned. Larger relative mass-differences of 9.5% were applied, however, in view of the limited accuracy of the available ratemeter. In order to avoid the complication of long time-constants, a scintillation detector was applied giving rise to a basic signal rate of $N'_0 = 13000 \text{ s}^{-1}$. Time constants of 0.1 s and 1 s were chosen, leading to basic signals $N_0 = 2600$ and 26000 respectively, as calculated according to Eq. 7 [10, 12]

$$N = 2 RC \cdot N' \quad (7)$$

The drawn lines in Fig. 3a correspond to the strictly exponential attenuation confirmed by experiment, whereas the dotted lines represent the calculated values

of 2.5σ . The registered points again correspond to the average signal differences ΔN found when extra absorbers of $\frac{\Delta x}{x} = 0.095$ were added to the abscissae

of the points. The ranges drawn indicate the uncertainty of the signal differences as found by experiment. The conclusion of Fig. 3a is, that $N_0 \approx 3 \cdot 10^4$ is amply sufficient to detect $\frac{\Delta x}{x} = 9.5\%$ in a broad range at both sides of $x = \frac{2}{m}$, whereas $N_0 \approx 3 \cdot 10^3$ just would not do. This state of affairs can immediately be read from Fig. 1.

An example of a series evaluated by ionization chamber + electrometer measurements is illustrated in Fig. 3b in analogy to the ratemeter series. The same ^{137}Cs source, as in all preceding experiments, has been applied. Here the geometry had been precalculated to yield $N_0 \approx 3 \cdot 10^5$ (photons to interfere with the chamber filling) during $2 RC = 34 \text{ s}$. This basic signal would, according to Fig. 2, be insufficient to detect $\frac{\Delta x}{x} = \frac{2}{3}\%$, which had to be shown.

Experiments yield readings of small currents, $\rho A = f(x)$, which are plotted in Fig. 3b.

The largest current fluctuations as read by the electrometer were taken to represent 2.5σ . Their decrease as a function of x is shown by the dotted line.

The signal differences belonging to $\frac{\Delta x}{x} = 0.0067$ are found to be larger than 2.5σ on average, but not to a sufficient extent, which was expected when choosing $N_0 < 10^6$.

One can try to correlate N values to the measured electrometer currents. This means that the current scale of Fig. 3b has to be shifted with respect to the N scale of Fig. 3a, until the dotted line corresponds to $2.5 \sqrt{N_x}$. Since this has been done in Fig. 3, the ordinates of Fig. 3b can be read as N values as well by means of the ordinate of Fig. 3a. The experimental value of N_0 thus equals $5 \cdot 10^5$, nearly a factor 2 more than the precalculated one. This can be understood, since the scattering of secondary electrons within the chamber had necessarily to be neglected in the calculation.

APPLICABILITY OF OPTIMUM CONSIDERATIONS AND FIG. 1 IN BETA GAUGING

Betas obey the exponential attenuation law in more or less rough approximation depending on the kind of detector and on geometry. Figure 4 compares

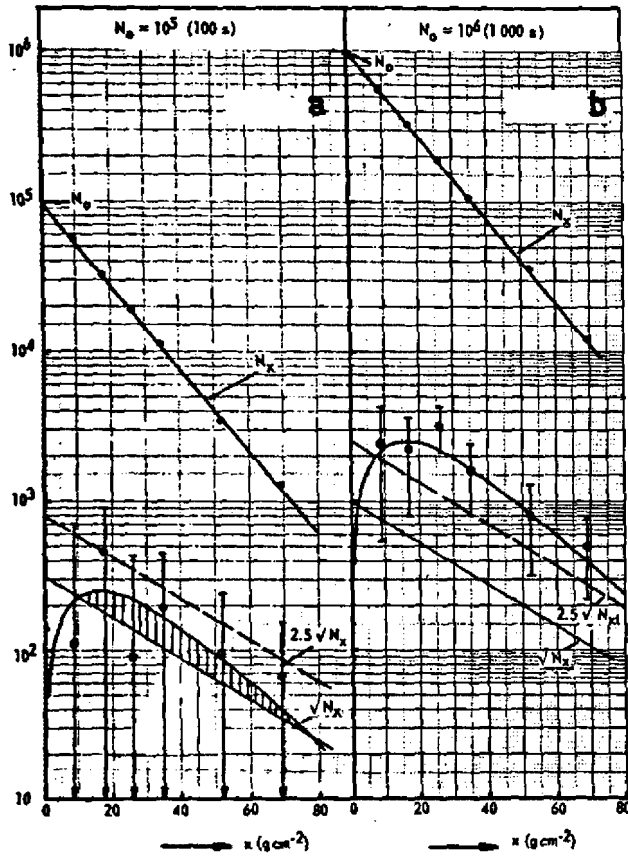


Figure 2. GM-scaler counting. $\frac{\Delta x}{x} = 0.0067$

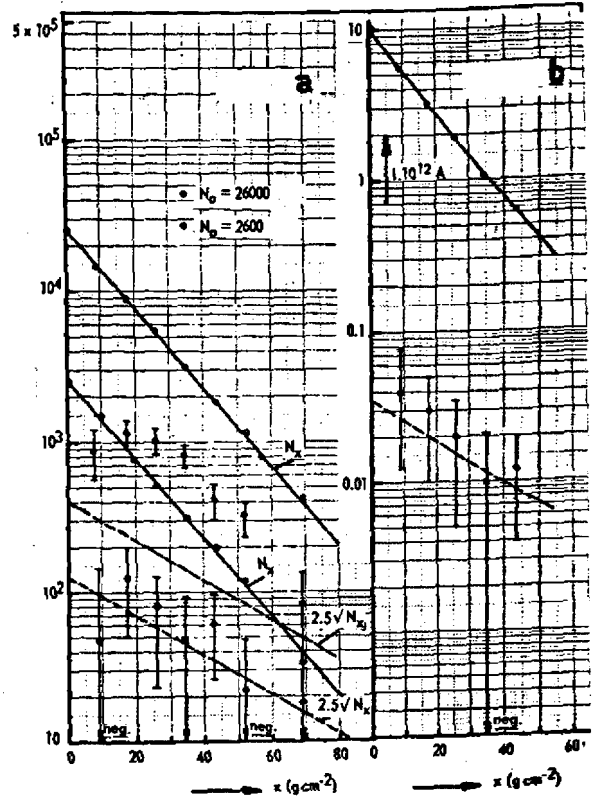


Figure 3. ¹³⁷Cs brass absorbers

- a: Scintillation detector-ratemeter. $\frac{\Delta x}{x} = 0.095$;
- b: Ionisation chamber-electrometer $\frac{\Delta x}{x} = 0.0067$

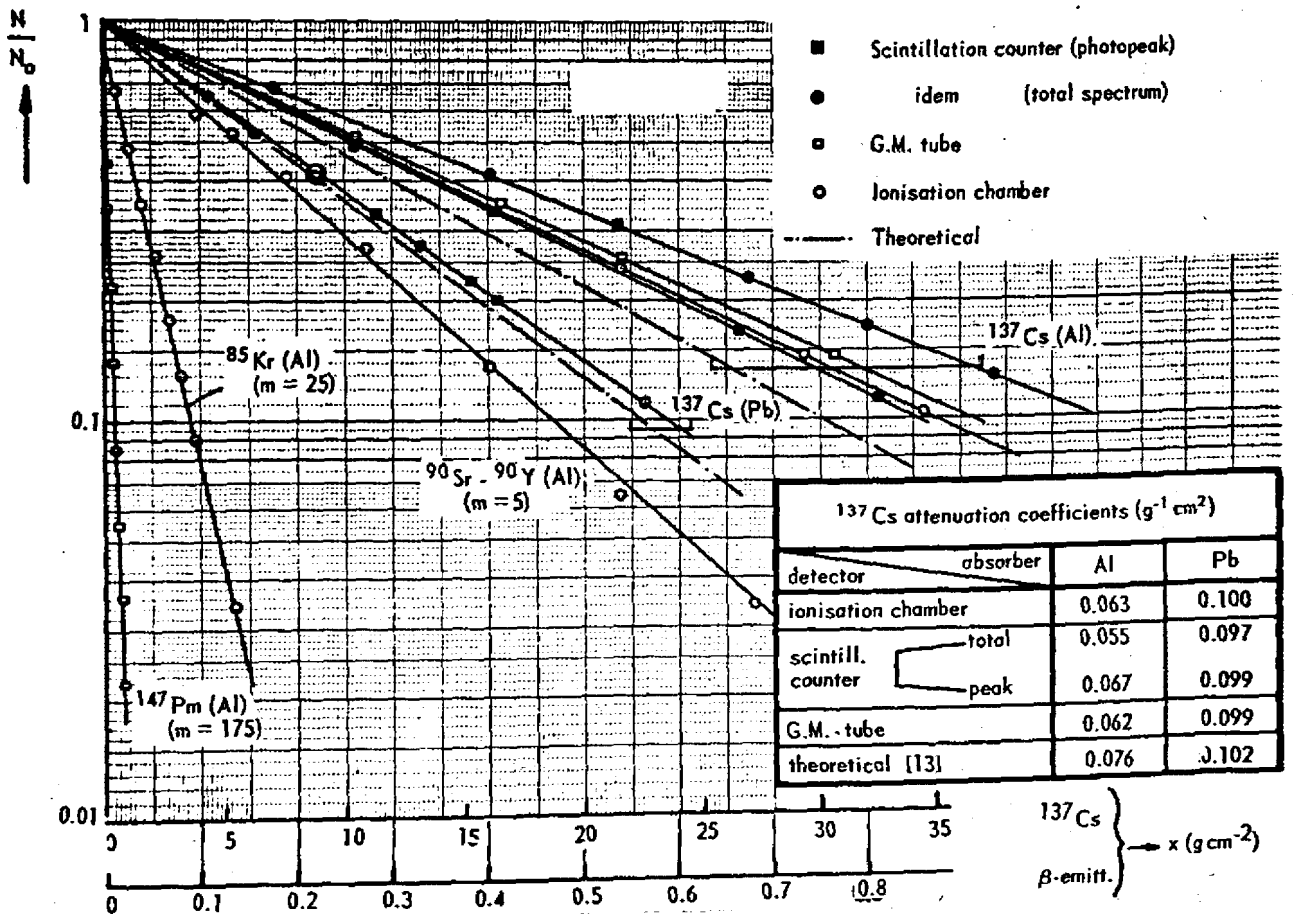


Figure 4. Experimental data on ¹³⁷Cs and β-attenuation

the semilog plots of ¹³⁷Cs attenuation as measured by means of different detectors and absorbing materials, to three beta attenuation lines. In the case of ¹³⁷Cs, *m* values show relatively slight variations in dependence on measuring conditions and the known increase with the atomic number of the absorber. The beta emitters measured were as follows:

⁹⁰ Sr- ⁹⁰ Y.	ionization chamber	large absorber sheets	$\left\{ \begin{array}{l} \text{distance} \\ \text{source-} \\ \text{detector} \\ \text{8 cm} \end{array} \right.$
⁸⁵ Kr	ionization chamber	large absorber sheets	
¹⁴⁷ Pm	GM tube	absorbers 2.5 cm \varnothing	

It may be concluded that these three nuclides can, for practical purposes, be characterized by significant attenuation coefficients, indicated in Fig. 1 and Table 1.

In order to demonstrate to what extent measuring conditions can influence β -attenuation behaviour, Fig. 5 has been added. The three β -lines from Fig. 4

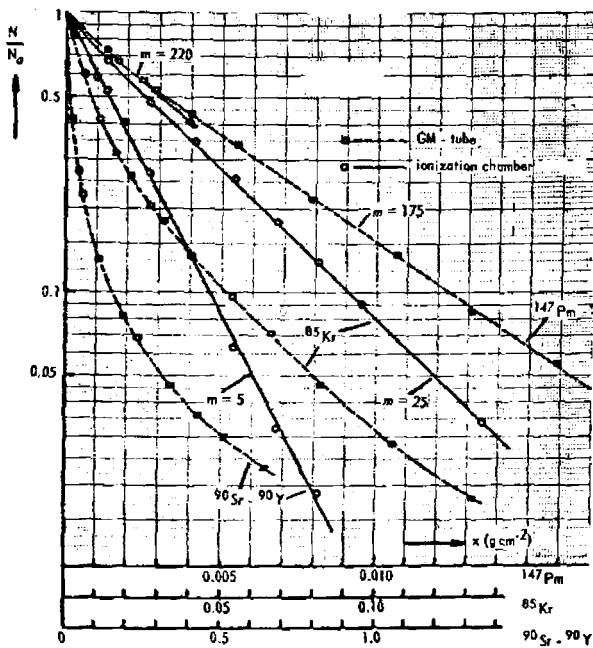


Figure 5. β -attenuation by Al-absorbers

have been reproduced there together with two other series on ⁹⁰Sr-⁹⁰Y and ⁸⁵Kr determined by GM counting at 35 cm and 20 cm distances respectively. The same small absorbers mounted in a thick perspex plate, as used above with ¹⁴⁷Pm, have been applied.

Since the latter measuring geometries are not characteristic for practical circumstances, Fig. 1 can be recommended for the evaluation of the most suitable nuclide and the required source-strength in the cases of both γ and β -gauging.

APPENDIX

A 1. General expressions

$$N_x = N_0 e^{-mx}$$

$$\Delta N = N_x - N_{x+\Delta x} \quad \text{[A 1a]} \quad \Delta N = N_x - N_{x-\Delta x} \quad \text{[A 1b]}$$

$$= N_0 e^{-mx} (1 - e^{-m\Delta x}) \quad \text{[A 2a]} \quad = N_0 e^{-mx} (e^{m\Delta x} - 1) \quad \text{[A 2b]}$$

$$\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} = \sqrt{N_0} e^{-\frac{mx}{2}} \left(1 - e^{-\frac{m\Delta x}{2}}\right) \quad \frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} = \sqrt{N_0} e^{-\frac{mx}{2}} \left(e^{\frac{m\Delta x}{2}} - 1\right) \quad \text{[A 3a]} \quad \text{[A 3b]}$$

$$= \sqrt{N_x} \left(1 - e^{-\frac{m\Delta x}{2}}\right) \quad \text{[A 4a]} \quad = \sqrt{N_x} \left(e^{\frac{m\Delta x}{2}} - 1\right) \quad \text{[A 4b]}$$

Both series of formulae are equivalent for the considerations of the paper. Series (a) has been chosen as a basis for Fig. 1.

A 2. Expressions and optimizations for small $m \Delta x (< \sim 0.3)$

$$\Delta N \approx N_0 m \Delta x e^{-mx} \approx N_0 m x \frac{\Delta x}{x} e^{-mx} \quad \text{[A 5]}$$

$$\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} / \frac{\Delta x}{x} \approx m x e^{-mx} = f(mx)$$

$$\frac{df(mx)}{d mx} = e^{-mx} - m x e^{-mx} = 0 \rightarrow m x_{opt} = 1 \quad \text{[A 6]}$$

$$\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x}} \approx \frac{N_0 \frac{\Delta x}{x} m x e^{-mx}}{\sqrt{N_0} e^{-mx/2}} \approx \sqrt{N_0} \frac{\Delta x}{x} m x e^{-\frac{mx}{2}} \quad \text{[A 7]}$$

$$\frac{\Delta N}{\sqrt{N_x} N_0} / \frac{\Delta x}{x} \approx m x e^{-\frac{mx}{2}} = f^*(mx)$$

$$\frac{df^*(mx)}{d mx} = e^{-\frac{mx}{2}} - \frac{m x}{2} e^{-\frac{mx}{2}} \approx 0 \rightarrow m x_{opt} = 2 \quad \text{[A 8]}$$

Close around $mx = 2$ the approximation sub A 2. is valid if $\frac{\Delta x}{x} < \sim 0.15$. At larger mass differences,

Fig. 1 shows a noticeable shift of the optimum towards lower mx values. The correct optimization starts from

$$\text{A 3a instead of A 7 and leads to } m x_{opt} = \frac{\ln\left(2 \frac{\Delta x}{x} + 1\right)}{\frac{\Delta x}{x}}$$

to which A 8 is a practicable approximation.

ACKNOWLEDGEMENT

Promotion of and support to this investigation by EURATOM's Bureau Eurisotop is most gratefully acknowledged.

REFERENCES

1. Hart, H., and Karstens, E., *Radioaktive Isotope in der Dickenmessung*, VEB Verlag Technik, Berlin (1958).
2. Westmeyer, H., *Kernenergie*, 1, 93 (1958).
3. Dietzsch, W., *Isotopen Techn.*, 1, 98 (1960).
4. Schurz, E., *ibid.*, 200.

5. Bashandy, E., *Intern. J. Appl. Radiation Isotopes*, 13, 173 (1962).
6. Dietzsch, W., *Isotopen Techn.*, 1, 66 (1960).
7. Schütz, G., *Isotopen Techn.*, 2, 129 (1962).
8. Mandel, L., *Brit. J. Appl. Phys.*, 5, 58 (1954).
9. Cameron, J. F., *Progress in Non-destructive Testing-2*, Heywood & Co., Ltd., London (1959).
10. Platzek, P., and Krugers, J., *Kerntechnik*, 3, 71 (1961).
11. Alcock, N. Z., and Gosh, S. K., *Control. Eng.*, 8, 87 (1961).
12. Schiff, L. I., and Evans, R. D., *Rev. Sci. Instr.*, 7, 456 (1936).
13. Grodstein, G. W., *N.B.S. Circular*, 583 (1957).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/828 Pays-Bas

Choix des caractéristiques de rayonnement les plus adéquates pour tout problème de jaugeage

par P. Platzek et A. C. Meyer

Le jaugeage vise le plus souvent à détecter ou à mesurer des différences de masse plutôt qu'à déterminer une masse moyenne elle-même. A cet égard, l'indication de niveaux doit être considérée comme un problème de jaugeage tout autant que la détermination de différences d'épaisseur ou de densité.

Une variation de masse Δx de la masse moyenne x doit être détectée ou mesurée à l'aide d'une différence de signal ΔN plus grande de façon significative que les fluctuations statistiques éventuelles du signal. Il faut que ce but soit atteint dans un intervalle de temps maximal donné t . Les moyens disponibles sont des sources d'isotopes caractérisées notamment par leur coefficient d'atténuation et leur activité.

En négligeant les effets secondaires, comme l'hétérogénéité du rayonnement, la diffusion, les dimensions de la source, l'influence du détecteur, etc., on peut admettre en première approximation que le rayonnement β ainsi que le rayonnement γ obéissent à la même loi d'atténuation exponentielle. Des considérations théoriques simples montrent que seule la masse moyenne de l'objet détermine le choix du radioisotope (c'est-à-dire du coefficient d'atténuation massique du rayonnement principal) optimal.

Il en résulte que l'activité que doit avoir la source dépend de:

- a) La différence de masse minimale à détecter (Δx);
- b) La précision requise ($\Delta N/\sqrt{N_x}$);
- c) Le temps de mesure (t);
- d) La géométrie et l'efficacité du détecteur.

En admettant que $\Delta N/\sqrt{N_x}$ devrait être au moins égal à 5, on a construit un nomogramme permettant

de lire les signaux voulus (comptage total = taux de comptage \times temps de mesure) à la fois pour des conditions optimales et des conditions non optimales.

Des données expérimentales montrent dans quelle mesure les hypothèses de simplification sont valables. Elles justifient l'idée selon laquelle tous les jaugeages de différences de masse à l'aide de rayonnements de grande énergie peuvent être considérés comme un problème général que, malgré la grande variation d'objectif, il est toujours possible d'aborder dans la pratique en utilisant essentiellement la même méthode.

A/828 Нидерланды

Выбор наиболее подходящих характеристик излучения для определенных проблем калибровки

П. Плачек, А. Ц. Мейер

Калибровка имеет целью главным образом скорее обнаружение или измерение различий в массах, чем определение средней массы как таковой. В этом отношении указание уровня может рассматриваться в равной степени как проблема калибровки в дополнение к измерениям разности толщины или плотности.

Отклонение массы Δx от среднего значения D должно быть детектировано или измерено по разнице в сигналах ΔN , значительно превышающей возможные статистические флуктуации сигнала. Это может быть осуществлено за данный максимальный интервал времени t . Доступными средствами являются изотопные источники с различными характеристиками излучения, например массовым коэффициентом ослабления и мощностью источника.

Если пренебречь вторичными эффектами, например неоднородностью излучения, рассеянием, размерами источника, срабатыванием детектора и т. д., можно считать, что β - и γ -из-

лучения в первом приближении подчиняются одному экспоненциальному закону поглощения. В этом случае простые теоретические соображения показывают, что только средняя масса объекта определяет выбор оптимального радиоактивного изотопа (массовый коэффициент ослабления основного излучения). Следовательно, необходимая мощность источника зависит от следующих факторов:

- 1) минимальной разницы в массе, которую необходимо детектировать (Δx);
- 2) требуемой точности ($\Delta N/\sqrt{N_x}$);
- 3) времени измерения t ;
- 4) геометрии и эффективности детектора.

На основе допущения о том, что отношение ($\Delta N/\sqrt{N_x}$) должно быть по крайней мере равно 5, была построена номограмма для определения требуемых сигналов (общий счет = скорости счета \times время измерения) для оптимальных и неоптимальных условий.

Экспериментальные данные показывают, в какой степени справедливы упрощенные предположения. Они оправдывают попытку рассмотреть все измерения различий в массе при помощи излучения высокой энергии как общую проблему, которая, несмотря на большое разнообразие задач, может рассматриваться по существу одинаковой.

A/828 Países Bajos

Elección de las características de la radiación más adecuadas para un problema dado de calibración

por P. Platzeck y A. C. Meyer

Con la calibración se intenta sobre todo detectar o medir *diferencias* de masa en vez de determinar la masa media. Desde este punto de vista, la indicación de niveles se puede considerar también como problema de calibración, además de las medidas de espesores o de densidad (por diferencia).

Una desviación Δx de la masa media x se debe detectar o medir por medio de una diferencia de señal ΔN considerablemente mayor que las posibles fluctuaciones estadísticas de la señal. Esta medida se debe conseguir en un intervalo de tiempo máximo t . Los instrumentos disponibles son fuentes de isótopos de características de radiación diferentes. Tales como coeficiente de atenuación de masa e intensidad de la fuente.

Cuando se desprecian efectos secundarios, como heterogeneidad de la radiación, dispersión, dimensiones de la fuente, respuesta del detector, etc., se puede suponer en primera aproximación que tanto la radiación β como la γ obedecen la misma ley exponencial de atenuación. Simples consideraciones teóricas muestran entonces que solamente la masa media del cuerpo determina la elección del radioisótopo óptimo (c.q. coeficiente de atenuación de masa de la radiación principal). La intensidad de la fuente requerida depende, por lo tanto, de:

- 1) La mínima diferencia de masa, (Δx), que debe ser detectada;
- 2) Precisión que se desea ($\Delta N/\sqrt{N_x}$);
- 3) Tiempo de medida (t);
- 4) Geometría y eficiencia del detector.

Suponiendo que $\Delta N/\sqrt{N_x}$ debe ser al menos igual a 5 se ha representado gráficamente una curva que permite leer las señales necesarias (contaje total = velocidad de conteo \times tiempo de medida) tanto para condiciones óptimas como no óptimas.

Datos experimentales muestran hasta que punto son válidas las hipótesis simplificadoras y justifican el intento de considerar todas las medidas de diferencia de masa mediante radiación de alta energía como un problema general que, a pesar de grandes variaciones en su objetivo, en la práctica puede abordarse siempre de la misma forma.

Determination of certain trace impurities in pure lead and aluminium by neutron-activation analysis

By H. K. El-Shamy, A. A. Abdel-Rassoul and T. Z. Bishay*

The presence of microquantities of certain metallic impurities in lead usually limits its industrial application. Similarly, impurities present, even in trace quantities, in aluminium may also prevent its use as a reactor material. The conventional analytical methods for both metals are subject to numerous substantial limitations. In this respect, activation-analysis is generally used with considerable accuracy for the determination of several elements in different materials, particularly if present in concentrations far below detection with other micro-analytical techniques [1]. The principles of activation-analysis have been reviewed by various authors [2-7] and numerous publications dealing with the experimental techniques involved and various applications for specific analytical problems have appeared [8-10].

Notable among the work so far reported on lead, Ruzicka *et al.* [11] recently determined trace silver impurities in neutron-irradiated samples by a procedure based on a solvent extraction technique. Adams and Hoste [12, 13] applied non-destructive gamma-spectrometry for the simultaneous determination of trace antimony and arsenic concentrations in lead, after a careful consideration of the necessary corrections for the interference of gamma rays with similar energies emitted from the induced radioisotopes in pile-irradiated samples. Some other publications dealing with the determination of a limited number of metallic impurities in lead have also appeared [14].

Aluminium, on the other hand, is generally used in reactor technology due to its low neutron absorption cross section ($\sigma = 0.23$ b) and to the rapid decay of the induced activities in pile-irradiated samples. It has been intensively analysed by radioactivation and several schemes for the separation of the elements determined have been developed [15-23].

The general use of ion-exchange chromatography as a possible route for several separation schemes of

different elements analysed by radioactivation has been recommended [24], by Jervis and Mackintosh [25], and later Girardi and Pietra [26] determined numerous metallic impurities in reactor-grade aluminium by this technique. The scheme proposed by the latter authors for the systematic determination of 13 trace metallic impurities in aluminium is mainly based on the group separation of induced carrier-free activities in irradiated samples by ion-exchange chromatography, followed by the careful analysis of the gamma ray scintillation spectrum of each. This method necessitates a complete knowledge of the decay schemes of the various radionuclides expected, and is also subject to the interference action of gamma rays having the same energies emitted from some radioisotopes separated together. Moreover, the gamma spectrometric assembly needed must be of high sensitivity and good resolution for the easy identification and possible determination of low concentrations from several elements investigated.

In the present work, a systematic determination of a considerable number of elements present as trace impurities in lead and aluminium samples of different purity grades is described. A separation scheme based on co-precipitation and ion-exchange techniques has been worked out. The samples analysed were irradiated in the UA-RR-1, 2 MW(th) research reactor at Inshass together with various standards of the elements to be determined. Both lead and aluminium are readily separable as chlorides in excess HCl. The non-precipitable chlorides in concentrated hydrochloric acid are subsequently passed through a column of the strongly basic anionite, Dowex-1, and the metallic ions present successively fractionated with different HCl-HF eluant concentrations. The radionuclides concerned collected in the individual fractions are further purified by chemical precipitation before being compared with processed samples of the respective similarly irradiated standards. The addition of carriers favours the possible purification of the separated radionuclides and is better than fractionation by other methods. Successive ion exchange separation-chemical precipitation techniques ensure complete decontamination from extraneous activities.

* Nuclear Chemistry Department, Atomic Energy Establishment, Inshass, and Chemical Department, Ministry of Industry, Cairo.

NUCLEAR DATA

Reference standards

In the present investigation, the metallic impurities determined so far are those of certain elements which, upon irradiation by thermal neutrons, produce long-lived radioactive isotopes and give further information on the hazardous effects to be expected after prolonged irradiation. Some useful nuclear data for the elements considered are listed in Table 1.

EXPERIMENTAL

Materials

Four lead samples have been analysed so far (Pb-1 to Pb-4). These were of different purity grades including; the sample Pb-1 of British Drug Houses, Ltd., A.R. grade and Pb-2 of Hopkins and Williams, Ltd., A.R. purity, together with two other pure samples, Pb-3 and Pb-4, respectively. The first two samples were finely powdered, whilst both Pb-3 and Pb-4 were supplied as very thin foils.

On the other hand, the aluminium samples subjected to analysis were representative samples from both small and large aluminium cans used for pile irradiations, Al-1 and Al-3, respectively. Other duplicate samples taken from the aluminium caps of each can, Al-2 and Al-4, were also analysed.

The chemicals chosen as standards for irradiation with both lead and aluminium samples are of high analytical purity, Analar grade, including iron powder, tin granules, zinc powder, cadmium carbonate, chromic oxide, and cobalt oxide.

Carriers

Whenever possible, solutions of the carriers needed in the present work were prepared from weighed quantities of the respective chemicals dissolved in dilute nitric acid and subsequently standardised with suitable analytical methods in each case [27]. In analysing lead samples, however, an excess of Cl^- ions is to be avoided to ensure that PbCl_2 is not precipitated in the early stages of adding the carriers. Tin carrier, is therefore prepared from A.R. granulated tin dissolved in concentrated hydrochloric acid and the solution carefully evaporated to dryness before being dissolved in a few drops of cooled 1:1 nitric acid solution and subsequently diluted.

The standard carriers are those prepared from cadmium carbonate, tin, iron, zinc and chromic chloride. Other carriers prepared for common use as scavengers are those of iron and antimony.

Table 1. Some nuclear data of the elements investigated

Element	Stable ^a isotope	Abundance (%)	Isotopic cross section ^b	Isotope produced	Half-life	Radiations ^b (energy in MeV)
Lead	²⁰⁸ Pb	52.30	0.0006	²⁰⁹ Pb	3.3 h	β 0.635
Aluminium ^c	²⁷ Al	100.0	0.23	²⁸ Al	2.3 min	β 2.67 γ 1.78
Chromium	⁵⁰ Cr	4.31	17.0	⁵¹ Cr	27.8 d	γ 0.32 (e ⁻ , K)
Cobalt	⁵⁹ Co	100.0	19.0	⁶⁰ Co	5.27 yr	β 0.31 γ 1.17; 1.33
Iron	⁵⁶ Fe	0.33	1.0	⁵⁹ Fe	45.0 d	β 0.27; 0.46 γ 1.10; 1.30; 0.19
Tin	¹¹⁸ Sn	0.96	0.9	¹¹⁹ Sn	118.0 d	γ 0.26 (K)
	¹¹⁹ Sn	24.03	0.01	¹²⁰ Sn	250.0 d	γ 0.024 (e ⁻)
	¹²⁰ Sn	4.72	0.001	¹²¹ Sn	125.0 d	β 1.42 γ 1.08
	¹²⁴ Sn	5.94	0.004	¹²⁵ Sn	9.4 d	β 2.4 γ 1.07; 0.23
Zinc	⁶⁴ Zn	48.89	0.47	⁶⁵ Zn	245.0 d	β 0.33 γ 1.11
Cadmium	¹¹⁴ Cd	28.86	0.14	¹¹⁵ Cd	43.0 d	β 1.63 γ 0.95; 0.45-1.3
			1.1		2.3 d	β 1.1 γ 0.52

^a Other stable isotopes of the elements tabulated are not included in this table due to their minor nuclear interest in the present work.

^b The radiations indicated are those mainly emitted by the radioisotopes concerned.

^c Both ²⁷Mg ($T_{1/2} = 9.3$ min) and ²⁴Na ($T_{1/2} = 15$ h) are produced by the (n, p) and (n, α) reactions in pile-irradiated aluminium, respectively.

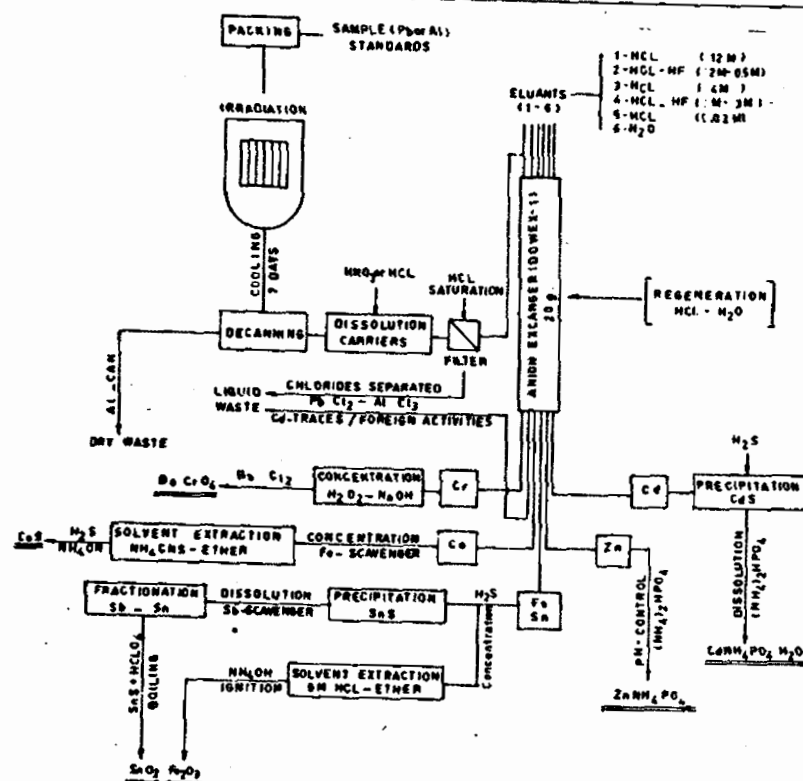


Figure 1. Schematic diagram for the chemical separation of elements determined in lead and aluminium samples

Ion exchange resin

The resin used is the strongly basic quaternary amine polystyrene divinyl-benzene (Dowex-1), 8X, 100 to 200 mesh, which has been freed from particles of smaller size by the repeated decantation of its suspension in water. It was successively washed with alcohol, concentrated hydrochloric acid and water to activate it and convert it to the chloride form.

Pile irradiations

The thin lead foils used were freed from grease by repeated washing with acetone and water before being dried. Aluminium samples were pre-treated with cold dilute nitric acid and washed with water before a similar treatment.

Suitable quantities of both samples (in duplicates) and representative quantities of standards were carefully wrapped in thin aluminium foils and irradiated under identical conditions in the UA-RR-1, 2 MW(th) research reactor at Inchass for 48 hours in a neutron flux of approximately 1.3×10^{13} n/cm² s. Both irradiated samples and standards were left to cool for at least 7 days to allow most of the short-lived activities to decay before chemical treatment.

Chemical procedure

Separate duplicate weights of the irradiated lead samples were dissolved in 15 ml nitric acid (1:2) and

5 ml portions of each standardised carrier solution were added. The solution was concentrated by careful evaporation before following the general method of fractional separation of the elements to be determined.

Suitable portions of irradiated aluminium, on the other hand, were dissolved in 5 ml concentrated hydrochloric acid solution and few drops of concentrated nitric acid together with 5 ml portions of each standardised carrier solution were also added.

Fractional separation of elements

The fractional separation of the elements to be determined from the sample solution by ion exchange chromatography is schematically represented in Fig. 1. The ultimate separation of macroquantities of both lead and aluminium as PbCl₂ and AlCl₃, respectively, was readily achieved from a cooled (0 °C) sample solution subjected to the prolonged action of hydrogen chloride gas. The precipitated chlorides were filtered through a G4 sintered glass disc and washed with two successive 1 ml portions of ice-cold concentrated hydrochloric acid. The collected filtrate and washings, after being adjusted to a total volume of 60 ml and 11–12M with respect to HCl, were passed through a column (1 cm diameter) of 20 g resin previously equilibrated with concentrated HCl. The flow rate ranged between 0.2–0.3 ml/min. The charged column was subsequently eluted with different HCl-HF concentrations and the respective eluates separately collected. The

elements present in different fractions were chemically precipitated in a form suitable for activity measurement.

Fraction 1: This fraction included the hydrochloric acid effluents together with the successive washings of conc. HCl (2×10 ml portions). The elements present in this fraction are mainly those forming non-adsorbable metal chlorides in concentrated HCl, particularly chromium [28]. However, if lead is originally present in macroquantities, its presence is also expected [29].

Separation of chromium

The collected fraction of non-adsorbable chlorides including chromium, was concentrated to 20 ml. In the presence of lead, any $PbCl_2$ separated on cooling was removed, and the solution diluted, slightly warmed and subjected to the action of hydrogen sulphide. Lead sulphide precipitated was separated and the solution freed from excess hydrogen sulphide. 1 ml 30% H_2O_2 was added together with sufficient 6M NaOH solution to pH 5.5 and the mixture was gently boiled to effect the complete oxidation of the chromium. A few drops of iron carrier were added to act as a scavenger for most of the extraneous activities likely to be present, and $Fe(OH)_3$ was precipitated with a slight excess of NaOH solution. The acidity of the filtrate was adjusted with acetic acid before precipitating chromium as $BaCrO_4$ with 5% barium chloride reagent [30]. The precipitate was separated, washed, dried at 110 °C and weighed.

Fraction 2: The charged column was subsequently eluted with 75 ml of HCl-HF mixture (12M – 0.5M), and the collected eluates containing traces of cadmium [26], and lead if present, together with some other foreign activities were passed to the radioactive liquid waste.

Fraction 3: Cobalt is quantitatively separated from several other metallic ions adsorbed on the anion exchanger, Dowex-1, with 4M hydrochloric acid solution [31–34]. Accordingly, the column containing the residual elements was treated with 75 ml of 4M HCl to elute cobalt completely together with other eluable ions.

Separation of cobalt

The collected eluates were concentrated by evaporation, diluted and 10 drops of iron carrier added. After the precipitation of $Fe(OH)_3$ with 1:1 ammonia, the filtrate was slightly acidified with dilute HCl (pH = 5.5), saturated with NH_4CNS and the cobalt was extracted with an equal volume of ether. It was subsequently recovered from the organic layer with 6N NH_4OH , and its solution acidified with HCl and re-extracted [35, 36]. Finally, the cobalt was precipitated with H_2S from its ammoniacal solution, as CoS , separated, washed and dried.

Fraction 4: A mixture of HCl-HF (2M – 3M) was used as suitable eluant for both iron and tin [26], and accordingly, 150 ml of mixed eluants were passed through the column and the collected eluates were subjected to the fractional separation of both elements.

Separation of tin

To the dilute warm solution of iron, tin and the other extraneous elements separated with the mixture of acids used, saturated boric acid solution was added (5 ml) and tin was separated as SnS_2 by the action of hydrogen sulphide. The solution containing non-precipitable ions was reserved for the isolation of iron.

The precipitated SnS_2 was dissolved in conc. HCl, a few drops of antimony carrier added and the solution made 1N with respect to both HCl and HF. Antimony sulphide was precipitated on warming by passing H_2S while the tin remained in solution due to the complexing action of the fluoride ions. Most of the ions precipitated as sulphides under these conditions are separated with Sb_2S_3 . Tin, on the other hand, was precipitated from the warm solution after the addition of saturated boric acid solution and the subsequent action of hydrogen sulphide. The separated SnS_2 was dissolved in conc. HCl, antimony carrier added and the fractionation of both antimony and tin repeated. The purified SnS_2 was dissolved in a small volume of $HClO_4$ and the solution heated until fuming took place, whereby tin is converted to the less soluble SnO_2 form. On dilution the solution was boiled to coagulate the SnO_2 , which could be then separated, washed, dried and weighed [37].

Separation of iron

The filtrate collected after the removal of tin was boiled to expel hydrogen sulphide and subsequently concentrated to 25 ml before being adjusted to 9M with respect to HCl. Iron present was repeatedly extracted with ether and the collected organic layers shaken with two successive 20 ml portions of double-distilled water to extract iron in the aqueous phase. Traces of ether were removed by carefully boiling the solution containing the iron, and $Fe(OH)_3$ was precipitated with 1:1 ammonia solution, washed with 1% hot NH_4NO_3 solution, dissolved in 9M HCl before being re-extracted and finally separated as purified $Fe(OH)_3$, dried, ignited and weighed as Fe_2O_3 .

Fraction 5: Zinc is among the metallic ions readily eluted with dilute hydrochloric acid solutions from the anionic exchangers used [38–40]. 75 ml of 0.02M HCl were, therefore, passed through the column containing the residual elements, whence zinc was found to be quantitatively eluted.

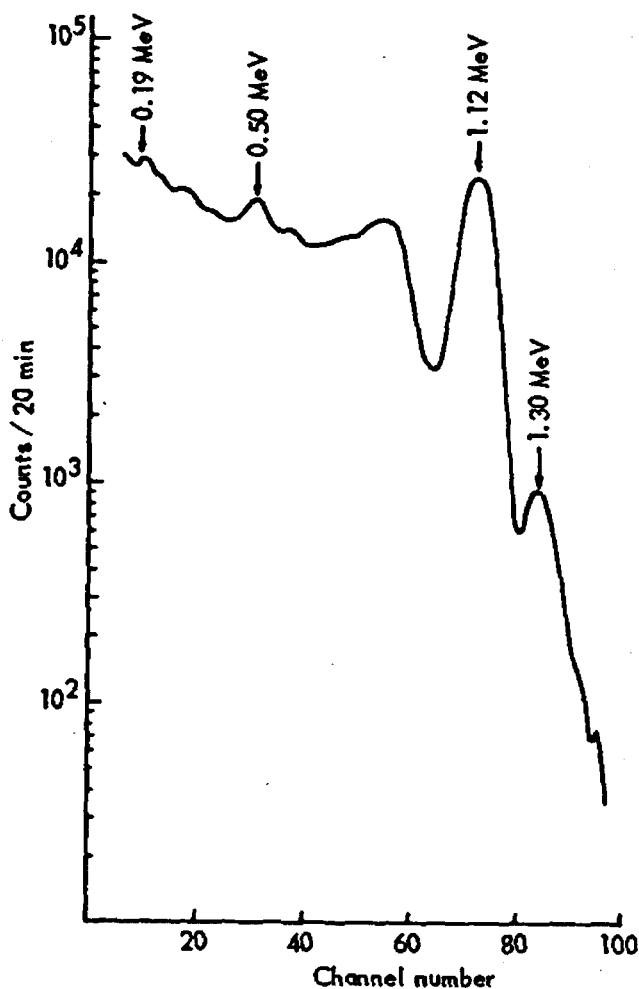


Figure 2. Gamma ray spectrum of irradiated aluminium sample AI-1

Separation of zinc

The collected eluates were concentrated to about 20 ml. 5 g NH_4Cl were then added together with 10 ml of 2N sodium acetate solution and carefully adjusted to pH 6.5. On heating, 10% $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ reagent was added dropwise and the mixture heated for a further 3 hours. The precipitated zinc ammonium phosphate was separated, washed, dissolved in dilute HCl and reprecipitated. The washed precipitate was dried at 105 °C and weighed as $\text{Zn}(\text{NH}_4)\text{PO}_4$.

Fraction 6: Cadmium was eluted from the anion exchange resins with very dilute hydrochloric acid [41-42]. In washing the column with 75 ml double-distilled water, the last traces of HCl present in the resin are sufficient to elute cadmium quantitatively. The presence of lead in this fraction is also expected due to its incomplete separation as PbCl_2 , or in the concentrated HCl effluents in fraction 1. This can be attributed to the low distribution-coefficient values of Pb^- ions on the strongly basic anionite, both in very dilute HCl, as well as in HCl concentrations exceeding 8M [29].

Separation of cadmium

To the eluate concentrates of this fraction, 7 to 10 drops of iron carrier were added and cadmium complexed as $\text{Cd}(\text{NH}_3)_4$ with excess 4M NH_4OH , leaving the separated gelatinous $\text{Fe}(\text{OH})_3$ precipitate to act as a scavenger for most extraneous elements, including traces of lead if present. The separated solution was warmed, slightly acidified and saturated with H_2S to precipitate CdS . The precipitate separated was dissolved in a few drops of conc. HCl, iron carrier was added and reprecipitated as $\text{Fe}(\text{OH})_3$. The filtrate was evaporated to dryness and the residue taken up in 20 ml hot water, and treated with 3M NH_4Cl solution followed by 1.5M $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ reagent with subsequent boiling. The cadmium ammonium phosphate precipitated was separated, dissolved in a few drops of conc. HCl and reprecipitated. The washed precipitate was dried at 110 °C and weighed as $\text{Cd}(\text{NH}_4)\text{PO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$.

PROCESSING OF REFERENCE STANDARDS

Irradiated standards of the elements determined were used to obtain a relation between activity and mass for each. A weighed quantity was dissolved in the appropriate acid and brought to a standard volume. Suitable quantities of an inactive compound of the element concerned were added to equal duplicate aliquots of the irradiated standard solution and separated chemically in the same precipitable form as those respectively described.

ACTIVITY MEASUREMENTS

Activity measurements were carried out mainly with a shielded GM counter having a mica end window of a thickness less than 2 mg/cm² together with a Philips' scaler. For comparison, activities in the samples and their respective standards were determined under identical geometry.

The gamma scintillation-spectrum of an irradiated aluminium sample (Fig. 2), after a suitable cooling period (3 weeks) was measured with a 100 channel pulse height analyser having a printing-out facility and a NaI (TI) crystal (1.5 × 1 in).

Whenever possible, decay curves were also measured to ensure the absence of short-lived activities, and aluminium absorption curves of the standards and samples were prepared and used to check the identity of the isotopes counted.

RESULTS AND DISCUSSION

The results of the analyses carried out are summarised in Table 2. The lead samples analysed were found to contain iron, zinc, tin and chromium as common trace impurities in concentration ranges

Table 2. Assay of certain metallic impurities in lead and aluminium samples by neutron-activation analysis

Sample	Weight (g)	Elements determined (ppm) ^a					
		Iron	Zinc	Chromium	Cobalt	Tin	Cadmium
Lead:							
(A.R.) B.D.H., Pb-1	2.8466	8.7	b.d. ^b	5.7	0.020	30.2	b.d.
	4.3425	7.7	0.23	4.2	0.028	—	—
(A.R.) Hopkins & Williams, Pb-2	3.2853	8.2	0.23	4.95	0.024	30.2	b.d. av.
	3.4626	16.2	4.80	30.5	0.014	59.3	b.d.
		29.1	35.5	21.0	0.020	62.8	—
Pure lead, Pb-3	4.0463	22.6	20.15	25.75	0.017	60.55	b.d. av.
	3.4434	105.8	61.3	30.5	0.044	141.8	0.27
		77.1	54.2	5.0	0.02	—	—
Pure lead, Pb-4	2.5638	91.5	57.75	17.75	0.032	141.8	0.27 av.
	2.0120	208.2	128.0	86.0	0.160	166.5	10.4
		355.8	136.5	—	0.045	—	—
		281.5	132.25	86.0	0.102	166.5	10.4 av.
Aluminium:							
Small inner can, Al-1	0.6798	950.1	51.0	14.3	0.180	b.d.	b.d.
	0.6673	960.7	51.8	67.4	0.150	—	—
		955.4	51.4	40.8	0.165	b.d.	b.d. av.
Respective cap, Al-2	0.5214	825.6	96.2	59.0	0.21	b.d.	1.19
	0.4354	836.6	100.4	53.8	0.39	b.d.	1.03
		831.1	98.3	56.4	0.30	b.d.	1.11 av.
Large inner can, Al-3	0.6560	911.1	66.5	3.2	0.20	b.d.	b.d.
	0.7000	1 092.0	63.3	2.8	0.24	—	—
		1 001.5	64.9	3.0	0.22	b.d.	b.d. av.
Respective cap, Al-4	0.3112	1 094.4	126.6	—	0.14	b.d.	b.d.
	0.2714	964.2	134.8	85.8	0.15	—	—
		1 029.3	130.7	85.8	0.145	b.d.	b.d. av.

^a The concentrations determined are based on the induced activity in the respective standards irradiated under identical conditions and counted in the same chemical form.

^b b. d. represents concentrations *beyond detection* under the conditions specified.

from $0.2 \times 10^{-4}\%$ to $350.0 \times 10^{-4}\%$, whilst cobalt is only present in not more than $0.16 \times 10^{-4}\%$. Cadmium, however, is present only in concentrations necessitating long irradiations to be detectable with any appreciable accuracy.

On the other hand, the aluminium samples contained iron as the major metallic impurity in concentrations of about 0.1%. This has been separated as the 45 d ⁵⁹Fe radioisotope and preliminarily identified by gamma-ray spectrometry through the 0.19, 1.10 and 1.30 MeV photopeaks of the corresponding gamma-ray lines in the compound scintillation spectrum of the irradiated sample (Fig. 2). Zinc is also present in concentrations from 50×10^{-4} to $150 \times 10^{-4}\%$, whereas the other metals determined were found to be of lower concentrations. Both tin and cadmium impurities in the samples analysed were beyond detection. The presence of sizeable quantities of cadmium ($\sigma = 2450$ b) in aluminium limits its use as a reactor material.

Within the accuracy of the measurements carried out, the precision of these determinations was illus-

trated by duplicate analyses, wherein the mean deviation was $\pm 10-12\%$ in most cases. The sensitivity, however, can be appreciably increased by longer irradiation periods, due to the long half-lives of the majority of the isotopes separated, as well as by using a higher flux and increased weights of samples analysed.

Gamma-ray spectrometry as a possible route for the quantitative determination of the elements concerned [26] was tried and the low counting-rate of the samples investigated limited its application. The present technique is, therefore, satisfactory and no interference by extraneous activities was detected in any case. The scheme worked out for the fractional separation of metallic ions with a decreased HCl acidity in the eluents used was preliminarily tested with trace activities to control the optimum conditions recommended for the non-overlapping of the ions separated in successive fractions.

The method is now used for the routine analysis of both metals with good reproducibility and further work to determine metallic impurities other than those investigated is being carried out at present.

REFERENCES

1. ZVYAGINTSEV, O. E., and Kulak, I., Transactions of the All-Union Scientific Technical Conference on the Use of Radioactive and Stable Isotopes and Radiations in the National Economy and in Science, 4-12 April 1957 (translation series from the US Atomic Energy Commission, Report No. AEC-tr-4497, 179-188 (1961)).
2. Boyd, G. E., *Anal. Chem.*, **21**, 335-347 (1949).
3. Taylor, T. I., and Havens, W. W., Jr., *Nucleonics*, **6**, 54-66 (1950).
4. Leddicotte, G. W., and Reynolds, S. A., *Nucleonics*, **8** (1951).
5. Herr, W., *Angew. Chem.*, **64**, 679 (1952).
6. Schindewolf, U., *ibid.*, **70**, 181-187 (1958).
7. Cook, G. B., in Symposium on Radioactivation Analysis, IAEA, Vienna, June 1959.
8. Gibbons, D., Loveridge, B. A., and Millet, R. J., U.K. Atomic Energy Authority Report No. AERE I/R 2208 (1957) — collected bibliography.
9. Meinke, W. W., *Nucleonics*, **28**, 736 (1956).
10. Meinke, W. W., *Nucleonics*, **30**, 686 (1958).
11. Ruzicka, J., Sary, J., and Zeman, A., *Talanta*, **10**, 905-909 (1963).
12. Adams, F., and Hoste, J., *Talanta*, **10**, 1093-1102 (1963).
13. Adams, F., and Hoste, J., *Nucleonics*, **22**, 55-57 (1964).
14. Eastwood, T. A., Atomic Energy of Canada Ltd. Report No. CI-193 (1952); cf. References 11 and 12.
15. Albert, P., Caron, M., and Chaudron, G., Proceedings of the Isotopes Techniques Conference (Oxford), **2**, 171 (1951).
16. Albert, P., Caron, M., and Chaudron, G., Proceedings of the Isotopes Techniques Conference (Oxford), *Compt. Rend.*, **233**, 1108 (1951).
17. Albert, P., *Chim. et Ind. (Paris)*, **75**, 275 (1956).
18. Brooksbank, W. A., Leddicotte, G. W., and Mahlman H. A., *J. Phys. Chem.*, **57**, 815 (1953).
19. Chaudron, G., *Bull. Soc. Chim. France*, **419** (1954).
20. Foster, L. M., and Gaitanis, C. D., *Anal. Chem.*, **27**, 1342 (1955).
21. Iredale, P., U.K. Atomic Energy Authority Report No. AERE I/M 96 (1957).
22. Plumb, R. C., *Nucleonics*, **14** (1956).
23. References 25 and 26.
24. Blaedel, W. J., Olsen, E. D., and Buchanan, R. F., *Anal. Chem.*, **32**, 1866 (1960); and Mellish, C. E., U.K. Atomic Energy Authority Report No. AERE-IM-39 (1956).
25. Jervis, R. E., and Mackintosh, W. D., *Activation analyses of interest to atomic energy programs*, Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, P/189, Vol. 28, p. 470, United Nations (1958).
26. Girardi, F., and Pietra, R., *Anal. Chem.*, **35**, 173-177 (1963).
27. Schwarzenbach, G., *Titrationen mit Hilfe von Komplexen*, Siegfried Aktiengesellschaft, Zofingen, Schweiz; Swiss Patent No. 245126 and US Patents Nos. 2583890-1.
28. Moore, G. E., and Kraus, K. A., *J. Am. Chem. Soc.*, **72**, 5792 (1950).
29. Nelson, F., and Kraus, K. A., *ibid.*, **76**, 5916 (1954).
30. Scott, W. W., *Standard Methods of Chemical Analysis*, Vol. 1, p. 287, 5th ed., New York (1939).
31. Hague, J. L., Maczkowski, E. E., and Bright, H. A., *J. Res. Natl. Bur. Std.*, **53**, 353 (1954).
32. Moore, G. E., and Kraus, K. A., *J. Am. Chem. Soc.*, **74**, 843 (1952).
33. Blasius, E., and Negwer, M., *Naturwissenschaften*, **39**, 257 (1952).
34. Herber, R. H., and Irvine, J. W., Jr., *J. Am. Chem. Soc.*, **76**, 987 (1954).
35. Meinke, W. W., USAEC Report No. AECD-2738, p. 49 (1949).
36. Kusaka, Y., and Meinke, W. W., *Rapid Radiochemical Separations*, USAEC Report No. NAS-NS-3104, p. 53 (1961).
37. Leader, G. R., in *Radiochemical Studies: The Fission Products* (Coryell, C. D. and Sugarman, N., eds.), McGraw-Hill Book Company Inc., Book 2, Part V, paper 130, p. 919 (1951).
38. Jentzsch, D., and Pawlik, I., *Z. Anal. Chem.*, **147**, 20 (1955).
39. Helweg, H. L., Ashikava, J. K., and Smith, E. R., USAEC Report No. UCRL-2655 (1954), *N.S.A.*, **8**, 6678 (1954).
40. Lowen, J., and Carney, A. L., *Anal. Chem.*, **27**, 1965 (1955).
41. Hunter, J. A., and Miller, C. C., *Analyst*, **81**, 79 (1956).
42. Kraus, K. A., and Nelson, F., *Anion exchange studies of the fission products*, Proceedings of the First International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, P/837, Vol. 7, p. 113, United Nations (1956).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/829 République arabe unie

Détermination de certaines traces d'impuretés dans le plomb et l'aluminium purs au moyen de l'analyse par activation neutronique par H. K. El-Shamy et al.

Le mémoire décrit la méthode de détermination systématique d'un nombre considérable d'éléments présents sous forme de traces dans des échantillons de plomb et d'aluminium de différente pureté. Un schéma de séparation fondé sur les techniques de précipitation et d'échange ionique a été mis au point.

Les radionucléides en question sont, après addition d'entraîneurs appropriés, séparés des échantillons irradiés en pile, et la pureté radiochimique de chaque radionucléide est contrôlée pour permettre la comparaison avec ceux induits dans les étalons correspondants irradiés dans les mêmes conditions. L'addition d'entraîneurs facilite la purification des radionucléides séparés, et dans ce cas le procédé employé de séparation par échange ionique suivie d'une précipitation chimique assure une décontamination complète des activités étrangères. Les procédés décrits peuvent être utilisés pour l'analyse courante avec une bonne reproductibilité.

A/829 OAP

A/829 República Árabe Unida

Определение некоторых следов примесей в чистом свинце и алюминии методом нейтронной активации

Х. К. Эль-Шами *et al.*

Описано систематическое определение значительного числа элементов, присутствующих в виде следов в образцах свинца и алюминия различной степени чистоты. Разработана схема разделения, основанная на осаждении и методике полного обмена. Исследуемые радиоактивные изотопы выделяют из облученных в реакторе образцов после добавления соответствующих носителей и радиохимическую чистоту каждого изотопа проверяют, прежде чем сравнивать с наведенной активностью в облученных аналогичным образом эталонах. Добавление носителей способствует очистке разделяемых радиоактивных изотопов, и в этом случае используемые методы последовательного разделения при помощи ионного обмена и химического осаждения обеспечивают полную очистку от примесей. Описанная методика может быть использована для серийного анализа и характеризуется хорошей воспроизводимостью.

Determinación de trazas de ciertas impurezas en plomo puro y aluminio por análisis por activación con neutrones

por H. K. El-Shamy *et al.*

Se describe una determinación sistemática de un considerable número de elementos presentes como impurezas en el orden de trazas en muestras de plomo y aluminio de diferentes grados de pureza. Se desarrolla un esquema de separación basado en técnicas de precipitación e intercambio iónico. Los núclidos radiactivos de que se trate se separan de las muestras irradiadas en el reactor después de agregar portadores convenientes y se comprueba la pureza radioquímica de los respectivos núclidos radiactivos antes de compararla con la actividad inducida en los respectivos patrones irradiados de un modo similar. A este respecto, la adición de portadores favorece la posible purificación de los radionúclidos separados, en cuyo caso, los métodos utilizados de separación por intercambio iónico y precipitación química sucesiva asegura una completa descontaminación de actividades extrañas. Los procedimientos descritos se pueden utilizar para análisis rutinarios con buena reproductibilidad.

Gas-phase methods operating at atmospheric pressure for the analysis of soft beta-emitting isotopes

By S. Mlinko * and T. Szarvas **

For the measurement of the radioactivity of organic compounds labelled with soft β -emitting isotopes (^3H , ^{14}C , ^{35}S) gas counting and/or liquid scintillation methods are almost exclusively employed at present. The most exact analysis can be carried out in the proportional region by an internal gas counter reported by Bernstein and Ballentine [1]. However, the filling of such counters requires cumbersome vacuum systems. A further complication may also arise if the analysis of the carbon content of compounds is necessary. Such determinations are generally undertaken by manometric methods in a carefully calibrated volume of the vacuum system.

In our laboratory, an effort has been made to eliminate these difficulties which accompany the traditional analysis of radionuclides of labelled organic compounds by elaborating simple new methods operating exclusively at atmospheric pressure instead of using difficult vacuum lines. This could be achieved by adapting suitably constructed counter systems to the classical combustion methods of organic microchemical analysis. To obtain precise activity results, the method of choice must meet the following conditions:

(a) Radionuclides to be analysed must be transformed into simple, chemically inert gaseous compounds possessing favourable properties for proportional counting;

(b) Any loss of activity owing to incomplete transformations, isotope effects, isotopic exchange or any kind of cross-contaminations between samples must be avoided;

(c) Activity results must be referred to weighed quantities of original compounds instead of to the volume of gas being measured.

On the basis of these general principles simple, new methods have been developed for the quantitative determination of:

radio-carbon in the form of methane- ^{14}C [2];

* Central Research Institute for Chemistry of the Hungarian Academy of Sciences, Budapest.

** National Atomic Energy Commission Institute of Isotopes, Budapest.

radio-carbon in the form of carbon- ^{14}C dioxide [3];
tritium in the form of ethane- ^3H [4];
radiosulfur in the form of hydrogen sulfide- ^{35}S [5].

The performing of analyses requires only some practice in organic micro-analysis. In this paper, the principles of these methods are briefly described. In the original papers cited above, more detailed descriptions are given.

ANALYSIS OF RADIO-CARBON IN THE FORM OF METHANE- ^{14}C

For determinations, the apparatus shown in Fig. 1. has been employed.

The sample being investigated is weighed into a platinum boat and placed into the combustion tube. The trap C is cooled by liquid air. The active sample is combusted over cobalt oxide catalysts by air at a flow-rate of 5 ml/min then flushed with nitrogen for 15 min at a flow-rate of 10 ml/min. The carbon dioxide formed is frozen out in the trap. The levelling flask D is filled with hydrogen to a mark, the carbon dioxide expanded and converted into methane over the nickel catalyst. The flow-rate of hydrogen during flushing is 10 ml/min and takes 20 min to sweep the system. Palladium-asbestos reduces the oxygen contents of the hydrogen gas at 450 °C to water without the

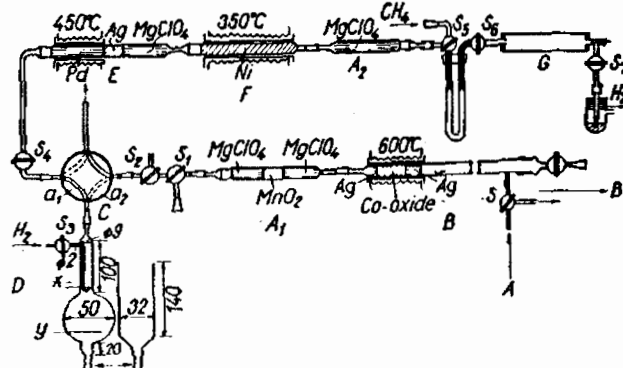


Figure 1. Analysis of radio-carbon in the form of methane- ^{14}C
A₁, A₂: Absorbers; B: Combustion tube; C: Trap; D: Levelling flask; E: Purification tube; F: Catalyst tube; G: Counter

Table 1. Results of the analysis by dry combustion of ^{14}C labelled organic compounds measured in the form of methane- ^{14}C

Substance	Sample weight mg	%C		Specific activity cpm		Deviation % rel.
		Found	Calc.	Found	Calc. ^a	
Benzoic acid	1.952	68.70	68.84	20 352	20 500	+0.15
	1.730	68.65	68.84	20 514	20 500	+0.05
Acetanilide	3.959	71.40	71.11	4 325	4 335	-0.25
	6.640	71.44	71.11	4 311	4 335	-0.60
Diacetyl-naphthylamine	1.285	74.21	73.99	28 570	28 600	-0.10
	1.237	74.35	73.99	28 640	28 600	+0.14
Acetone-dinitrophenyl-hydrazone	2.930	45.10	45.37	13 112	13 110	+0.02
	2.698	45.19	45.37	13 140	13 110	+0.30
Trimethyl- <i>o</i> -chloro-anilinioidide .	1.970	35.64	35.72	16 915	16 950	-0.21
	3.143	35.88	35.72	16 980	16 950	+0.18

^a Mean value of series measurements on vacuum apparatus with proportional counter.

partial reduction of carbon dioxide. The methane formed is frozen out in the trap of the counter. As the pressure of methane amounts to 10 torr at the temperature of liquid nitrogen, its complete freezing-out could only be achieved by evaporating a part of the liquid air at a reduced pressure, thus lowering its temperature by evaporation heat. In this way freezing temperatures of -215°C could be obtained. At -215°C , the methane pressure amounts to only 0.1 torr, which means that using a counter with a volume of 10 ml filled at nearly atmospheric pressure and using 150 ml of hydrogen gas to sweep out the methane, the losses caused by partial pressure are less than 0.3% that is, the error is less than the deviation of the most exact activity measurement known.

After terminating the conversion, the counter and the trap are partially evacuated, cooling interrupted and the methane expanded into the counter. The counter is completely filled, if necessary, with inactive methane to atmospheric pressure. With the aid of the two-way trap, combustion and hydrogenation can be performed alternately, thus the duration of a determination lasts 35-40 minutes. Decontamination of the counter in a gas stream takes 5 minutes.

For wet combustion, Van Slyke's reagent is used and the apparatus is connected to the combustion tube.

The effective volume of the counter and the probability of count in the volume of counter are determined by a standard preparation of known activity. For background determinations, the counters are filled with inactive methane. The background of the tubes without shielding was 50 cpm. Activity determinations carried out by dry combustion together with carbon determination are shown in Table 1, and by wet combustion in Table 2. The error of determinations is less than $\pm 0.3\%$ relative.

Activity measurement in the form of methane shows in addition a number of advantages. If the methane formed during conversion fills the counters to nearly atmospheric pressure, activity measurement can be carried out directly or otherwise the counters can be filled with inactive methane. Thus the working conditions of the counters are independent of gas volumes, up to volumes corresponding to their own. The methane formed in the conversion insures favourable counting characteristics by virtue of its high purity. The plateau of the counters extends over

Table 2. Results of the analysis of ^{14}C labelled organic compounds measured in form of methane- ^{14}C by wet combustion

Substance	Sample weight mg	Inactive benzoic acid mg	Specific activity, cpm		Deviation % rel.
			Found	Calc. ^a	
Benzoic acid	2.080	5.1	20 433	20 500	-0.33
	2.265	4.9	20 440	20 500	-0.30
Acetanilide	4.220	2.9	4 351	4 335	+0.40
	4.134	2.9	4 347	4 335	+0.28
Diacetyl-naphthylamine	3.757	3.0	28 430	28 600	-0.60
	3.691	3.0	28 445	28 600	-0.55
Acetone-dinitrophenyl-hydrazone . . .	3.517	4.9	13 162	13 110	+0.38
	3.864	5.0	13 150	13 110	+0.30

^a Mean value of series measurements on vacuum apparatus with proportional counter.

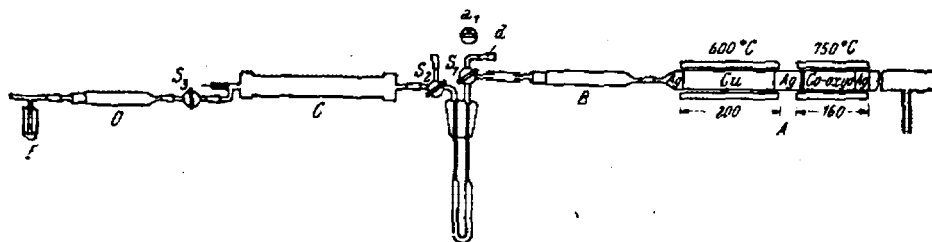


Figure 2. Analysis of radio-carbon in the form of carbon- ^{14}C dioxide
A: Combustion tube; B, D: Absorbers; C: Counters; E: Bubble counter

350 V with a slope of less than 1%/100 V. The working voltage of the counters is 2 700 V. A smaller counter volume brings about a reduced X-ray sensitivity and a shorter dead time. As methane is chemically inert, there is practically no memory effect after conversion.

RAPID ANALYSIS OF RADIO-CARBON IN THE FORM OF CARBON- ^{14}C DIOXIDE

For series determinations it seemed to be more expedient to measure the activity as carbon dioxide instead of methane. However, carbon dioxide shows rather unfavourable counting properties. Therefore, the counting of a carbon- ^{14}C dioxide and methane mixture is more convenient, but the partial pressure of carbon dioxide must not exceed 100-160 torr. This means that, for the activity measurement of equivalent quantities of labelled organic compounds, a counter volume about 5-10 times larger is necessary if the measurement is done as carbon- ^{14}C dioxide instead of as methane- ^{14}C . In spite of these disadvantages, carbon dioxide is frequently employed because

it can be filled directly into the counters after combustion.

In our experiments in contrast to others, the carbon dioxide is frozen out from the flushing nitrogen gas at atmospheric pressure. By employing catalysts of high oxidizing activity, it is possible to insure the combustion of organic compounds also in air [6].

Principle of the determination

The apparatus is shown in Fig. 2. The sample is weighed into a platinum boat, and combusted in air at a flow rate of 5 ml/min over a $\text{Co}^{\text{II-III}}$ oxide catalyst. When the combustion is completed, the rate is increased to 10 ml/min and the combustion tube flushed with nitrogen for 20 minutes. The excess of oxygen and nitrogen oxide is eliminated by copper. Water formed during combustion is quantitatively absorbed by an anhydron tube. The carbon dioxide is frozen out in the trap of the counter. After flushing, the counter and the trap are partially evacuated, carbon dioxide is expanded, and flushed quantitatively with methane into the sensitive volume of the counter. The

Table 3. Activity results of ^{14}C labelled organic compounds measured in form of $^{14}\text{CO}_2$

Substance	Sample weight mg	Specific activity	
		cpm/mg	$\mu\text{c}/\text{mg}$
Benzoic acid-7- ^{14}C	3 008	20 670	9.31
	4 150	20 608	9.28
Acetanilide-(acetyl-2- ^{14}C)	2 609	24 120	10.86
	3 516	24 188	10.90
Diethyl- α -naphthylamine-(acetyl-1- ^{14}C)	4 055	11 429	5.15
	4 330	11 370	5.12
Acetone-2- ^{14}C dinitrophenylhydrazone	3 190	12 700	5.72
	5 049	12 563	5.66
3-phenyl-oxazolid-2- ^{14}C -one	1 229	164 510	74.11
	2 001	164 000	73.87
DL-valine-1- ^{14}C	1 247	206 900	93.20
	2 831	206 845	93.17
DL-leucine-1- ^{14}C	1 750	176 820	79.65
	2 100	176 542	79.52
Glycine-1- ^{14}C	2 916	44 450	20.02
	3 280	44 570	20.07
DL-serylglycine-1- ^{14}C	1 941	88 500	39.87
	4 121	88 650	39.93

activity is measured in the proportional region. For wet combustion, Van Slyke's reagent is used and the apparatus is connected to the combustion tube. The error of determination is less than $\pm 0.3\%$ relative. Data are shown in Table 3. The background of the counters without shielding is 100 counts/min. The counting efficiency is about 96%. The plateau of the counter extends over 350 V with a slope of less than 0.5%/100 V. The working voltage is about 3 000 V, and memory effects do not arise.

By this method the usual quantitative carbon and hydrogen analysis can also be undertaken. If necessary, carbon dioxide from the counter can be completely flushed by nitrogen into an absorber and weighed gravimetrically. Similarly, the hydrogen can be analysed by measuring the anhydron tube.

DETERMINATION OF TRITIUM IN THE FORM OF ETHANE- ^3H

The advantages of gas-counting in the form of hydrocarbons are well known. Tritium incorporated into hydrocarbons is not subject to isotopic exchange. Activity measurements of tritium in the form of hydrocarbons have the drawback that the wet methods of water decomposition leading to the formation of hydrocarbons do not give quantitative yields. Incomplete reactions may cause isotopic fractionations. In our experiments, both the hydrogen atoms of a water molecule can be transferred into the hydrocarbon with quantitative yields.

Table 4. Activity results of ^3H labelled organic compounds measured in the form of ethane- ^3H

Sample weight mg	cpm	Memory effect rel. %	Specific activity cpm	Errors rel. %
3.079	37 590	2.6	13 840	-0.09
3.936	46 820	2.8	13 850	-0.01
3.992	47 667	2.9	13 910	+0.41
4.000	48 932	2.8	13 840	-0.09
5.181	61 645	2.6	13 820	-0.23
6.645	79 276	2.6	13 840	-0.09
6.990	83 400	2.9	13 900	+0.34
7.267	86 204	2.9	13 820	-0.23
7.609	90 500	2.9	13 860	+0.06
8.983	107 290	2.5	13 860	+0.06

Principle of the method

The labelled compound is combusted in a stream of oxygen over a platinum catalyst, and the resultant water is first frozen out, then reduced over zinc metal to hydrogen, which is then mixed with ethylene and catalytically reduced to ethane over a platinum catalyst.

The ethylene-ethane mixture is frozen out in a trap permanently connected to the counter and the activity of the gases is measured in the proportional region. The apparatus used is shown in Fig. 3. To reduce memory effects, the combustion tube, the reducer and the catalyst tube have been made entirely of quartz.

Activity values are related to sample weights and results are corrected for the memory effect of inactive combustions. A reproducibility of $\pm 0.3\%$ relative can be achieved, as shown in Table 4.

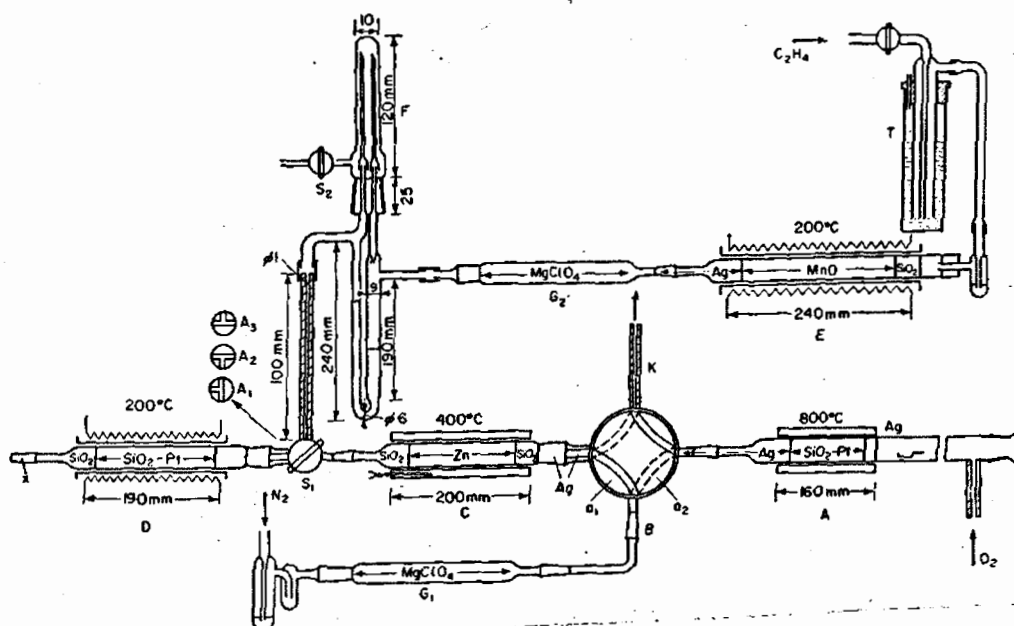


Figure 3. Determination of tritium

A: Combustion tube; B: Water trap; C: Reducer; D: Catalyst tube; T: Pressure regulator;
E: Ethylene purification tube; F: Gas flow regulator; G₁, G₂: Absorption tubes

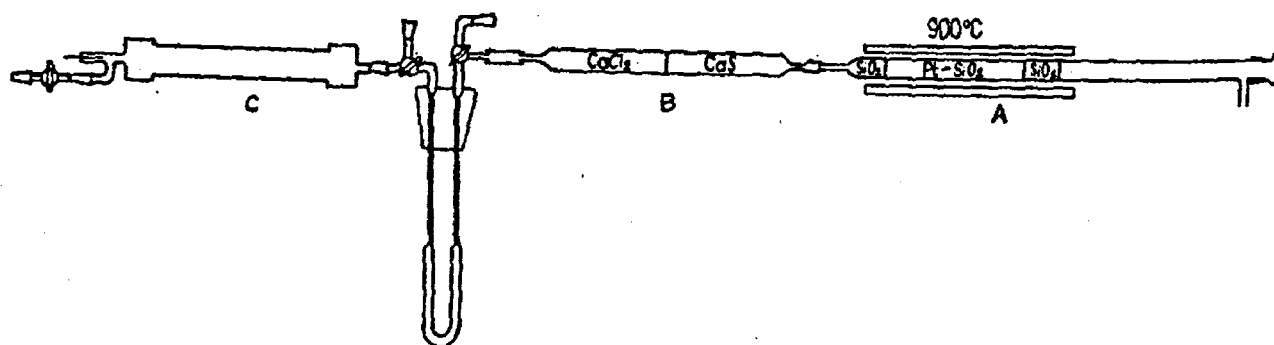


Figure 4. Analysis of radio-sulfur
A: Combustion tube; B: Reaction and absorption tube; C: Counter

The ethylene gas used for hydrogenation must be completely free from oxygen, otherwise water may form again on the surface of the platinum catalyst.

The ethane-ethylene mixture has satisfactory characteristics. The plateau is found to be about 850 V long with a slope of less than 0.3%/100 V and an operating voltage in the region of 3 600 V subject to fluctuation due to pressure differences. The background obtained was 140 cpm without shielding. The effective volume of the counter is 88%.

The occurrence of considerable memory effects seems to be an unavoidable sequel to tritium assays. According to data reported in the literature, the memory effect can not be eliminated from the apparatus. The mean value of a number of measurements showed a 2.8% memory effect. In each component of the apparatus the memory effect was determined separately, and the mean of 2.8% was found to be uniformly distributed between the combustion tube, the trap, the reducer and the catalyst tube, each being represented by 0.7%. No contamination was observed in the counter. The standard memory effect may be used as a correction factor allowing comparative measurements to be carried out by the combustion of radioactive compounds alone. Decontamination of the apparatus by combustions with unlabelled compounds must be performed, even if the results are evaluated without taking the memory effect into consideration.

By these methods, discussed so far, separate activity measurements of tritium and radio-carbon from double labelled organic compounds can also be achieved. In such cases, tritiated water and labelled carbon dioxide formed during combustion are separately frozen out in two successive traps cooled respectively with dry ice and liquid nitrogen. Their further transformation for measurement is carried out as described above.

ANALYSIS OF RADIO-SULFUR IN THE FORM OF HYDROGEN SULFIDE-³⁵S

For the analysis of radio-sulfur at atmospheric pressure, the counting of hydrogen sulfide in the proportional region has been chosen. Organic sulfur compounds can be transformed quantitatively into hydrogen sulfide by hydrogen gas over a platinum catalyst at 900 °C. Although hydrogen sulfide has rather less favourable counting characteristics than carbon dioxide, yet about 12% of the total volume may be filled into the counters as hydrogen sulfide without any loss in counting efficiency. The working voltage of the counters is about 3 000 V. The plateau extends over 400 V with a slope of less than 0.5%/100V.

As hydrogen sulfide can be filled quantitatively into the sensitive volume of the counter, counting efficiency as high as 96% can be obtained.

The apparatus employed for the analysis of radio-sulfur is shown in Fig. 4.

Principle of the determination

A platinum catalyst placed in a quartz combustion tube is heated to 900 °C in a flowing hydrogen atmosphere. The organic sulfur compound being measured is weighed into a small platinum boat, placed in the combustion tube, then pyrolysed in the hydrogen atmosphere at a flow rate of 5 ml/min. When the pyrolysis is complete the flow rate is increased to 10 ml/min and the hydrogen sulfide formed is frozen out by liquid nitrogen in the trap of the counter. Halogens, if present in the compound being analysed, can be removed in an absorber containing calcium hydrosulfide and calcium chloride. This absorber is placed between the combustion tube and counter. After flushing the system for 20 min with hydrogen, the counter and the trap are evacuated and the hydrogen sulfide expanded and flushed quantitatively with methane into the sensitive volume of the counter.

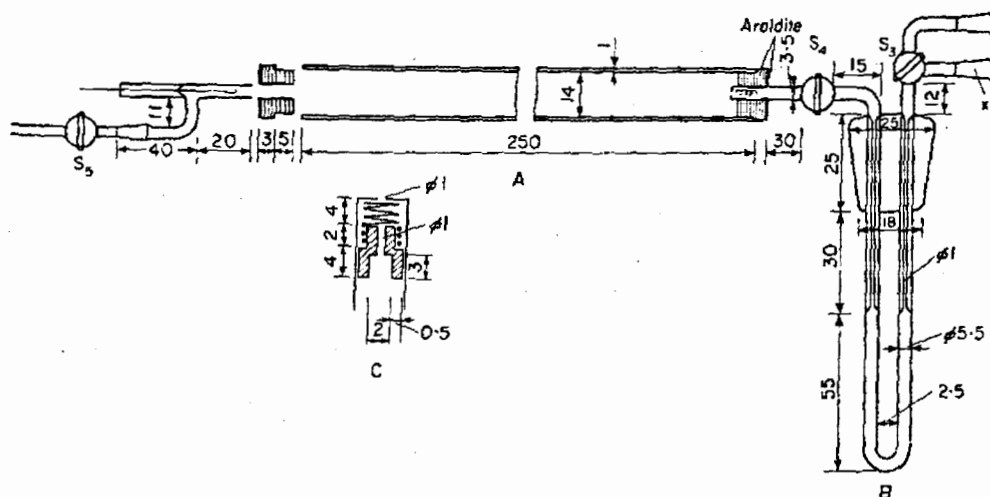


Figure 5. Gas counters
A: Counter; B: Trap; C: Spring support

Results are shown in Table 5. The error of determinations is less than $\pm 0.3\%$ relative.

GAS COUNTERS

For the analysis of soft β -emitting isotopes operating at atmospheric pressure, gases are frozen in a trap permanently connected to the counter (Fig. 5).

The cathodes of counters for the analysis of radio-carbon and tritium are polished brass and stainless steel cylinders, and polished aluminium for the analysis of radio-sulfur. The anodes consist of a tungsten wire of 15-80 μ diam connected by a short nickel wire to a thicker tungsten exit. The anode wire is kept under tension by a steel spring at its far end. The electrodes are insulated with Teflon or bakelite plugs. With Teflon insulation counters are connected mechanically; bakelite plugs are secured with Araldite. The

effective volume of the counters in the case of an analysis of radio-carbon in the form of methane is about 10 ml, but in the cases of $^{14}\text{CO}_2$, C_2H_6 - ^3H and H_2^{35}S , the effective volume is about 50 ml.

In the case of the measurement of $^{14}\text{CO}_2$ and H_2^{35}S , the filling gas is quantitatively swilled into the sensitive volume of the counter which gives about a 96-98% counting efficiency. However, in case of the measurement of methane- ^{14}C and ethane- ^3H and ethylene mixture, the filling gas is divided between the sensitive volume of the counter and the volume of the trap. Therefore, these counters are operating with a somewhat lower counting efficiency of 86-88%.

By comparing the absolute counting rate data with the counting rates of international standards, excellent agreements have been obtained.

The counters can easily be decontaminated by flushing with flowing gas over a time of about 5 minutes. No increase in background or other memory effects has been observed.

Table 5. Activity results of ^{35}S labelled methionine measured in form of H_2^{35}S

Sample weight mg	cpm	Specific activity cpm	Errors rel. %
3.823	42 540	11 130	-0.25
3.362	37 480	11 154	-0.03
3.865	43 130	11 168	+0.11
4.514	50 285	11 140	-0.16
3.510	39 130	11 149	-0.08
4.282 ^a	95 830	22 380	+0.049
4.130 ^a	92 260	22 349	-0.09
3.352 ^a	74 950	22 360	-0.04
3.861 ^a	86 480	22 400	+0.14
2.935 ^a	68 680	22 385	+0.07

^a Measured in the presence of added tribromo-aniline.

REFERENCES

- Bernstein, W., and Ballentine, R., *Rev. Sci. Instr.*, **21**, 158 (1950).
- Mlinko, S., and Szarvas, T., *Acta Chim. Acad. Sci. Hung.*, **33**, 107 (1962).
- Mlinko, S., Szarvas, T., and Hegede, B., *Mikrochim. Acta (Vienna)*, 139 (1963).
- Mlinko, S., and Szarvas, T., *Intern. J. of Appl. Rad. Isotopes*, **14**, 197 (1963).
- Mlinko, S., and Szarvas, T., to be published.
- Vecera, M., Snobl, D., and Synek, L., *Mikrochim. Acta (Vienna)*, 370 (1961).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/855 Hongrie

Méthodes en phase gazeuse
à la pression atmosphérique pour l'analyse
des isotopes émetteurs de bêtas mous

par S. Mlinko et T. Szervas

La mesure de la radioactivité des composés organiques marqués avec des isotopes émetteurs de β mous (^3H , ^{14}C , ^{35}S) s'effectue presque exclusivement par des méthodes de compteurs à gaz et/ou par scintillation en phase liquide. On obtient les résultats les plus exacts dans la région proportionnelle avec un compteur à gaz interne. Cependant le remplissage de ces compteurs nécessite des bancs à vide coûteux et compliqués.

Nous avons, dans notre laboratoire, essayé d'éviter les difficultés liées à la mesure traditionnelle des radionucléides de composés organiques marqués en mettant au point de nouvelles méthodes simples, utilisables à la pression atmosphérique exclusivement au lieu de nécessiter des bancs à vide. Ce résultat a été obtenu par l'adaptation de systèmes de compteurs appropriés aux méthodes de combustion classiques de l'analyse en microchimie organique. Pour obtenir une mesure très précise de l'activité, la méthode choisie doit répondre aux conditions suivantes:

a) Les radionucléides à analyser doivent être transformés en composés gazeux simples possédant des propriétés convenant au comptage proportionnel;

b) Les gaz comptés doivent être chimiquement inertes et leurs constituants radioactifs ne doivent pas donner lieu à des échanges isotopiques dans les conditions de la mesure;

c) Pour éviter des pertes d'activité par effet isotopique, ou des contaminations entre échantillons, il faut utiliser des réactions quantitatives pour toutes les transformations chimiques;

d) L'activité mesurée doit être rapportée à un poids donné des composés initiaux, et non pas au volume de gaz mesuré.

A partir de ces principes généraux, on a mis au point de nouvelles méthodes simples de dosage des radionucléides suivants:

- Tritium sous forme d'éthane- ^3H ;
- Carbone radioactif sous forme de gaz carbonique- ^{14}C et/ou de méthane- ^{14}C ;
- Soufre radioactif sous forme d'hydrogène sulfuré- ^{35}S .

Ces analyses ne nécessitent qu'une certaine pratique de la microanalyse organique.

Dans toutes ces méthodes les gaz à mesurer sont condensés dans un petit piège incorporé au compteur. Le volume efficace des compteurs est de 50 ml environ.

Pour la mesure de $^{14}\text{CO}_2$ et/ou de H_2^{35}S , le gaz de remplissage est quantitativement transféré dans le volume sensible du compteur, donnant un rendement de comptage de 96 à 98%. Cependant, pour la mesure de méthane- ^{14}C et/ou de mélange éthane- ^3H -éthylène, le gaz de remplissage est distribué entre le volume sensible du compteur et le volume du piège. Les compteurs ont donc alors un rendement de comptage un peu plus faible (environ 86-88%). Dans tous les cas, on a obtenu d'excellentes courbes caractéristiques. L'erreur de reproductibilité est inférieure à $\pm 0,5\%$.

Des mesures absolues peuvent aussi être faites avec des compteurs de construction appropriée.

Les compteurs peuvent facilement être décontaminés par balayage avec un gaz pendant 5 minutes environ. On n'a pas observé d'augmentation du mouvement propre ni d'effet de mémoire.

D'autres détails sur cette technique de comptage sont donnés dans le mémoire.

A/855 Венгрия

Анализ мягких β -излучающих изотопов в газовой фазе при атмосферном давлении

Ш. Млинко, Т. Сарваш

В настоящее время для измерения радиоактивности органических соединений, меченных мягкими β -излучающими изотопами (^3H , ^{14}C , ^{35}S), применяются почти исключительно метод газовой фазы и сцинтилляционный метод. Самый точный анализ ведется с помощью пропорциональных счетчиков с внутренним наполнением. Однако для наполнения счетчика такого типа необходимо иметь сложную и дорогую вакуумную систему.

В лаборатории авторов проведена работа по устранению трудностей, возникающих при классических анализах меченых органических

соединений, и разработаны новые простые методы, которые можно использовать при атмосферном давлении без сложных вакуумных систем. Это удалось осуществить, применяя специально сконструированные приставки со счетчиками для классического окислительного метода микроанализа органических веществ. Для точных измерений активностей метод должен удовлетворять следующим требованиям:

a) необходимо анализировать радиоактивный изотоп переводя в газообразное соединение, которое обладает благоприятными параметрами для использования в пропорциональных счетчиках;

b) газ должен быть химически инертным и между радиоактивными компонентами не должен происходить изотопный обмен;

c) во избежание любого уменьшения активностей связанных с изотопным обменом или взаимным загрязнением образцов, все химические реакции должны протекать между веществами, взятыми в значительных количествах;

d) результаты измерений активности должны сравниваться с первоначальным весом веществ, а не с измеренным объемом газа.

С учетом этих общих принципов были разработаны новые простые методы для количественных определений следующих изотопов:

для определения трития H^3 , входящего в состав этана;

для определения радиоактивного углерода C^{14} , входящего в состав двуокиси углерода или метана;

для определения радиоактивной серы S^{35} , входящей в состав сульфида водорода.

Проведение анализа требует всего лишь небольшого опыта в микроаналитике.

Во всех вышеуказанных методах газ, активность которого необходимо измерить, вымораживается в небольшой ловушке, присоединенной к счетчику. Эффективный объем счетчика составляет около 50 мл.

При анализе $C^{14}O_2$ и H_2S^{35} все количество газа вводится в измерительный объем счетчика, что позволяет получить эффективность, равную 96—98%. При анализе метана- C^{14} , этана- H^3 и смеси этилена газ распределен между измерительным объемом счетчика и объемом ловушки. Поэтому эффективность этих счетчиков составляет около 86—88%, то есть несколько хуже эффективности указанных выше счетчиков. Все счетчики имеют хорошие характеристики. Точность воспроизводимости измерений оказалась лучше $\pm 0,5\%$. С помощью специально изготовленных счетчиков можно было определить и абсолютную активность меченых органических соединений.

Загрязнение счетчиков легко удаляется продуванием газа в течение 5 мин. Никакого повышения фона или других «эффектов памяти» не наблюдалось.

Обсуждаются детали, касающиеся измерительной техники.

Métodos de análisis de radioisótopos emisores de radiación beta blanda en fase gaseosa, a presión atmosférica

por S. Mlinko y T. Szarvas

Para la medida de la radiactividad de compuestos orgánicos marcados con radioisótopos emisores de radiación β blanda (3H , ^{14}C , ^{35}S) se utilizan en la actualidad, casi de modo exclusivo, métodos de recuento de gases y de centelleo de líquidos. El análisis más exacto puede realizarse en la región de proporcionalidad con ayuda de un contador interno para gases. Sin embargo, el llenado de tales contadores necesita la utilización de sistemas de vacío molestos y costosos.

En nuestro laboratorio se ha tratado de resolver estas dificultades que acompañan el análisis clásico de radionúclidos de compuestos orgánicos marcados, mediante la elaboración de nuevos métodos sencillos que funcionan únicamente a presión atmosférica en lugar de utilizar vacío. Este objetivo podría conseguirse adaptando a los métodos clásicos de combustión para el análisis orgánico microquímico equipos de contadores convenientemente contruidos. Para obtener resultados de gran precisión en la medida de la actividad, el método debe reunir las siguientes condiciones:

a) Los radionúclidos a analizar tienen que transformarse en compuestos gaseosos sencillos con propiedades adecuadas al recuento de tipo proporcional;

b) Los gases que se van a contar tienen que ser químicamente inactivos y sus constituyentes radiactivos estar exentos de intercambio isotópico en las condiciones empleadas;

c) Pueden utilizarse procesos cuantitativos para todas las transformaciones químicas para evitar cualquier pérdida de actividad por efectos isotópicos o cruce de contaminación entre las muestras;

d) Los resultados de la medición de la actividad tienen que referirse a cantidades en peso de los compuestos orgánicos en lugar de medir el volumen gaseoso.

Basándose en estos principios generales se han desarrollado métodos sencillos y nuevos para la determinación cuantitativa de:

tritio en forma de etano- 3H

radiocarbono en forma de dióxido de carbono- ^{14}C o metano- ^{14}C

radioazufre en forma de sulfuro de hidrógeno- ^{35}S

La realización de los análisis requiere únicamente cierta práctica en microanálisis orgánico.

En todos estos procesos los gases a medir se con-

densan en un pequeño depósito convenientemente fijado e incorporado al contador. El volumen eficaz de los contadores es de unos 50 ml.

Para la medición de $^{14}\text{CO}_2$ o $^{35}\text{SH}_2$, el gas de llenado se hace pasar cuantitativamente al volumen sensible del contador, lo cual permite una eficacia de recuento de 96-98%. Sin embargo, en el caso de medir metano- ^{14}C o mezcla de etano- ^3H -etileno, el gas de llenado se distribuye entre el volumen sensible del contador y el volumen del depósito-trampa. Por consiguiente, estos contadores funcionan con una eficacia de recuento algo más baja (de 86-88%). En todos

los casos pueden obtenerse excelentes curvas características. El error relativo de reproducción de las medidas fue menor que $\pm 0,5\%$.

Pueden conseguirse también valores absolutos de la velocidad de recuento con contadores de construcción apropiada.

La descontaminación de los contadores puede realizarse fácilmente por lavado con corriente de gas durante unos 5 minutos. No se ha observado ningún aumento del fondo ni otros «efectos de memoria».

Se examinan también otros detalles de nuestra técnica de medición.

Biological disposition of anti-bilharzial antimony drugs: Estimation of antimony in body fluids and parasites by activation analysis

By A. A. Abdel-Rassoul,* M. F. Abdel-Wahab,* A. R. Schulert,** H. G. Browne**
and M. M. Mansour**^a

Bilharziasis represents a major medical problem in Egypt; the great majority of farmers living in the Nile valley and Delta region are infected with the Schistosome parasite. The current treatment of choice for bilharziasis is a series of injections with antimony drugs, the most common being potassium antimony tartrate (tartar emetic), others being sodium antimony dimercaptosuccinate (Astiban) and antimony gluconate (Triostam). It is generally agreed that the administration of antimony, which after all is a heavy metal poison, is not ideal. It can be demonstrated that a portion of the antimony so administered remains in the body for a long period of time; traces undoubtedly remain for years. However, non-antimonials, though many are under investigation and some show promise, have heretofore not proved to have the effectiveness of the antimony preparations.

Because of the prevalence of this disease in Egypt, and the fundamental toxicity of the heavy metal antimony, it is particularly important to elucidate the biological fate of such antimony administered therapeutically. It is axiomatic that for any treatment for parasites the aim is to eradicate the offending organism with the least possible damage or toxic reaction to the patient. This seems particularly *à propos* in the case of a heavy metal in which a residue will remain in the body for a long period of time. To take the axiom a step further, we would like to get the maximum concentration of antimony in the parasite with the minimum possible concentration in the patient.

With such considerations in mind the present work on a sensitive assay procedure for use in biological investigations, particularly in patients, has been initiated.

* Atomic Energy Establishment, Inshas.

** U.S. Naval Medical Research Unit No. 3, Cairo.

^a This paper represents work done by M. M. Mansour in partial fulfillment of the degree of Master of Science in the Department of Chemistry, American University in Cairo.

HISTORICAL BACKGROUND

Hassan [1] in 1938 gave a broad picture of the biological distribution of antimony when he administered sodium antimony *bis*-pyrocatechol-3:5 disulfonate to dogs and monkeys. He found that after repeated intramuscular injections, the liver had the highest antimony concentration of any organ, being five times that of the kidney, and over ten times greater than that of any other organ. He noted that in patients 10% of the antimony was excreted in 24 hours, and this was slightly reduced in patients with disturbed kidney functions.

Barter *et al.* [2] in 1947 using ¹²⁴Sb labelled tartar emetic found 12% of the administered antimony estimated in 24 hours, 30% in a week and about 75% in four weeks. They noted that of the amount excreted, following an intravenous injection, 80% is eliminated via the kidney and 20% via the gastrointestinal tract.

Fairley [3] reported that trivalent antimony compounds have a higher affinity for red blood cells than pentavalent compounds and suggests that since the schistosomes normally feed on blood corpuscles, the affinity of the trivalent compounds for the red cells explains the therapeutic superiority of the trivalent over the pentavalent compounds in the treatment of bilharziasis. Otto *et al.* [4] also noted the affinity of red blood cells for trivalent antimony.

Goodwin and Page [5] in 1943 using a number of antimony compounds, noted that excretion by mice in 24 hours of the trivalent ion was about 25%, whereas for the pentavalent ion it was about 75%.

One of the few early reports dealing with the antimony uptake in parasites is that of Brady *et al.* [6]. These investigators, using radioactive tartar emetic in dogs infected with *Dirrofilaria immitis*, found that the concentration of antimony in the adult parasite after administration of the drug was greater than in any tissue except liver and thyroid.

Using ¹²⁴Sb labelled "Astiban", Browne and Schulert [7] studied the antimony disposition in infected

hamsters, including the parasites, noting that the female *Schistosoma mansoni* worm had approximately the same concentration of antimony as the hamster liver while the male worm had somewhat less. The ova, however, were found to have about ten times the antimony concentration of that in the female worm. Schulert, Browne, and Salem [8] conducted studies in patients infected with *S. hematobium* also noting the very high concentration of antimony in ova excreted in the urine.

Clearly the use of radioactively labelled drugs are useful and ideal in animal experimentation where radiation to the organism is of no concern. However, the use in patients is much more restrictive, as the above report illustrates, due to the fact that the permissible radiation to the patient is strictly limited. Thus Schulert, Browne, and Salem were able to assay the antimony-124 in blood of patients over 24 hours and also that in the excreted ova. However, in order to assay the excreted ova over the course of a week, it was necessary to pool the excreted ova from 24 h urine collections from several patients.

Thus, as will be noted subsequently, the neutron-activation assay is exceedingly more sensitive for use in patient studies, and indeed involves no radiation to the patient whatsoever. The neutron activation assay procedure has the further advantage that it can be used for any antimonial compound including those that are not readily available in a radioactive form.

EXPERIMENTAL

The biological samples assayed include plasma, red blood cells, urine, and excreted *S. hematobium* ova from patients. *S. mansoni* ova, as well as male and female worms from infected hamsters have also been assayed. The *Schistosoma* ova are collected by the method of Browne and Thomas [9], whereas the worms from infected hamsters were isolated by a modification of the technique reported by Yolles *et al.* [10].

Preparation of samples for irradiation

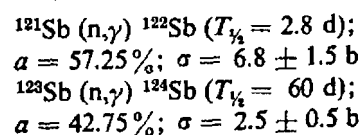
The samples of plasma, red blood cells, and urine were carefully ashed in platinum crucibles in a muffle furnace, before being wrapped in thin aluminum sheets and ready for pile irradiation. The purified samples of parasites investigated, on the other hand, were placed between two layers of 250 mg portions of magnesia of A. R. purity in thin aluminum tubes (of about 4 mm diameter) left open at one end. The samples were then dried at 110 °C for a prolonged period, kept overnight in an efficient vacuum dessicator before being tightly closed at both ends and ready for irradiation. In such a case, blank duplicates of magnesia are also irradiated and subsequently analyzed for antimony.

Suitable samples of reagent grade Sb_2O_3 are similarly packed in aluminum and used as reference standard for analysis.

Both the samples and antimony standards were irradiated under identical conditions in the UA-RR-1, 2MW research reactor at Inshas for 48 hours with a neutron flux of approximately 1.3×10^{13} n/cm²s. For convenience in handling, the samples irradiated are left to cool 7-10 days before being subjected to any treatment to allow for the decay of the short-lived extraneous activities, particularly ^{24}Na ($T_{1/2} = 15$ h) induced in both the aluminum and magnesia used.

Processing of irradiated samples

The radioisotopes of antimony induced in neutron-irradiated samples containing antimony are the result of the following nuclear reactions:



The determinations are therefore carried out on the bases of both ^{122}Sb and ^{124}Sb activities. From the various methods so far reported for the determination of antimony by activation analysis, the technique recently proposed by Love [11] for the separation of antimony activities from fission products has been used with some modification for the kind of samples analyzed. The apparatus used (Fig. 1) is set up in a suitably shielded and well ventilated fume hood.

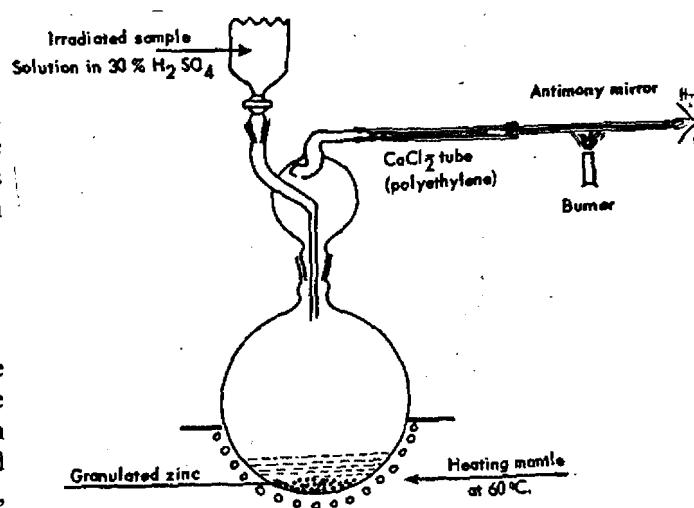


Figure 1. Apparatus for antimony determination in biological samples

Each of the irradiated samples is weighed and then brought to a homogeneous solution with suitable weights of Sb_2O_3 carrier by careful heating with 3 ml concentrated sulfuric acid in the presence of 1 g of potassium pyrosulfate. It is then cooled and subsequently diluted to 30% H_2SO_4 . The sample solution

is dropped gradually onto finely divided zinc (40 mesh) previously heated to about 100 °C in the reaction flask. The SbH_3 together with the H_2 formed are allowed to pass through a CaCl_2 drying tube and then through a quartz (or pyrex) tube of small diameter. The SbH_3 is readily converted to antimony metal deposited as a mirror on the cool portion of the glass tube. The exhaust gases are ignited and the resulting oxidation product removed by careful suction.

The metal deposited is dissolved with warm sulfuric acid and subjected to activity measurements.

The chemical yield of antimony separated was determined colorimetrically by the iodide method [12].

Calibration of the method

A calibration curve showing the reproducibility and sensitivity of this method (Fig. 2) was determined by adding different concentrations of antimony in the

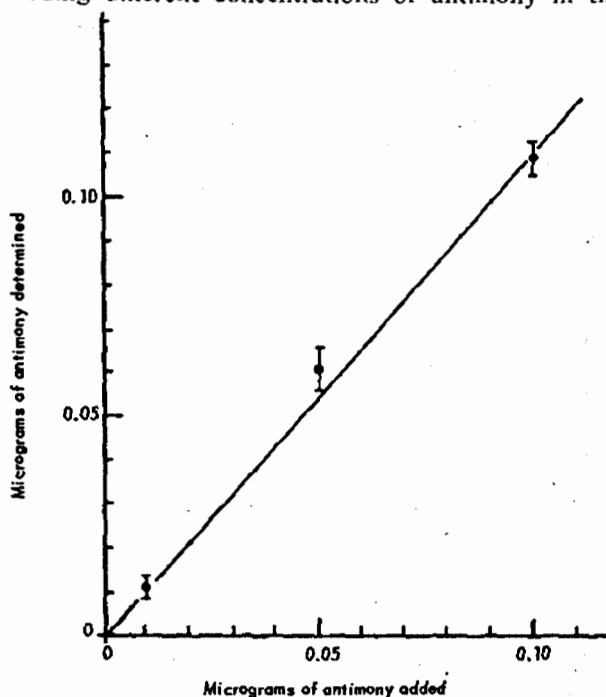


Figure 2. Reproducibility of neutron-activation assay

range between 0.005 and 0.1 μg antimony to equal samples of human blood and urine, together with blank of each and determining the antimony by the techniques described. As currently used, this technique can assay 0.005 μg antimony in the biological ash and ova samples investigated with an accuracy of $\pm 10\%$.

DISCUSSION

As noted earlier, a principal advantage of the neutron-activation assay is gained in its use in human investigations in which radioactive tracer studies are limited by the accompanying radiation to the patient. In investigational studies using radioisotopes in patients

it is desirable to stay within the maximum permissible concentration as stated by the International Committee on Radiation Protection. For ^{124}Sb this value is 10 μc to the whole body or approximately 0.2 $\mu\text{c}/\text{kg}$. This means that whatever the quantity of antimony administered to the patient it will be labelled with a maximum of 0.2 $\mu\text{c}/\text{kg}$.

Using a Nuclear Chicago model 132A counter with a well-type sodium iodide crystal detector, the limit of assay is about 30 disintegrations per minute or $1.4 \times 10^{-5} \mu\text{c}$. (This is about 10 counts per minute since counting efficiency is approximately 35 per cent.) With more refined low-level counting equipment, the detection limit could be improved to much less than 10 counts per minute; this same improvement would accrue as well in the neutron-activation procedure, since this also ultimately involves counting the separated antimony. In other words the relative sensitivities of the two procedures will not be changed by a more sensitive counter. The same value of 10 counts per minute is used in establishing the sensitivity for the neutron activation procedure at 0.005 μg .

With this information we can now readily compare the relative sensitivities of neutron activation assay and radiotracer assay for investigations in man as follows:

$$\text{Relative sensitivity} \frac{\text{Tracer assay}}{\text{NA assay}} = \frac{\mu\text{g Sb represented by } 1.4 \times 10^{-5} \mu\text{c}}{0.005}$$

A normal therapeutic dose of "Astiban" is 8 mg/kg, i.e., 2 mg antimony per kg. Thus 0.2 μc represents 2 mg antimony or $1.4 \times 10^{-5} \mu\text{c}$ equals 0.14 μg and the equation above becomes:

$$\text{Relative sensitivity} \frac{\text{Tracer assay}}{\text{NA assay}} = \frac{0.14}{0.005} = 28.$$

The samples shown in Table 1 are from patients who received only 3.1 mg/kg of Astiban, with a similar radioactive dose. In this case the relative sensitivity factor is 11. This dose is approximately equivalent in antimony to a single injection of tartar emetic in a therapeutic course of treatment.

In the foregoing examples, a single dose of Astiban or tartar emetic is considered rather than a full therapeutic course. A full therapeutic course of Astiban is 5 injections at the 8 mg/kg level, i.e., the total dose is 40 mg/kg Astiban or 10 mg/kg of antimony. If we wish to follow the entire long-term disposition of this therapeutic course, as is currently underway, and were to do this using ^{124}Sb , the same 0.2 $\mu\text{c}/\text{kg}$ represents the total 10 mg of antimony. (In this case each dose would be 0.04 $\mu\text{c}/\text{kg}$.) Under these conditions it is readily seen that the relative sensitivity factor between the two methods is 140.

Table 1. Assay of antimony in the blood of a patient who received 3.1 mg/kg Astiban

Sample	Time after dose	Ash weight mg	Antimony activity ^a			$\mu\text{g Sb per g ash}^b$	per cent ash	$\mu\text{g Sb per g wet weight}$
			Recovered	Total	per g ash			
Plasma	24 h	13.8	174	1 200	17 391	7.08	1.19	0.0845
Plasma	48 h	45.3	163	950	4 194	1.71	1.08	0.0185
Plasma	9 d	26.4	140	700	5 303	2.16	1.17	0.0225
RBC	24 h	22.8	636	3 600	31 754	12.94	1.13	0.1465
RBC	48 h	27.4	576	3 630	26 500	10.80	0.98	0.1060
RBC	9 d	28.6	340	1 700	11 880	4.84	1.19	0.0575

^a The activity of all samples is measured under the same geometrical conditions and expressed in cpm.

^b The amount of antimony per g ash analyzed is calculated on the basis of antimony activity in the standard used, namely: 0.432 μg of antimony compound correspond to 5 300 cpm.

Table 2. Assay of antimony in ova and worms from infected hamsters given 135 mg/kg Astiban

Sample	Time after dose	Number of ova or worms	Antimony activity		$\mu\text{g Sb}^a$ Total	$\mu\text{g Sb}$ per single ovum or worm $\times 10^{-1}$
			Found	Total		
Mature ova from liver	2 h	4 300	700	22 895	1.36	3.15
Immature ova from intestine	2 h	34 500	5 950	49 055	3.00	8.50
Mature ova from intestine	2 h	49 500	8 170	52 905	3.21	6.45
Mixture of ova from intestine	2 h	20 000	1 600	19 215	1.14	5.70
Mature ova from liver	24 h	56 700	1 630	70 700	4.30	7.55
Immature ova from intestine	24 h	20 700	2 910	23 000	1.36	6.55
Mature ova from intestine	24 h	68 500	7 620	50 235	3.05	4.40
Mixture of ova from intestine	24 h	21 000	2 610	18 250	1.08	5.10
Male worms	24 h	65	860	5 960	0.31	480
Female worms	24 h	125	445	6 360	0.34	280

^a The amount of antimony analyzed in each case is calculated on the basis of the antimony activity in the standard used, namely: 0.481 $\mu\text{g Sb}$ correspond to 7 800 cpm.

As seen from the data in Tables 1 and 2, the method as currently used permits an easy assay of red blood cells and plasma from patients 9 days after a single dose of Astiban as well as the assay of antimony in Schistosome worms and ova. In all cases the activity of the antimony counted is well above 100 counts per minute, i.e., the sensitivity limit has not been nearly approached. However, should the experimental situation so require, the sensitivity could be still further increased by a considerable factor through minor modifications in the procedure.

It is noted that antimony recovered after addition of the carrier averages about 15 per cent. Using this procedure gives us a very clean antimony sample. However, were it necessary, this recovery could readily be increased by a factor of 4 to 5.

Furthermore, the sensitivity could be increased merely by employing a longer irradiation period or by processing the samples more quickly after irradiation is completed. As noted the conditions thus far employed have been to irradiate for 2 days and allow samples to cool 7 to 10 days. Under these conditions the ^{122}Sb activity is approximately 3 to 6% of its maximum limit and the ^{124}Sb about 2% of its maximum. Thus

another factor of 5 to 10 could easily be obtained here, although the concomitant radioactivity from other sources would make handling of the samples less convenient and would require further recourse to remote control manipulation in the processing.

Clearly none of the above measures were necessary in investigations conducted thus far, since the sensitivity is abundantly adequate for all types of samples heretofore assayed.

ACKNOWLEDGEMENTS

This report is the first arising from a co-operative research programme between the UAR Atomic Energy Establishment (AEE) and the US Naval Medical Research Unit No. 3 (NAMRU-3). The authors are most grateful for the encouragement and support given by S. A. El-Khashab, Secretary-General, AEE, and J. H. Boyers, Director, NAMRU-3.

The authors further appreciate the kindness of Hoffmann-La Roche Ltd., Basel (Switzerland) for supplying the Astiban used and Chemical Industries Development Laboratories, Cairo for supplying the tartar emetic.

The work was assisted by A. Abdel-Aziz of AEE and Zoheir Farid, Nabil Girgis, and Richard Koshakji of NAMRU-3.

This research was supported in part by PL-480 funds from the US National Institutes of Health.

The opinions and assertions contained herein are the private ones of the authors and are not to be construed as official, reflecting the views of the Navy Department or the naval service at large.

REFERENCES

1. Hassan, A., *J. Egypt. Med. Assoc.*, 21, 123-130 (1938).
2. Bartter, F. C., Cowie, D. B., Most, H., Ness, A. T., and Forbush, S., *Am. J. Trop. Med. Hyg.*, 27, 403-416 (1947).
3. Fairely, N. H., *Trans. Roy. Soc. Trop. Med. Hyg.*, 45, 279 (1951).
4. Otto, G. F., Jachowski, L. A., and Wharton, J. D., *Am. J. Trop. Med. Hyg.*, 2, 495-516 (1953).
5. Goodwin, L. G., and Page, J. E., *Biochem. J.*, 37, 198-209 (1943).
6. Brady, F. J., Lawton, A. H., Cowie, D. B., Andrews, H. L., Ness, A. T., and Ogden, G. E., *Am. J. Trop. Med. Hyg.*, 25, 103 (1945).
7. Schulert, A. R., Browne, H. G., and Salem, H. H., *Trans. Roy. Soc. Trop. Med. Hyg.*, 58, 48-52 (1964).
8. Browne, H. G., and Schulert, A. R., *Am. J. Trop. Med. Hyg.* (1964), in press.
9. Browne, H. G., and Thomas, J. I., *J. Parasitol.*, 49, 371-374 (1963).
10. Yolles, T. K., Moore, D. V., Degiusti, D. L., Ripsom, C. A., and Meleney, H. D., *J. Parasitol.*, 33, 419-426 (1947).
11. Love, D. L., National Academy of Science, report NAS-NS 3033, p. 37 (1961).
12. Sandell, E. B., *Colorimetric determination of trace metals*, 3rd ed., p. 266, Interscience Publishers Ltd., London (1959).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/841 République arabe unie

A/841 OAP

Le sort biologique des médicaments à base d'antimoine employés contre la bilharziose: détermination de l'antimoine dans les fluides du corps et les parasites par l'analyse par activation

par A. A. Abdel-Rassoul *et al.*

Une méthode d'activation neutronique a été appliquée pour déterminer l'antimoine dans les fluides du corps et dans les parasites du genre schistosome. Après irradiation simultanée d'étalons d'antimoine et de spécimens biologiques calcinés, les échantillons sont dissous, de l'entraîneur est ajouté, et une portion de l'antimoine est isolée et déterminée avec un détecteur à scintillation. Le pourcentage de récupération est contrôlé par analyse chimique.

La méthode peut déceler jusqu'à 0,005 µg de Sb avec une sensibilité de ±10%. Cette précision est environ 30 fois plus grande que celle obtenue dans les études sur le corps humain à l'aide de produits marqués par ¹²⁴Sb. Si nécessaire, une sensibilité plus grande peut être obtenue.

Биологическое распределение сурьмо-содержащих лекарств от билгарциоза: определение сурьмы в жидкостях тела и паразитах методом активационного анализа

A. A. Абдель-Рассул *et al.*

Для определения сурьмы в жидкостях тела и в паразитах Schistosome был использован нейтронный активационный анализ. После одновременного облучения стандартных образцов сурьмы и озоленных биологических образцов, образцы растворяют, добавляют носитель, выделяют часть сурьмы и анализируют сцинтилляционным счетчиком. Процентное содержание извлеченной сурьмы контролируют с помощью химического анализа.

Этот метод позволяет определить 0,005 мкг сурьмы с точностью ±10%. Такая чувствительность примерно в 30 раз больше, чем достижимая в исследованиях, в которых используются меченные ¹²⁴Sb вещества. Возможны, если это необходимо, дальнейшие значительные увеличения чувствительности.

A/841 República Árabe Unida

Distribución biológica de los medicamentos antimoniales anti-bilaziosicos: Determinación del antimonio en los líquidos orgánicos y en los parásitos mediante el análisis por activación por A. A. Abdel-Rassoul et al.

Se aplica el análisis por activación con neutrones a la determinación del antimonio en los líquidos orgánicos y en los parásitos Schistosoma. Después de la irradiación simultánea de un patrón de antimonio y

de una muestra de cenizas de materia biológica, se disuelven las muestras, se agrega un portador, y se separa y determina una parte del antimonio con un contador de centelleo. El porcentaje de recuperación se determina por análisis químico.

El procedimiento permite determinar 0,005 μg de antimonio con una precisión de $\pm 10\%$. Esta sensibilidad es unas 30 veces mayor que la obtenida en estudios de distribución en el hombre utilizando sustancias que contienen ^{124}Sb marcado. Si fuese necesario, se puede aumentar la sensibilidad de manera bastante apreciable.

The effect of liming on the availability of phosphate in "cerrado" soils of Brazil*

By E. Malavolta, O.J. Crocomo and R. G. Andrade**

It is well known that the so-called "cerrado" soils represent approximately 25 per cent of the total surface of Brazil, which is 8.5 million square kilometers. "Cerrado" soils are usually very sandy, low in organic matter, very acid, with poor exchange capacity. The concentrations of bases in these soils are, as a rule, so low that routine methods of analysis fail to estimate the proportion in which they are present. In many cases "cerrado" soils show very good topographic conditions, being crossed by highways and located very close to large centers of consumption. The interest in their agricultural utilization is therefore easy to understand. For several years, it was thought that lack of water would be the limiting factor in growing cash and forage crops in "cerrado" soils; Ferri [8] has, however, demonstrated that this is not the case. Alvim and Araujo [1] put forward the hypothesis that mineral deficiencies were mainly responsible for the presence of characteristic plant species in these soils. Lack of plant food was, therefore, the limiting factor for growing crops of economic interest. Arens [2, 3] presented another hypothesis suggesting that plant species growing naturally in "cerrado" soils show a considerable degree of adaptation to the prevailing conditions, in so far as the lack of certain macro and micronutrients is concerned.

REVIEW OF THE LITERATURE

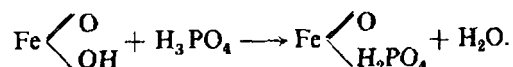
Several field trials carried out in "cerrado" soils [5, 7] have shown quite conclusively the possibility of growing cash and forage crops thereon, so long as limestone and/or phosphatic fertilizers are used. In certain areas the need for micronutrients such as zinc and boron was also indicated. As a rule, however, responses to liming and to phosphatic fertilizers are the most outstanding.

* With the aid of the Fundação de Amparo à Pesquisa and of the Rockefeller Foundation.

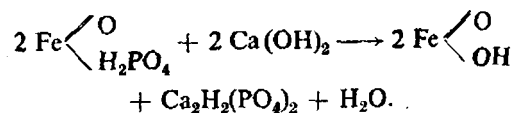
** Centro Nacional de Energia Nuclear na Agricultura, Escola Superior de Agricultura Luiz de Queiroz, University of São Paulo, Piracicaba, São Paulo.

The interaction between liming and phosphatic fertilizers was observed by Freitas *et al.* [7] in field trials carried out both in Pirassununga and Orlandia, counties of the State of São Paulo. In the first region, when the pH was raised from 4.9 to 6.0, yields in the presence of added phosphate were also raised. In Orlandia County, however, liming did not affect the response to phosphatic fertilizers.

The effect of added limestone on soil phosphorus availability is a well-known subject [12]. It is believed that in acid soils the following reaction between phosphate ions and hydrous iron oxide takes place:



Liming would set free the phosphate ion through the reaction:



In acid soils a high proportion of the natural phosphorus is alkali-soluble; this suggests that iron and aluminium phosphates are the prevailing forms of occurrence [9, 10]. So long as the soil reserve is sufficiently high, the use of limestone would cause the liberation of phosphate ions in such quantities as to obviate the need for phosphatic fertilization.

Several approaches have been tried to study the effect of liming on the availability of natural phosphorus. Mention should be made in the first place of field experiments in which the response to phosphorus was studied in the presence and in the absence of previously added limestone wherein the chemical analysis of plants gives useful information. Under laboratory conditions this subject has been studied in several ways. One way consists of determining the amount of phosphorus remaining in solution, not necessarily in equilibrium, when soil samples are left in contact with a solution containing phosphate [4].

According to Fried and Dean [6], the method of isotopic dilution permits the determination of the

quantity of available phosphorus in soils. To do so the following equation is used:

$$A = \frac{B(1-y)}{y}$$

wherein A = amount of available phosphorus in the soil

B = amount of applied phosphorus

y = proportion of plant phosphorus derived from source B .

It follows, therefore, that so long as liming raises the level of available phosphorus, the A value of a treated soil should be higher than that found in the one unlimed. The aim of this paper was to check the correctness of this hypothesis by using "cerrado" soils previously submitted to different doses of limestone under field conditions.

MATERIAL AND METHODS

The most important chemical characteristics of the soils studied in this paper, appear in Table 1. The analyses were carried out before limestone was applied.

Table 1. Chemical characteristics of "cerrado" soils used in this work

Region	pH	Organic matter %	Exchangeable, ions, eq. mg/100 g			
			Ca ⁺²	Mg ⁺²	K ⁺	PO ₄ ⁻³
Orlândia	4.9	2.57	0.35	0.03	0.04	2.21
Matão	4.9	0.86	0.35	0.03	0.04	0.15
Pirassununga	4.9	0.63	0.16	0.03	0.03	0.03

In 1960, several doses of limestone were applied on plots installed in the three regions under study [7]. This caused changes in pH, as shown in Table 2.

A values were determined with aid of rice seedlings, to which a solution of $\text{KH}_2^{32}\text{PO}_4$ and soil samples were provided as sources of phosphorus; the technique of Menard and Malavolta [11] was used.

Table 2. pH of the soil samples used in this work

Region	Limestone applied, tons/hectare	pH
Orlândia	0.0	5.0
	2.0	5.1
	4.0	5.5
	8.0	5.7
Pirassununga	0.0	4.9
	0.5	—
	1.0	5.5
	2.0	—
Matão	0.0	4.9
	1.0	—
	2.0	—
	4.0	5.2

Table 3. Mean results, average of two replicates, of A values as a function of locality and dose of limestone applied

Region	Limestone applied, tons/hectare	A value, mg P/100 g	Least significant difference for A values 5% level
Orlândia	0.0	24.2	4.0
	2.0	28.0	
	4.0	41.6	
	8.0	34.3	
Pirassununga	0.0	12.2	12.2
	0.5	13.5	
	1.0	20.0	
	2.0	39.8	
Matão	0.0	11.2	10.0
	1.0	14.6	
	2.0	16.4	
	4.0	18.2	

RESULTS

Table 3 gives the results obtained in the determination of the A values, as means of two replicates. Since the experimental error for the three soils was very different, it was not possible to carry out a joint statistical analysis. The coefficient of variation for the samples from Pirassununga and Matão (12.8 and 9.5 respectively) were much higher than that corresponding to Orlândia (2.8%).

DISCUSSION

Statistical analysis has shown in the three kinds of soils a highly significant effect of added limestone on the availability of soil phosphorus. The concentration of available phosphate in the samples collected at Pirassununga and Matão has increased linearly as a result of liming. The effect of liming in the case of samples from Orlândia was somewhat different where the level of phosphate in the soil increased as a result of the application of limestone up to a dose of 4 tons/hectare. The higher rate of liming (8 tons/hectare) decreased the available phosphorus content relatively to the amount found when the next lower dose was applied.

The amount of naturally available phosphorus in the three regions is different, as shown by the A values, which correspond to the control plots. It should be pointed out in this respect that the chemical analyses of samples collected before the application of limestone (Table 1) had already revealed a marked difference in phosphorus content. The extraction solution which was used for this purpose, namely 0.05N H_2SO_4 , showed, however, differences in phosphate concentration much higher than those indicated by the A values. This suggests that rice seedlings, under the experimental conditions, were able to absorb

forms of phosphorus which 0.05N H₂SO₄ could not extract.

As mentioned before, Freitas *et al.* [7] verified that liming had affected differentially the response to phosphatic fertilization in Orlândia and Pirassununga. In the second of these regions, yields in the presence of a given amount of applied phosphorus were proportional to the rate of liming. The application of limestone in Orlândia, on the other hand, did not increase the magnitude of the response to fertilizer phosphorus. An examination of Table 3 provides an explanation for this fact, namely, that the amount of naturally available phosphorus in the samples from Orlândia is twice as much as that in the soil from Pirassununga. Under these circumstances, before applying limestone, the soil from Orlândia already had enough phosphorus to meet the demand of the crops. This did not occur in Pirassununga, where liming either added phosphorus to that applied, or prevented the fixation of the latter.

SUMMARY AND CONCLUSIONS

The method of isotopic dilution was successfully used to study the influence of limestone in the availability of natural phosphorus.

A values were determined by a simplified technique using samples of "cerrado" soils previously submitted in the field to treatment with different quantities of limestone.

It has been found that:

(a) The three types of "cerrado" soils had different available phosphorus contents;

(b) Liming increased linearly the A values in the case of two of the soils under study; in the third one, however, the response was linear also up to a point wherefrom a further increase in the amount of

limestone applied caused a significant drop in available phosphorus.

REFERENCES

1. Alvim, P. T., and Araujo, W., Turrialba (Costa Rica), 2, 153-160 (1952).
2. Arens, K., *Bol. Fac. Fil. Ci. e Letras* (Bulletin of the Faculty of Philosophy, Science and Letters), University of São Paulo, 224, 25-28 (1958).
3. Arens, K., *Simposio sobre o cerrado* (Symposium on the "cerrado"), pp. 285-303, edited by the University of São Paulo (1963).
4. Datta, S. K. De, Fox, R. L., and Sherman, G. D., *Agron. J.*, 55, 311-313 (1963).
5. Fagundes, A. B., Menezes, W. C., and Kalckmann, R. E., *An. II Rev. Bras. Ciencia do Solo* (Second Annual Meeting on Brazilian Soil Science), 2, 295-304 (1953).
6. Fried, M., and Dean, L. A., *Soil Sci.*, 73, 263-271 (1952).
7. Freitas, L. M. M., Mikkelsen, D. S., McClung, A. C. and Lott, W. L., *Simposio sobre o cerrado* (Symposium on the "cerrado"), 323-357, edited by the University of São Paulo (1963).
8. Ferri, M. G., *Contribuição ao conhecimento da ecologia de caatinga e de cerrado. Estudo comparativo da economia d'água e de sua vegetação* [Contribution to the knowledge of the ecology of caatinga (Tecoma cat.) and "cerrado" areas. Comparative Study of Water Conservation and Vegetation]; thesis (170 pages) in the Faculty of Philosophy, Science and Letters, University of São Paulo (1955).
9. Hemwall, J. B., *Adv. Agron.*, 9, 95-112 (1957).
10. Kurtz, L. T., *Soil and Fertilizer Phosphorus in Crop Nutrition*, 59-88 (W. H. Pierre and A. G. Norman, Eds.), Academic Press Inc., New York (1953).
11. Menard, L. N., and Malavolta, E., 4th Inter-Am. Symp. Peaceful Appl. Nucl. Energy (Mexico City), 2, 219-223.
12. Truog, E., *Soil and Fertiliser Phosphorus in Crop Nutrition*, 281-297 (W. H. Pierre and A. G. Norman, Eds.), Academic Press Inc., New York (1953).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/850 Brésil

Effet du chaulage sur l'assimilabilité du phosphore des sols « cerrado » du Brésil

par E. Malavolta *et al.*

La méthode de la dilution isotopique a été utilisée avec beaucoup de succès pour étudier l'influence du chaulage sur l'assimilabilité du phosphore originaire du sol.

Sur des échantillons de sols prélevés en plein champ

et auxquels on avait apporté au préalable des doses différentes de chaux, les valeurs « A » ont été déterminées par une technique modifiée.

Les résultats indiquent:

a) Que les trois types de sols « cerrado » possèdent des quantités différentes de phosphore assimilable;

b) Que le chaulage a fait augmenter d'une façon linéaire les valeurs « A » dans deux de ces sols; dans le troisième, cependant, la réponse était linéaire jusqu'à un certain point, à partir duquel la forte dose de chaux apportée a provoqué une diminution sensible du phosphore assimilable.

Влияние известкования на доступность фосфата в cerrado-почвах Бразилии

Э. Малавольта *et al.*

Для изучения влияния известняка на доступность природного фосфора (то есть способность фосфора усваиваться растениями) был успешно использован метод изотопного разбавления.

Величины доступности (А-величины) были определены простым способом на образцах cerrado-почв, подвергаемых обработке различными количествами известняка.

Установлено, что

a) три типа cerrado-почв содержали различные количества доступного фосфора;

b) в случае двух образцов исследуемых почв известкование приводило к увеличению А-величины по линейной зависимости; однако в третьем случае линейная зависимость наблюдалась лишь до определенного предела, после которого дальнейшее увеличение количества известняка приводило к значительному снижению содержания доступного фосфора.

El efecto del encalado en la disponibilidad de fosfato en suelos «cerrados» del Brasil

por E. Malavolta *et al.*

Se ha aplicado con éxito el método de dilución isotópica para estudiar la influencia de la cal en la disponibilidad de fósforo natural.

Los valores de *A* fueron determinados por una técnica simplificada utilizando muestras de suelos «cerrados» sometidos previamente en el campo a un tratamiento con distintas cantidades de cal.

Se ha encontrado que:

a) Los tres tipos de suelos «cerrados» tenían cantidades diferentes de fósforo disponible;

b) El encalado aumentaba linealmente los valores de *A* en el caso de dos de los suelos estudiados; en el tercero, sin embargo, la respuesta era lineal sólo hasta un punto determinado, a partir del cual el aumento de la cantidad de cal aplicada producía una disminución considerable del fósforo disponible.

Radioisotope studies of adaptation to residence at high altitudes and to heat stress*

By J. Metz and C. Wyndham**

Man's adaptation to environment may involve many physiologic processes, among the most important of which are changes in the body's fluid compartments. These changes in fluid compartments are often complex, and lend themselves particularly to study with radioisotopes. The present paper reports the results of such studies of adaptation to two aspects of environmental stress: residence at high altitude, and physical labour under conditions of extreme heat.

STUDIES ON SUBJECTS RESIDENT AT 5 740 FEET (1 750 m)

While extensive studies of blood volume and total body water at altitudes above 16 000 ft (4 900 m) have been reported [1], there is relatively little published on subjects resident at moderate altitudes at which large numbers of people reside. The present studies were carried out on normal healthy subjects resident at an altitude of approximately one mile (5 740 ft) above sea-level, and the results compared with those for subjects resident at sea-level.

Conventional hæmatocrit and biochemical techniques have revealed differences in some parameters in subjects resident at 5 740 ft as compared with those in similar subjects resident at sea-level. At the higher altitude the hæmogoblin value, hæmatocrit, red cell count and serum chloride concentration are elevated, while the plasma carbon dioxide content and serum sodium concentrations are lower [2,3]. These observations are of considerable interest to the physiologist, but little is known of the underlying mechanisms involved. It is in the elucidation of these mechanisms by the measurement of total red cell mass, plasma volume, body water, sodium and potassium that radioisotope techniques are of great value.

* Supported in part by a research grant from the Atomic Energy Board, Pretoria.

** South African Institute for Medical Research and Applied Physiology Laboratory, Chamber of Mines, Johannesburg.

Blood volume

In order to elucidate the blood volume changes responsible for the elevated hæmogoblin concentration and hæmatocrit values, studies were undertaken in normal healthy adult males resident at sea-level and at 5 740 ft. Red cell volume was measured with ^{51}Cr , plasma volume with radioiodinated human serum albumin and total body water with tritiated water. The tritium was assayed following the vacuum sublimation of plasma and urine samples. The blood volume measurements were expressed as ml/l total body water. Studies were carried out on 60 healthy young males, made up of a group of laboratory employees and medical students. Thirty-eight were resident at 5 740 ft and 22 at sea-level.

The results showed that at 5 740 ft there was a 2.5 ml/l increase in red cell volume and a 2.6 ml/l decrease in plasma volume. The total blood volumes at the two altitudes were similar. The differences in red cell volume and in plasma volume are statistically significant.

All authors who have studied the effect of altitude on blood volume agree that there is a contraction of the plasma volume at high altitude. Elevation of red cell mass has been reported in subjects resident at 14 900 ft (4 540 m) [1], but not in subjects resident at altitude 7 309 ft (2 230 m) [4]. The present study however, suggests that even at an altitude of 5 740 ft above sea-level, a significant increase in red cell mass may occur.

Radioisotope studies thus indicate that the homeostatic mechanism responsible for the increased concentration of hæmogoblin at high altitude involves both an expansion of red cell volume and a contraction of plasma volume, resulting in little significant change in the total blood volume. It would appear from these studies and from those of other workers that altitude is the most important environmental factor determining the physiologic limits of blood volume in man.

Total body water

Possible changes in total body water associated with residence at high altitude have received scant attention. Siri *et al.* [5] measured total body water with tritium in medical students resident at sea-level and in mine workers resident at 16 400 ft (5 000 m). The average total body water in the high altitude group was 5% greater than at sea-level, but the authors suggested that this difference was due to the different occupations of the groups rather than to an effect of altitude. In the present study, total body water averaged 60.6% of body weight in subjects resident at 5 740 ft, and 60.9% of body weight in subjects resident at sea-level. The results thus confirm the suggestion of Siri *et al.* that residence at higher altitude does not affect total body water, and that changes in total body water are probably not involved in man's adaptation to residence at high altitude.

CHANGES IN BODY FLUID SPACES ON EXPOSURE OF MAN TO HEAT

Up to now the experimental procedures used in these studies have placed certain limitations upon the information one could obtain on the dynamics of fluid exchange between these spaces under stress situations. The substances used were restricted to those which do not enter the metabolic processes of the body and which diffuse, selectively, in the different body fluid spaces within a reasonable period of time. The substances commonly used to estimate the various fluid spaces are the dye T-1824 for plasma volume, thiocyanate for the extra-cellular fluid compartment, and antipyrone for total body water. Estimation of the concentrations in blood of these substances is made by absorption of light in selected ranges of the light spectrum. The order of accuracy of these methods is not good but perhaps the greater limitation is that changes in fluid spaces could only be followed, with any accuracy, after long intervals of the order of hours, so that no clear picture has emerged of the changes in body fluid spaces with time when a man is placed under the stress of exercise or of heat. It is often the changes which occur within the first few minutes or the first hour which are the most significant in determining the degree of circulatory stress the individual will experience.

The development of experimental techniques in which normal constituents of the body are labelled radioactively brings a new order of precision to these measurements and also opens up the possibility of studying the dynamics, over short intervals of time, of the exchange of fluids and electrolytes between the body fluid spaces under conditions of stress where these exchanges can be expected to be accelerated. Exercise and heat are two such stress conditions. There is considerable literature on the question of the effects of heat and of exercise and heat upon the body fluid

spaces, but all the results reported were determined by the older limited techniques. It relates to the influence of season, of short severe exposure to heat and to repeated daily exposures to heat which results in the phenomenon of acclimatisation to heat. The information available under two of these headings will be discussed and will be related to the results of certain preliminary studies of plasma volume and total body water in which the newer radioactive labelling techniques were employed.

Seasonal effects

The first study reported [6] on this subject was made by the late Sir Joseph Barcroft, F.R.S., during a voyage from Britain to Peru. Using the carbon monoxide inhalation method, he showed a 17% increase in blood volume in three subjects in tropical latitudes compared with their blood volumes when in Britain. However, on returning to Britain one of the two subjects studied showed a decrease and the other did not. The Harvard Fatigue Laboratory [7] research workers were unable to confirm the findings of Barcroft *et al.* [6]. Using T-1824 on 10 subjects who went from Boston to the hot, humid tropics of the Mississippi delta they could show no change. Using the same technique, Bazett [8] claims to have shown a 15 to 40% increase in blood volume in three subjects between winter and summer in Philadelphia.

Little work has been done on the other fluid spaces. The Harvard Fatigue Laboratory workers reported a decrease of 7% in thiocyanate space and 11% in interstitial fluid volume in the men going from Boston to Mississippi. This was not confirmed in a similar study by Doupe [9].

This information reveals a surprising gap in our knowledge. It is well known to the clinician that the time of the change of season, especially from winter to summer, is the period when the cardiac, the hypertensive and the cerebral atherosclerotic patient may show a rapid deterioration in condition. The possible association with changes in blood volume has not been explored. Burch [10] in a monograph on the effect of hot climates on cardiac patients does not mention the possible influence of the increase in blood volume in causing cardiac decompensation.

The effect of a single acute exposure to severe heat

The major reactions of the body to heat stress are, firstly, the dilatation of blood vessels in the skin and subcutaneous regions of the body and, secondly, the production of sweat. The first of these two reactions leads to marked changes in circulatory dynamics. Cardiac output is increased and blood flow is shunted from the splanchnic area to the skin. Sweating leads to a rapid turnover of water. These two effects can be expected to lead to marked transient alterations in the body fluid spaces.

Studies of blood solids, of haemoglobin and of plasma proteins have shown first a haemodilution in the first 30 minutes of exposure and then with continued exposure and high rates of sweating the early haemodilution is reversed as a result of dehydration and haemoconcentration is observed. Assumptions have been made regarding changes in blood volume on the basis of there being no loss or gain of total circulating protein or red cells. These assumptions are not valid in the circumstances of these marked circulatory alterations and fluid exchanges.

Using T-1824, Glickman and his associates [11] studied 10 men before and after they spent 1-3 hours sitting at a dry-bulb temperature of 37 to 45 °C. Their results are equivocal. In 14 instances, there was no change in plasma volumes, in 6 they increased, and in 4 they decreased. Subsequently Robinson [12] has reported an increase in blood volume of 13% during a 2 to 6 hour exposure to heat and exercise in a dry-bulb temperature of 50 °C in men who were fully hydrated. No details of Robinson's methods have been published, however.

We have recently examined this question using radioiodinated human serum albumin. A dose of 5 μ c was injected intravenously at 9 a.m. and three samples of blood were taken at 9.20, 9.30 and 9.40 a.m. to establish the rate of clearance of the labelled material from the circulation. Two subjects then entered a hot room at 34.2 °C (air saturated with water vapour) and worked at 5kcal/min for 2 hours during which time repeated samples of blood were taken. The concentrations of radioiodine plotted exactly on the line of the extrapolation from the three control values before the men entered the climatic room. This was a clear indication that there was no change in plasma volume over this period. The average sweat losses in the period were 1.5 to 2.0 litres.

No studies have been reported in the literature on changes in intra-cellular or extra-cellular fluid spaces during acute exposures to heat. Ladell [13], however, calculated changes in body water distribution in 3 men during 3 hours of heavy sweating. From water and chloride balances he estimated the changes in intra- and extra-cellular fluid spaces in accordance with the Darrow-Yanet concepts under conditions of adequate and inadequate salt and/or water replacement. He concluded that in the absence of salt there is an increase in intra-cellular space, irrespective of extent of water replacement. He postulated that when water is given without salt, the extra-cellular space becomes hypotonic and water enters the intra-cellular space until osmotic equilibrium is re-established. Conversely, when salt is given in excess of water losses, then water leaves the intra-cellular spaces. These postulates have never been checked by direct study of the fluid spaces involved.

As a first step in this study, we have recently carried out a series of investigations using tritiated water. The first study was carried out over a period of 12 days on two subjects. One was a control and the other was exposed to heat on the sixth day. There the subject worked at 5 kcal/min for 4 hours at 34.2 °C (with the air saturated with water vapour). Both subjects were administered 700 μ c of tritiated water intravenously on day 1. Thereafter, a sample of blood and urine was taken in the post-prandial and resting state at the same time each morning for the next 12 days. In the control subject the concentration of tritiated water in both blood and urine showed the typical logarithmic decrease over the period. The concentration in the urine was a constant small amount below that in the blood. This indicates that the daily turnover of water in this subject, from day to day, is very constant. The biological half-life of tritiated water was 6.3 days. In the other subject the pattern of the decrease in the concentration curve of tritiated water in blood and urine was similar to that of the control until the sixth day. On the morning of the seventh day and the eighth day the concentrations fell below the line in the control period, indicating a greater water turnover during the exposure to heat the previous day. Thereafter, the curve continued parallel to that of the control period but displaced below it by an amount equal to the greater water turnover of the day of heat exposure. This is a clear indication that a single day of heat exposure altered the water turnover of the subject markedly on the day of exposure and possibly for one or two days thereafter but he then settled down to the control rate of daily water turnover. It would, of course, be of great interest to follow the dynamics of water turnover during a period of acclimatisation of, say, 12 days. There is some evidence in the literature that the rate of sweating is proportional to the rate of drinking and it may well be that one of the important phenomena of acclimatisation is the ability to drink increasing quantities of water, thereby diminishing the degree of dehydration and resulting in a greater sweat rate and better heat balance. Use of tritiated water would allow one to test this hypothesis.

The second study was more ambitious. The aim was to measure the total body water before the subject entered the hot room, then expose him to severe heat stress, which would cause profuse sweating, and replace the sweat losses as they were incurred. The concentration of tritiated water was measured again, 1 hour after the subject left the hot room, to see whether the change in concentration correlated closely with the water turnover due to sweating and its replacement by drinking. Finally the measurement of total body water was made again after the hour's rest, after coming out of the hot room, to see whether the completely rehydrated subject, after a water turnover of about 2.0 litres in 4 hours, would show any

significant change in total body water compared with the control period.

The procedure adopted was to give an initial dose of 400 μ c of tritiated water at 7 a.m., collect the total urine output over the next 3 hours, and then take a sample of blood (3 hours after the initial injection of tritiated water) for the first estimation of total body water. No water was drunk during the 3 hour period. The men then entered the hot room at 10 a.m. and worked at 5 kcal/min for 4 hours at 34.2 °C dry-bulb temperature (with the air saturated with water vapour). Their sweat and urine losses were replaced as they occurred so that their weights at the end of the exposure were the same as they were at the outset. They rested for 1 hour after coming out of the hot room during which time they did not drink. This interval was given in order to allow absorption of the water drunk in the hot room. At the end of the hour's rest a blood sample was taken and from the concentration it was hoped to estimate the total water turnover during the 4 hours of heat exposure. A second dose of tritiated water was then injected and blood samples were taken at hourly intervals to establish the curve of the decrease in concentration in order to make a direct estimate of total body water. In addition to these studies of work in heat on five subjects, a control study was made on four subjects in whom exactly the same procedure was carried out but they were not exposed to heat.

In the control subjects the results were much as expected. Their sweat and urine losses were small over the 4 hour period of work, about 500 ml, and consequently the tritiated water concentration after the work period was about the same as it was before. The graph of the decrease of tritiated water concentration after the second dose had the expected time constants which indicated that it was completely mixed with the total body water after 2 hours. The second estimate of total body water was 2.282 litres higher than that before exercise. This we are unable to account for because the water intake over the period was not greater than 500 ml.

The results in heat were unexpected. The concentrations of tritiated water in the samples taken one hour after leaving the hot room did not reflect the large water turnovers in the hot room which were between 1.160 and 2.400 litres. We expected the concentrations of tritiated water to be much lower than the pre-hot room concentrations because of the dilution of the total body water by the amounts, 1.0 to 2.4 litres, of water drunk. In fact, the concentrations were higher after leaving the hot room. Furthermore, the concentrations of tritiated water in the 3 hours after the second dose actually rose in all the subjects, instead of showing the usual curve of decreasing concentration. These results indicate that there must have been a leak into the intravascular space of tritiated water

from some source at a high concentration in both of these periods. The only explanation we can offer is that shortly after entering the hot room certain areas of the body are, virtually, shut off from the main blood flow. Tritiated water concentration in the intravascular fluid space will undoubtedly fall faster than normal during heat exposure because tritiated water is lost in sweat. But after leaving the hot room, blood flow to the regions shut off during heat exposure open up again and tritiated water in these regions is at a higher concentration and this would cause the concentration of tritiated water in the blood to rise. Considerably more attention will have to be given to the possibility that the interchange of water between the intravascular space and the interstitial and cellular spaces is not free in stress conditions where the blood flows to major areas of the body are decreased. We know that this is the case in heat exposure. Radigan and Robinson [14] have shown that blood flow to the kidneys is decreased by about 70% during work in severe heat.

SUMMARY

Aspects of man's adaptation to residence at an altitude of 5740 ft and to heat stress have been investigated with radioisotopes. Elevation in the haemoglobin concentrations at altitude has been found to be the result of both contraction of the plasma volume and expansion of the red cell volume.

The total body water at altitude has not been found to differ significantly from values at sea-level.

Continuous measurement of the plasma volume during exposure to heat has failed to reveal any changes in this compartment.

Changes in total body water as a result of exposure to heat have been found to be complex. The results of the present study suggest that areas within the tritiated water space may be shut off from the intravascular fluid space during heat exposure.

ACKNOWLEDGEMENTS

We wish to thank the Director, South African Institute for Medical Research, for facilities to carry out this study. This paper is published with the permission of the Chamber of Mines, Johannesburg.

REFERENCES

1. Hurtado, A., Merino, C., and Delgado, E., *Arch. Internal Med.*, 75, 284-323 (1945).
2. Lurie, H. I., *Quart. J. Exptl. Physiol.*, 33, 91-105 (1945).
3. Hack, D., Rubenstein, A., Levin, N. W., Goldberg, B., and Perold, S. M., *S. African J. Med. Sci.* (in press).
4. Sanchez-Medal, L., Rodriguez Moyado, H., Quintanar de Rodriguez, E., and Pizzuto, J., *Sang.*, 31, 311-321 (1960).
5. Siri, W. E., Reynafarje, C., Berlin, N. I., and Lawrence, J. H., *J. Appl. Physiol.*, 7, 333-334 (1954).

6. Barcroft, J., Binger, C. A., and Bock, A. V., *Phil. Trans. (B)*, 211, 351-480 (1923).
7. Dell, D. B., *Life, Heat and Altitude*, Harvard University Press, Cambridge (1938).
8. Bazett, H. C., *Physiol. Rev.*, 7, 531-599 (1927).
9. Doupe, J., Quoted by Bass and Henschel, *Physiol. Rev.*, 36, 128-144 (1956).
10. Burch, G. E., and Depasquale, N. P., in *Hot Climates, Man and His Heart*, Thomas Springfield (1962).
11. Glickman, N., Hick, F. K., Keeton, R. W., and Montgomery, M. M., *Am. J. Physiol.*, 134, 165-175 (1941).
12. Robinson, S., *Temperature, Its Control and Measurement in Science and Industry*, edited by J. D. Hardy, Reinholdt, New York (1963).
13. Ladell, W. S. S., *J. Physiol. (London)*, 108, 440-450 (1949).
14. Radigan, L. R., and Robinson, S., *J. Appl. Physiol.*, 2, 185-191 (1949).

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/853 Afrique du Sud

Etudes au moyen de radioisotopes sur l'adaptation de l'homme à la vie à haute altitude et à l'agression de la chaleur par J. Metz et C. Wyndham

L'adaptation de l'homme à son milieu peut faire intervenir de nombreux processus physiologiques; parmi les plus importants de ceux-ci sont les changements survenant dans les compartiments des humeurs de l'organisme. Ces changements sont souvent complexes et se prêtent particulièrement bien à l'étude au moyen de radioisotopes. Le mémoire rapporte les résultats de recherches sur l'adaptation à deux effets du milieu, à savoir la résidence à haute altitude et le travail physique dans des conditions de chaleur extrême.

Des études ont été publiées sur le volume du sang, la teneur totale en eau du corps et le métabolisme du fer à des altitudes de plus de 16 000 ft (6 300 m) dans les Andes péruviennes; on dispose d'assez peu de renseignements pour des sujets résidant aux altitudes modérées auxquelles habite un grand nombre de personnes. On a donc entrepris des études sur des sujets normaux et en bonne santé du sexe masculin résidant à une altitude de un mille (1 609 m) environ au-dessus du niveau de la mer, et on a comparé les résultats avec ceux obtenus pour des sujets résidant au niveau de la mer. On a employé des méthodes à indicateurs multiples, notamment la mesure du volume de globules rouges avec ^{51}Cr , du volume de plasma avec de l'albumine marquée à ^{131}I , la teneur totale en eau du corps avec $^3\text{H}_2\text{O}$ et le sodium échangeable total avec ^{22}Na . On a constaté des modifications complexes liées à la résidence à haute altitude. Le volume de globules rouges augmente et celui de plasma diminue; ainsi le volume total du sang n'est guère modifié. L'hématocrite veineux du corps est accru. La teneur totale en eau du corps est identique en altitude et au niveau de la mer, mais le sodium échangeable total tend à être moindre et la concentration du sodium dans le plasma est ainsi diminuée.

Le travail physique et dans une ambiance de chaleur est nécessaire dans de nombreuses industries, et une étude de l'adaptation de l'homme à de telles conditions est d'un intérêt pratique pour éviter l'épuisement par la chaleur et le coup de chaleur: on a fait des études sur des sujets normaux volontaires qui ont effectué un travail physique dans une chambre où régnaient des conditions de chaleur et d'humidité extrêmes. On s'est servi de techniques à radioisotopes multiples pour mesurer le volume de plasma, la teneur totale en eau du corps et le sodium échangeable total. Les études ont porté sur les modifications provoquées par une exposition unique à une forte chaleur ainsi que sur les changements consécutifs à l'acclimatation à la chaleur lors d'expositions successives. Alors que les changements subis par le volume de plasma n'étaient pas frappants, on a observé des modifications marquées de la teneur totale en eau du corps et du sodium échangeable total. Il a été particulièrement intéressant de relever qu'il faut un temps relativement long pour qu'un équilibre se rétablisse dans les compartiments des humeurs du corps à la suite d'une exposition à une chaleur extrême. Les résultats de ces études permettront, espère-t-on, d'aborder de manière rationnelle le problème de l'acclimatation à l'effort physique dans des conditions de chaleur extrême.

A/853 ЮАР

Исследование с помощью радиоактивных изотопов адаптации человека к большой высоте и тепловым ударам

Ю. Метц, К. Виндам

Адаптация человека к окружающим условиям может включать различные физиологические процессы; наиболее важными из них являются изменения жидкостей тела. Эти изменения жидкостей тела зачастую являются очень сложными, и поэтому для их исследования при-

бегают к радиоактивным изотопам. В настоящем докладе описываются результаты таких исследований адаптации человека к окружающим условиям в двух случаях: при пребывании на большой высоте и при физической работе в условиях действия высокой температуры.

При исследовании объема крови сообщалось об общем содержании воды и метаболизме железа в теле человека на высоте свыше 4800 м в Перуанских Андах. В литературе имеется мало данных об адаптации человека к средним высотам, на которых проживает большое число людей. Поэтому были проведены исследования над нормальными взрослыми здоровыми людьми, проживающими на высоте около мили (1750 м) над уровнем моря; результаты опытов сравнивались с результатами исследования группы людей, проживающих на уровне моря. Использовали метод многокомпонентной индикации, включая измерения объема эритроцитов с помощью Cr^{51} , объема плазмы с помощью альбумина, меченного J^{131} , общего объема воды тела с помощью H_2^{18}O и общего обменного натрия с помощью Na^{22} . Установлено, что при исследовании людей на большой высоте отмечены сложные изменения. Объем эритроцитов увеличивался, объем плазмы уменьшался. Таким образом, общий объем крови изменялся незначительно. Величина гематокрита венозной крови увеличивалась. Общее содержание воды в теле одинаково как при нахождении на высоте, так и при нахождении на уровне моря, однако общее количество обменного натрия уменьшается при нахождении людей на большой высоте, общее содержание натрия в сыворотке также уменьшается.

Физический труд в условиях жары используется во многих отраслях промышленности, и исследование адаптации человека к таким условиям вызвано практической необходимостью предотвращения избытка теплового воздействия и тепловых шоков. Исследования были проведены с нормальными здоровыми людьми, добровольно изъявившими согласие физически работать в тепловой камере в условиях жары и высокой влажности. Для измерения объема плазмы, общей воды тела и общего обменного натрия использовался многокомпонентный изотопный метод. Исследовались изменения, возникающие при однократном действии высокой температуры, а также изменения после акклиматизации организма к действию тепла при продолжительном воздействии жары. Хотя изменения объема плазмы были незначительными, наблюдались заметные изменения общего объема воды тела и общего количества обменного натрия. Отмечался сравнительно продолжительный период, необходимый для установления равновесия в жидкости тела после воздействия избытка тепла. Результаты этих исследований будут способствовать разрешению проблемы акклиматизации рабочих в условиях высоких температур.

Estudios radioisotópicos de adaptación a la vida en altitudes elevadas y al trabajo físico bajo calor extremado

por J. Metz y C. Wyndham

La adaptación del hombre al medio ambiente puede dar lugar a muchos procesos fisiológicos, entre los que se encuentran como más importantes los cambios en los fluidos del cuerpo. Estos cambios en los fluidos son con frecuencia complejos y se prestan particularmente a ser estudiados por medio de los isótopos radiactivos. Esta memoria informa sobre los resultados de los estudios llevados a cabo en dos casos extremos, a saber: de residencia en altitudes elevadas y de trabajo físico en condiciones de calor extremado.

Aunque se han publicado estudios sobre el volumen de sangre, contenido total de agua en el cuerpo y metabolismo del hierro a altitudes superiores a los 4875 m en los Andes peruanos, hay pocos datos publicados sobre individuos residentes en altitudes moderadas en las que hay gran cantidad de población. Por tanto se han realizado estudios sobre varones de salud normal que residen en una altitud aproximada a los 1750 m sobre el nivel del mar y los resultados se han comparado con los de los residentes al nivel del mar. Se han empleado diversas técnicas de trazadores, incluyendo medidas del volumen de hematíes con ^{51}Cr , volumen del plasma con albúmina- ^{131}I , contenido total de agua en el cuerpo con $^3\text{H}_2\text{O}$ y cantidad total de sodio intercambiable con ^{22}Na . Se han encontrado cambios complejos asociados con la residencia en altitudes elevadas. Aumenta el volumen de hematíes y disminuye el volumen del plasma; de este modo el volumen total de sangre no varía sensiblemente. Se eleva la relación hematocítica venosa del cuerpo. El contenido total de agua en el cuerpo es similar a la altitud considerada y al nivel del mar, pero el intercambio total de sodio tiende a ser más bajo en altitud elevada y así se reduce la concentración de sodio en el suero.

El trabajo físico realizado a temperatura elevada es necesario en muchas industrias, y el estudio de la adaptación del hombre a tales condiciones es de importancia práctica para impedir la fatiga por el calor o el golpe de calor. Se han realizado estudios con personas normales voluntarias que realizaron trabajo físico en una cámara de calor en condiciones extremas de calor y humedad. Se emplearon diversas técnicas de isótopos radiactivos para medir el volumen del plasma, el contenido total de agua en el cuerpo y el intercambio total de sodio. Los estudios trataron de los cambios que acompañaron a una sola exposición al calor fuerte así como de los que siguieron a la aclimatación al calor después de sucesivas exposiciones. Aunque los cambios en el volumen

del plasma no fueron muy extraordinarios, se observaron cambios notables en el contenido total de agua en el cuerpo y en el intercambio total de sodio. De particular interés fue el período relativamente largo que se necesitó para restablecer el equilibrio en los fluidos

del cuerpo a continuación de una exposición a un calor extremado. Se espera que los resultados de estos estudios permitirán abordar de una forma racional los problemas de aclimatación para trabajar en condiciones de calor extremado.

The effect of tritiated thymidine and gamma-irradiation on the mortality of *Drosophila melanogaster* larvae

By E. Kent *

It has been found that the sensitivity of *Drosophila melanogaster* larvae exposed to X-rays or fed with tritiated thymidine varies according to the age of the larvae. Elderly larvae are almost insensitive to small doses of X-rays or to high concentrations of tritiated thymidine. It is known that tritiated thymidine is a precursor of deoxyribonucleic acid (DNA) and X-rays have an effect on the synthesis of DNA. In elderly larvae tritiated thymidine and X-rays exert few harmful effects. Our aim is to find out whether irradiation increases or decreases the effects of tritiated thymidine mentioned above.

Tritiated thymidine was administered orally to 72 h old larvae and total body irradiation was achieved by the use of 1.02 curies of ^{60}Co .

So far we have observed that when the larvae in the normal nutrient are irradiated, their life span does not differ from the controlled ones. Tritiated thymidine and irradiation, when applied simultaneously, cause an increase in the mortality rate of the larvae. But, tritiated thymidine administered to the larvae without the accompaniment of irradiation does not cause a comparable high mortality rate. So, these two factors, when given simultaneously at certain doses, do impose deleterious effects.

A survey of current investigations indicates that there is a relation between the radiated object (such as species, age, or different tissues of the organism) and the radiating agent. This fact is extremely manifest in *Drosophila melanogaster* larvae. The very young larvae are very sensitive even to small doses of radiating agents such as gamma rays [1], or tritiated thymidine [2]. On the other hand, the aged larvae are extremely resistant to those agents.

The investigations of some research workers indicate that some tissues may be injured when exposed to labelling doses of tritiated thymidine [3], others have shown that the synthesis of DNA is inhibited by X-irradiation [4] and by tritiated thymidine [5]. This fact may be responsible for the lethality of young

larvae, since the multiplication of the *chromonemata* occurs in young larvae and their DNA synthesis is more strongly expressed. However, DNA is synthesized in the salivary gland chromosomes of *Drosophila melanogaster* larvae, even in the pupae. But, there are also some reasons to believe that the synthesis of DNA observed in prepupae and pupae is related to the metabolic DNA [6] which seems to be elaborated by the genetic DNA.

We have, therefore, decided to study the combined effect of gamma rays and tritiated thymidine on the mortality rate of *Drosophila melanogaster* larvae. Below, experiments performed on 72 h old larvae will be explained.

MATERIALS AND METHODS

Four experiments have been performed. In each case either the concentration of tritiated thymidine or the intensity of irradiation was increased or decreased threefold. The amount of tritiated thymidine and irradiation used in each experiment was as follows: in (I) 180 μc and 260 roentgens, in (II) 60 μc and 260 roentgens, in (III) 180 μc and 85 roentgens, and in (IV) 60 μc and 780 roentgens. Each group of experiments included four parallel series. In series 1, tritiated thymidine and irradiation, in series 2, tritiated thymidine, in series 3, irradiation, and in series 4, only the normal nutrient was employed. Each experiment was repeated ten times. The exposure to radiation, i.e., two hours, was kept constant.

Tritiated thymidine: thymidine-(methyl-T), 1 mc in 1 cm^3 of specific activity 3.9 curies/mM was employed and obtained from the Radiochemical Centre, Amersham, England.

Cobalt-60: 1.02 curies of ^{60}Co radiating 1.32 roentgens from 1 meter was employed as the source of external irradiation.

Larvae: in the experiments, *Drosophila melanogaster* stock larvae from Çekmece-Istanbul, cultivated under constant conditions were used.

Nutrient: 3 g of banana, 20 mg of sugar, and 20 mg of dried yeast were added to a porcelain weighing-cup

* Çekmece Nuclear Research and Training Centre, P.O. Box 1, Airport, Istanbul.

of 4 cm in height and of 2 cm in diameter. Tritiated thymidine was added to the above mixture when necessary and all was mixed homogeneously.

Collection and irradiation of larvae: the flies were transferred to an erlenmeyer. Three slices of banana were placed on a glass-slide and inserted in the erlenmeyer. The erlenmeyer was then kept in the dark at room temperature, in a tilted position, until an adequate number of eggs was left on the bananas by the flies. The larvae were collected as soon as they emerged from the eggs and used in the experiments when they were 72 hours old.

Larvae, aged 72 hours, were placed in the above-mentioned nutrient and the cups were carried to the irradiation room as quickly as possible. Depending on the dosage of irradiation, the cups were placed at a

specific distance from the source by trained operators. The irradiation lasted for two hours. From then on, at the third, fourth, fifth, sixth, seventh and twenty-fourth hour after the larvae had been placed in the nutrient, the amount of larvae was counted and the deaths were recorded.

OBSERVATIONS

From Table 1, it is quite apparent that tritiated thymidine (180 μc) and ^{60}Co irradiation (260 r) do not cause a high mortality rate when applied separately to the 72 h old larvae. On the other hand, when the two factors were applied to the larvae simultaneously, the mortality rate increased immediately and the total death rate reached 55.95%. One may think that these

Table 1^a

	No. of larvae at beginning	% dead larvae, after following hours						Total deaths (%)
		3 h	4 h	5 h	6 h	7 h	24 h	
<i>Group I</i>								
^{60}Co , 260 r — Tritiated thymidine, 180 μc . . .	310	11.9 (± 0.0)	6.9 (± 0.0)	7.4 (± 0.10)	7.1 (± 0.12)	7.65 (± 0.12)	15.0 (± 0.73)	55.95
Tritiated thymidine, 180 μc	310	2.28 (± 0.0)	1.15 (± 0.13)	3.9 (± 0.0)	3.6 (± 0.0)	5.5 (± 0.13)	5.7 (± 0.02)	22.13
^{60}Co , 260 r	250	2.9 (± 0.4)	2.0 (± 0.30)	1.04 (± 0.0)	2.6 (± 0.0)	2.1 (± 0.0)	5.4 (± 0.1)	16.04
Control	250	3.4 (± 0.4)	2.18 (± 0.30)	2.23 (± 0.0)	3.64 (± 0.0)	0.9 (± 0.0)	3.7 (± 0.0)	16.67
<i>Group II</i>								
^{60}Co , 260 r — Tritiated thymidine, 60 μc . . .	310	6.5 (± 0.0)	4.8 (± 0.0)	2.9 (± 0.0)	2.2 (± 0.0)	3.4 (± 0.1)	9.3 (± 0.0)	29.1
Tritiated thymidine, 60 μc	310	3.5 (± 0.0)	3.8 (± 0.0)	3.5 (± 0.0)	2.5 (± 0.0)	3.6 (± 0.0)	6.8 (± 0.4)	23.7
^{60}Co , 260 r	250	2.0 (± 0.0)	2.2 (± 0.0)	2.8 (± 0.0)	0.86 (± 0.25)	1.3 (± 0.0)	5.0 (± 1.35)	14.6
Control	250	3.1 (± 0.0)	2.5 (± 0.13)	1.7 (± 0.0)	2.6 (± 0.0)	3.5 (± 0.0)	2.3 (± 0.18)	15.7
<i>Group III</i>								
^{60}Co , 85 r — Tritiated thymidine, 180 μc . . .	310	3.6 (± 0.0)	2.5 (± 0.0)	4.3 (± 0.0)	2.9 (± 0.0)	0.4 (± 0.0)	3.6 (± 0.45)	17.3
Tritiated thymidine, 180 μc	310	6.2 (± 0.0)	2.5 (± 0.0)	0.9 (± 0.0)	2.2 (± 0.0)	0.9 (± 0.0)	2.6 (± 0.0)	15.3
^{60}Co , 85 r	250	1.0 (± 0.0)	1.5 (± 0.0)	1.5 (± 0.0)	0.5 (± 0.0)	0.5 (± 0.0)	1.4 (± 0.0)	6.4
Control	250	7.5 (± 0.0)	1.1 (± 0.0)	5.4 (± 0.0)	2.2 (± 0.0)	0.0 (± 0.0)	0.7 (± 0.0)	16.9
<i>Group IV</i>								
^{60}Co , 780 r — Tritiated thymidine, 60 μc . . .	310	8.7 (± 0.0)	5.3 (± 0.0)	5.2 (± 0.15)	2.8 (± 0.0)	3.9 (± 0.0)	8.9 (± 0.0)	34.8
Tritiated thymidine, 60 μc	310	3.5 (± 0.0)	2.1 (± 0.25)	3.5 (± 0.0)	1.4 (± 0.0)	2.1 (± 0.0)	0.8 (± 0.0)	13.4
^{60}Co , 780 r	250	3.6 (± 0.0)	1.2 (± 0.0)	2.5 (± 0.0)	1.3 (± 0.0)	1.8 (± 0.0)	2.5 (± 0.0)	12.9
Control	250	3.1 (± 0.0)	1.6 (± 0.0)	0.0 (± 0.0)	0.8 (± 0.0)	0.4 (± 0.0)	0.4 (± 0.0)	3.3

^a Values in parentheses are standard deviations from the mean.

two factors acting together increase the death rate additively. But, if there were an additive effect, the mortality rate would be 38.17% instead of 55.95%. In order to understand the reason for this phenomenon, the experiments were repeated by changing the amounts of tritiated thymidine and gamma-irradiation. In Group II the irradiation dose was kept the same as in Group I, but the concentration of tritiated thymidine was dropped to one third (60 μ c). The combined effect of the two factors gave a mortality rate of 29.1%. Results obtained from tritiated thymidine, ^{60}Co and the control series did not differ from those of Group I. In the third group, the dosage of ^{60}Co irradiation was dropped to 85 roentgens and the concentration of tritiated thymidine was the same as that of Group I, that is 180 μ c. The total death per cent (15.3%) caused by tritiated thymidine, when given to the larvae without the accompaniment of irradiation, showed a decrease in mortality rate in comparison with those in Group I (22.13%) and Group II (23.7%). But a higher drop in the mortality rate of the ^{60}Co series, (6.4%) occurred, (in Group I 16.04% and in Group II 14.6%). Since these results suggested that in the combined effect of tritiated thymidine and ^{60}Co irradiation, the amount of ^{60}Co might play a more important part, in Group IV, the ^{60}Co dose was raised to 780 roentgens and the concentration of tritiated thymidine was dropped to one third of that in Group I. In this group, the separate effects imposed by the two factors were not very different from those of the similar series of the other groups. On the other hand, the combined effects of the two factors, when given to the larvae simultaneously, caused an apparent increase in the total death which was higher than an additive effect. But this total death per cent (34.8%) is still quite lower than that in Group I (53.95%).

DISCUSSION

The results obtained from our investigations show that we should perform more experiments to answer some questions that may come to our minds. To be able to study the combined effect of the two factors more critically, one group of larvae should be first irradiated and then introduced into the hot nutrient and another group of larvae should be first given the hot nutrient and irradiated after a couple of hours. Work on these aspects is now being carried out in our laboratory.

The results mentioned above show that the combined effect of tritiated thymidine and ^{60}Co irradiation is larger than an additive one. A comparison of the four groups shows that the ^{60}Co dosage is more influential in increasing the mortality of the larvae than the tritiated thymidine. But, ^{60}Co when applied to the larvae by itself, does not produce such an effect.

It is the ratio of the two combined factors, which is responsible for this effect. This situation will be understood better after the completion of the above-mentioned experiments.

It is an established fact that tritiated thymidine enters DNA synthesis directly. As a result of ^{60}Co irradiation, tritiated thymidine (before or after it reaches the organism) may undergo some chemical alterations and enter the chromosomes in this state. This may be the cause of the increased mortality rate at certain doses when the two factors are given simultaneously. If this postulation is true, then three factors influence the increase in mortality rate: (a) the effect of ^{60}Co , (b) the effect of tritiated thymidine, and (c) the effect of irradiated (by ^{60}Co) tritiated thymidine (in and out of the organism). When the amounts of ^{60}Co irradiation and tritiated thymidine are dropped, the concentration of irradiated tritiated thymidine is also decreased and in this way, the effect of this third factor, namely, irradiated tritiated thymidine, is decreased. Another factor which determines the doses of tritiated thymidine and ^{60}Co irradiation is the feeding capacity of the larvae. In the experiments, tritiated thymidine was mixed with the nutrient and since the amount of nutrient that the larvae can eat is almost specific, the concentration of tritiated thymidine cannot be increased at will.

In Experiments I, II and IV where the intensity of irradiation was high, right after irradiation (at the third hour of the experiment) the death per cent of the series where two factors were given simultaneously is quite high. Experiment I, 11.9%, Experiment II, 6.5% and Experiment III, 8.7%. In *Drosophila melanogaster*, after the tritiated thymidine is taken up by the larvae, it is incorporated into the DNA of the intestinal chromosomes in five minutes. For this reason, in the organism the effect of the irradiated tritiated thymidine is higher at the beginning and then this effect decreases as the amount of irradiated thymidine decreases with time. This fact is verified by our experimental results. In three of the above-mentioned experiments, when the two factors were given simultaneously, at the third hour, the death rate was higher than the additive death rates of the two factors when they were given to the larvae separately. The counts, made at the 6th, 7th, and 24th hour of the same experiments, showed that there was not a large difference between the death rate with the combined effect of the two factors and the additive effect of each factor when given to the larvae by themselves.

The results obtained from the experiments mentioned above may be accordingly of practical value. When chemical materials, especially those which enter the DNA synthesis, are given to the organism, the effect of radiation in the organism may be increased. Therefore under such conditions, it would be more advisable to use low radiation-dosages.

SUMMARY

It has been found that tritiated thymidine (given orally) and total body gamma-irradiation (^{60}Co) increased the mortality rate of *Drosophila melanogaster* larvae, aged 72 h, when applied simultaneously at certain ratios to each other. When either of them was given to the larvae without the accompaniment of the other, a comparable mortality rate did not occur. The combined effect of the two factors was higher than their additive effect and ^{60}Co irradiation was also found to be more influential in the production of this

effect. The reasons for these phenomena have been discussed.

REFERENCES

1. Uçer, E., unpublished data.
2. Anil, D., unpublished data.
3. Post, J. and Hoffman, J., *Radiation Res.*, 14, 713 (1961).
4. Nygaard, O. F. and Potter, R. L., *Radiation Res.*, 16, 251 (1962).
5. Sherman and Quastler, H., *Radiation Res.*, 9, 182 (1961).
6. Şengün, A. *et al.*, published data.

ABSTRACT—RÉSUMÉ—АННОТАЦИЯ—RESUMEN

A/856 Turquie

Les effets de la thymidine tritiée et de l'irradiation gamma sur la mortalité des larves de *Drosophila melanogaster*

par E. Kent

On avait observé que la sensibilité des larves de *Drosophila melanogaster* exposées à l'irradiation ou nourries avec de la thymidine tritiée varie selon l'âge des larves. Les larves âgées ne sont presque pas sensibles aux petites doses de rayons X ou aux basses concentrations de thymidine tritiée. D'autre part, on sait que la thymidine tritiée est un précurseur de l'ADN et que les rayons X influent sur la synthèse de l'ADN. Chez les larves âgées, la thymidine tritiée et les rayons X ne produisent que peu de dommages. Pour cette raison, on a voulu déterminer si l'irradiation diminue ou augmente les effets ci-dessus mentionnés de la thymidine tritiée.

On a administré de la thymidine tritiée à des larves âgées de trois jours et on les a irradiées avec 1,02 Ci de cobalt 60. La thymidine tritiée a été ajoutée à 3 g de nourriture et on a administré une dose d'irradiation de 260 R.

Jusqu'à présent on a observé que quand on irradie les larves dans une nourriture normale, leur vie moyenne ne varie pas de celle de larves témoins. Le taux de mortalité croît chez les larves quand on leur administre en même temps la thymidine tritiée et l'irradiation. Mais la thymidine tritiée administrée aux larves en absence d'irradiation n'a pas causé une mortalité comparablement forte. Ainsi, la thymidine tritiée et l'irradiation causent aux larves des effets nuisibles si on les administre ensemble. Si les expériences futures confirment les effets stimulants (cumulatifs?) de ces deux facteurs, c'est-à-dire de la thymidine tritiée et de l'irradiation, ce fait pourra avoir un intérêt pratique et théorique.

On continuera les études en modifiant la dose d'irradiation ainsi que la concentration de la thymidine

tritiée. Afin d'étudier l'effet structural de deux doses d'irradiation différentes sur l'incorporation de la thymidine tritiée dans l'ADN, on préparera pour l'autoradiographie des échantillons de chromosomes géants des glandes salivaires de larves soumises aux expériences ci-dessus.

Les résultats de ces expériences seront présentés et discutés en détail.

A/856 Турция

Биологическое действие меченного тритием тимидина и гамма-облучения на личинки *Drosophila melanogaster*

Э. Кент

Установлено, что чувствительность личинок *Drosophila melanogaster*, подвергнутых облучению рентгеновыми лучами или вскормленных на меченном тритием тимидине, изменяется в зависимости от возраста личинок. Взрослые личинки почти не чувствительны к облучению малыми дозами рентгеновых лучей или к небольшим концентрациям меченного тритием тимидина. С другой стороны, известно, что меченный тритием тимидин является предшественником дезоксирибонуклеиновой кислоты (ДНК) и что рентгеновы лучи оказывают некоторое действие на синтез ДНК. У взрослых личинок меченный тритием тимидин и рентгеновые лучи вызывают небольшие повреждения. Поэтому наша цель заключается в том, чтобы показать, приводит ли облучение к ослаблению или усилению действия меченного тритием тимидина.

Личинкам в возрасте трех дней вводили меченный тритием тимидин. Затем личинки облучали кобальтом-60 дозой 1,02 кюри, в питательной среде добавляли 3 г меченного тритием тимидина и облучали дозой 260 р.

Установлено, что под облучением и при нормальном питании средняя жизнь личинок не отличалась от средней жизни контрольных личинок. Процент смертности увеличивается у личинок при одновременном применении облучения и меченного тритием тимидина. Однако наблюдалось также, что меченный тритием тимидин, вводимый личинкам при отсутствии облучения, не вызывал значительной смертности. Таким образом, меченный тритием тимидин и облучение действительно оказывают на личинки вредное действие, когда они подаются одновременно. Если будущие опыты подтвердят стимулирующее (кумулятивное?) действие обоих факторов, то есть меченного тритием тимидина и облучения, этот факт даст возможность извлечь пользу на практике и в теории.

Исследования будут продолжены с изменением дозы облучения и концентрации меченного тритием тимидина. С целью изучения структурного влияния двух различных доз облучения на включение меченного тритием тимидина в ДНК, будут подготовлены образцы для автордиографического исследования гигантских хромосом слюнных желез личинок, подвергнутых вышеописанным условиям.

Результаты этих опытов будут представлены и детально рассмотрены.

A/856 Turquia

Efectos de la timidina tritiada y de la irradiación gamma sobre la mortalidad de las larvas de la *Drosophila melanogaster*

por E. Kent

Se ha encontrado que la sensibilidad de las larvas de la *Drosophila melanogaster* expuestas a los rayos X o alimentadas con timidina tritiada, varía con la

edad de las larvas. Las larvas más viejas casi no son sensibles a pequeñas dosis de rayos X o a bajas concentraciones de timidina tritiada. Por otra parte se sabe que la timidina tritiada es precursora del DNA y que los rayos X ejercen ciertas acciones sobre la síntesis del DNA. Los daños producidos en las larvas mayores por la timidina tritiada y por los rayos X son pequeños. Por esta razón nuestro objeto es averiguar si la irradiación disminuye o aumenta los efectos antes mencionados de la timidina tritiada.

Con este fin, se han alimentado larvas de tres días con timidina tritiada e irradiado con 1,02 curios de cobalto-60 empleando 3 gramos de timidina y una dosis de irradiación de 260 roentgens.

Hasta ahora, se ha observado que, cuando se irradian larvas alimentadas normalmente, su vida media no difiere de la de las larvas testigo. Cuando se irradian larvas a las que simultáneamente se administra timidina, su vida media disminuye; pero si la administración de timidina no va acompañada de irradiación, no produce una mortalidad tan elevada. Por tanto la timidina tritiada y los rayos X producen efectos destructores cuando se administran a las larvas simultáneamente. Si los experimentos futuros confirmasen el efecto estimulante (¿acumulativo?) de estos factores (esto es, de la timidina tritiada y de la irradiación) el hecho podría ser de interés práctico y teórico.

Continuaremos estos estudios variando las dosis de irradiación y la concentración de la timidina tritiada. A fin de estudiar el efecto estructural de dos dosis de irradiación diferentes sobre la incorporación de la timidina tritiada en el DNA, se prepararán muestras, para la investigación auto-radiográfica, de cromosomas gigantes de glándulas salivares de las larvas sometidas a los experimentos anteriores.

Los resultados de estos experimentos se presentan y discuten detalladamente.

Miscellaneous applications of atomic energy

Chairman: H. Hulubei (Romania)

Paper P/542 (presented by S. Roesinger)

DISCUSSION

B. MANOWITZ (United States of America): We, too, have analysed reactor types for gamma-radiation production in the United States and have arrived at conclusions regarding the advantages of "compound" reactors which are very similar to those mentioned by Dr. Roesinger. I wish to point out, with regard to the fission-fragment type of reactor mentioned, that a considerable amount of development work has been done in the United States, much of which is summarized in paper P/292. Progress has been made in the development of fuels which are very thin but have very good structural and radiation stability. Information is also provided on the fission-fragment chemistry of the ammonia and oxygen-nitrogen systems. Our conclusions are that the use of fission-fragment reactors for producing some chemical reactions with G values in the range of 2 to 15 (i.e., hydrazine and ozone) should be economically feasible.

With regard to the "compound" reactor mentioned by Dr. Roesinger, I should think that one reaction that would be feasible for such a reactor would be the oxidation of benzene to produce phenol. Have any detailed economic analyses been made of the economics of phenol production in a "compound" reactor?

S. ROESINGER (Federal Republic of Germany): We studied the oxidation of benzene to produce phenol and, since the G values are at present about 20, we do not consider it feasible to produce this reaction in the "compound" reactor. If the G values could be increased to well over 100 and the problem of handling the high-pressure oxygen in the mixture was solved, it might be possible to produce phenol economically.

M. F. ABDEL-WAHAB (United Arab Republic): What type of metal is used for the reaction vessels and what is the minimum wall thickness used for attenuating gamma radiation? I should also like to ask what material is used in the tank for biological shielding and if any attempt has been made to determine the relationship between the water volume in the tank and the dose rate measured outside it.

S. ROESINGER (Federal Republic of Germany): The material used in the chemical part of the "compound" reactor is chosen according to the requirements of the

chemical process, as this part is outside the nuclear reactor. The wall should be as thin as possible; it should, however, be sufficiently thick to withstand any pressure that might arise, e.g., high-pressure reactions.

As to your second question, we considered that a water tank would serve as a convenient biological shield, but for permanent installations concrete or lead shields might be constructed. The dose rate should not exceed 0.1 to 1 mrem/h. Those, or even lower, values would easily be reached.

Paper P/389

DISCUSSION

B. MANOWITZ (United States of America): As the author points out and as has been observed elsewhere, radiation thermal cracking of certain oil feedstocks can take place at temperatures which are about 100°C lower than the temperature in the case of thermal cracking, and the distribution of gaseous products is different from that for thermal cracking at that lower temperature. However, from an economic point of view it is much cheaper to work at the elevated temperature than to apply radiation thermal cracking. Even if there are some distribution differences for the light fractions, these are probably not economically significant since efficient recombination processes for all the light fractions have been developed. It would seem to me that the most significant result that the author has presented is the statement that there is a sharp decrease in black and gum formation compared to pyrolysis. Has Dr. Pollak any further data on the extent of the decrease in heavy fraction formation?

P. S. POLLAK (USSR): The yield of heavy products sharply decreases, and this phenomenon was the subject of special investigation. In fact it decreases virtually to trace quantities of certain light products, which in normal processes considerably increases the cost of separating the products.

From the economic point of view a power-chemical reactor, which will be the basic unit of the petrochemical combine, ensures the economic effectiveness of the combined radio-thermal and radio-catalytic processes.

Paper P/112 (presented by Z. Zagórski)

There was no discussion of this paper.

Paper P/197

DISCUSSION

A. H. W. ATEN (Netherlands): If a constant fast-neutron flux is needed and the current is increased as the tritium is depleted, there are other solutions to the problem in addition to the one mentioned by Dr. Guinn in the first section of his paper. An alternative solution is provided by neutron tubes with an ion beam consisting of deuterons mixed with tritons. In this way the target is constantly replenished with tritium. There is an increasing demand for such tubes for the purpose of activation analysis in medical and industrial laboratories. Such laboratories are often particularly interested in neutron generators with a rather low output, which require little or no shielding.

An attempt was made to use converters consisting of lithium deuteride for the production of 14 MeV neutrons more than ten years ago, but with disappointing results. The fluxes turned out to be much lower than expected. I should like to ask Dr. Guinn whether a suitable design for a lithium deuteride converter is now available. If not, perhaps one of the reactor specialists present at this conference would like to study the subject.

V. P. GUINN (United States of America): At least one type of neutron generator effects periodic regeneration of tritium targets by bombardment with T^+ ions. Another type, a sealed-tube device, uses a mixed D^+/T^+ beam, and is guaranteed to maintain a neutron output rate of at least 10^{10} n/s for 100 hours or longer.

Some years ago, $^6\text{Li D}$ measurements were made. These showed good absorption of incident reactor thermal neutrons; there was essentially no absorption of reactor fast neutrons, but there was a little enhancement of the fast-neutron flux by 14 MeV (d,t) neutrons; I hope to improve the flux enhancement to some extent by more efficient design. Even if this is possible, the improvement is not expected to be very great but it may be sufficient to be of practical value.

Paper P/829 (presented by A.A. Abdel-Rassoul)

DISCUSSION

V. P. GUINN (United States of America): In the paper it is stated that direct gamma-ray spectrometry was tried but that the counting rates were too low. A few calculations, however, show that the gamma disintegration rates of the types of samples analysed would be very high. For example, 4 grams of your Pb-3 sample should produce about 20 million γ dpm, and 0.5 gram of your Al-2 sample should produce

about 2 million γ dpm (in each case after 48 hours at 1.3×10^{13} flux and one to two weeks decay). It should be possible, I believe, to detect five of the six impurity elements studied by direct gamma-ray spectrometry. In such samples, the cadmium would still have to be determined by radiochemical separation. In the Al-2 sample, the tin would also have to be determined radiochemically. Greater use of the instrumental technique could thus save considerable time and effort, the more tedious radiochemical separations then being carried out only in the case of cadmium, and perhaps tin.

A.A. ABDEL-RASSOUL (United Arab Republic): After being irradiated, all the samples analysed proved actually to have high gamma counting rates. However, after the separation of individual fractions and removal of radiochemical contaminations, the pulse-height assembly used indicated that the counting rate of each species was not high enough; this may be attributable to the low counting efficiency of the crystal used.

Paper P/92 (presented by D. Dautreppe)

DISCUSSION

V. P. GUINN (United States of America): Since fast-neutron bombardment of an equilibrium, ordered, solid produces non-equilibrium defects, am I correct in assuming that your neutron-induced crystal lattice transformations result in a rather imperfect new structure containing many defects?

D. DAUTREPPE (France): Yes. The new ordered structure will obviously retain the defects whose annealing temperature is higher than the irradiation temperature.

Paper P/291 (presented by G. W. Johnson)

DISCUSSION

T. E. W. SCHUMANN (South Africa): Have any estimates been made with regard to the costs and other factors involved in constructing a second Panama Canal?

I should also like to ask if it is possible to determine, from experiments carried out to date, what would be involved in attempting to detach a huge icefield from Antarctica either for the supply of fresh water or, for example, with a view to influencing the climate of some tropical country near which the ice might be anchored.

G. W. JOHNSON (United States of America): The construction of a sea-level canal across the Isthmus of Panama has been studied for several years and it appears that nuclear excavation might be accomplished at one third of the cost of converting the present canal into a sea-level canal by conventional methods, which is estimated at \$2.3 thousand million. The radioactivity problem is no longer such a serious obstacle, since it is now estimated that the fall-out would be 100 times less than that estimated in 1960.

As to your second question, icebergs could probably be detached from the Antarctic ice cap but towing charges would undoubtedly be prohibitive. There have been no nuclear explosions in ice but experience with chemical explosives indicates that ice does not fracture excessively.

K. MAHMOUD (United Arab Republic): I have two questions. First, in the case of the underground contained explosion, as stated in the paper, when the cavities collapsed 11 h after detonation, why was there such a long delay before the collapse occurred?

Secondly, are there any numerical or calculated data which would justify the assumption that future excavation projects will produce very small amounts of radioactivity?

G. W. JOHNSON (United States of America): The time which elapses before the cavities collapse is a statistical matter and is determined by the geological features of the site and the relative depth of emplacement of the explosive.

Radioactivity is limited largely to the rubble zone consisting of material that fell back into the crater. Generally the fraction contained is about 95% of that produced, but it depends on the nature of the medium. If a greater depth of emplacement were used, the amount of radioactivity released to the surface would be still less, but there would be some sacrifice of crater dimensions.

G. F. KENNEDY (United Kingdom): What is the maximum normal cost of excavation and the minimum amount of excavation involved in rock and in soft material which would presumably result in an economic advantage if nuclear explosives were used?

The structure of the ground above a nuclear explosion may be expected to be considerably shattered. To what extent would it be liable to subside if, for example, a canal were constructed?

G. W. JOHNSON (United States of America): The point at which the cost of using nuclear explosives

becomes competitive with that entailed by conventional methods depends on the specific nature of the task in hand. If the entire volume of the crater could be used, the cost might be competitive when nuclear explosives with a yield of 10 kilotons are used, but if only part of the volume could be used, as in the case of canals, it seems that it would become competitive when the yield is approximately 100 kilotons for rows of charges.

The stability of the slopes surrounding the crater is a very important factor, and some limited data have been obtained in a study of existing craters, in Nevada and on the Pacific atolls, and of craters caused by meteors. The question of what it would cost to trim or stabilize slopes is an open one but it is believed that the cost would be small in relation to the total cost of constructing, say, major sea-level canals.

Paper P/828 (presented by P. Platzek)

There was no discussion of this paper.

Paper P/862 (presented by T. Cless-Bernert)

DISCUSSION

B. MANOWITZ (United States of America): Have you considered using the ^{90}Sr beta-sources described for irradiating gases under pressure?

T. CLESS-BERNERT (Austria): Our source was specifically designed to irradiate liquids but it can, of course, be used for irradiating gases. The device shown in Figure 9 of the paper I presented can be evacuated or pressurized when the cells are mounted in parallel.

K. MAHMOUD (United Arab Republic): In view of the precautionary measures which have to be taken in preparing the radiotoxic beta-sources you mention, would their large-scale industrial application be warranted, i.e., their application on a scale which would enable them to compete with the well-known gamma-irradiation cells?

T. CLESS-BERNERT (Austria): Beta-irradiation sources can be very safe, especially when insoluble compounds of strontium are used (SrTiO_3). They can be used for irradiating food.

Paper P/879

There was no discussion of this paper.

Compte rendu de la séance 4.2

Applications diverses de l'énergie atomique

Président: H. Hulubei (Roumanie)

Mémoire P/542 (présenté par S. Roesinger)

DISCUSSION

B. MANOWITZ (Etats-Unis d'Amérique): Nous avons aussi étudié aux Etats-Unis les types de réacteurs en vue de la production de rayonnement gamma, et sommes arrivés à des conclusions très voisines de celles du Dr Roesinger en ce qui concerne les avantages des réacteurs « compound ». Je voudrais signaler, à propos du type de réacteur à fragments de fission qui a été mentionné, qu'on a fait aux Etats-Unis un important travail de développement, dont la plus grande partie est résumée dans le mémoire P/292. Des progrès ont été accomplis dans la mise au point de combustibles qui sont très minces mais ont une bonne stabilité de structure et une bonne stabilité sous rayonnement. Des renseignements sont aussi donnés sur la chimie par fragments de fission des systèmes ammoniac et oxygène-azote. Nos conclusions sont que l'utilisation de réacteurs à fragments de fission pour produire des réactions chimiques avec un rendement radiochimique compris entre 2 et 15 (notamment pour l'hydrazine et l'ozone) devrait être économiquement réalisable.

A propos du réacteur « compound » mentionné par le Dr Roesinger, je pense qu'une réaction réalisable avec un tel réacteur serait l'oxydation du benzène pour produire du phénol. Avez-vous fait une analyse économique détaillée de la production de phénol dans un réacteur « compound »?

S. ROESINGER (République fédérale d'Allemagne): Nous avons étudié l'oxydation du benzène pour produire du phénol et, comme le rendement radiochimique est à présent de l'ordre de 20, nous ne pensons pas pouvoir produire cette réaction dans le réacteur « compound ». Si le rendement radiochimique pouvait dépasser nettement 100 et si le problème de la manipulation de l'oxygène sous haute pression était résolu, il pourrait être possible de produire du phénol économiquement.

M. F. ABDEL-WAHAB (République arabe unie): Quel est le type de métal utilisé pour les chambres de réaction, et quelle est l'épaisseur minimale de paroi utilisée pour atténuer le rayonnement gamma? Je voudrais aussi demander quel matériau est utilisé dans la cuve pour la protection biologique, et si on a essayé de

déterminer la relation entre le volume d'eau dans la cuve et la dose mesurée à l'extérieur?

S. ROESINGER (République fédérale d'Allemagne): Le matériau utilisé dans la partie chimique du réacteur « compound » est choisi en fonction des exigences du processus chimique, car cette partie est hors du réacteur nucléaire. La paroi doit être aussi mince que possible; elle doit cependant être assez épaisse pour résister aux pressions qui peuvent se produire, par exemple pour les réactions à haute pression.

En réponse à votre seconde question, je dirai que nous avons pensé qu'une cuve d'eau constituerait une protection biologique satisfaisante, mais pour des installations permanentes on pourrait construire des protections en béton ou en plomb. Les doses ne devraient pas dépasser 0,1 à 1 mrem/h. Il serait facile d'obtenir ces valeurs, ou même des valeurs plus basses.

Mémoire P/389

DISCUSSION

B. MANOWITZ (Etats-Unis d'Amérique): Comme l'auteur l'indique, et comme on l'a observé ailleurs, le craquage thermique sous rayonnement de certaines coupes de pétrole peut avoir lieu à des températures inférieures de 100 °C environ aux températures correspondant au cas du craquage thermique, et la distribution des produits gazeux est différente de celle du craquage thermique, pour ces températures plus basses. Cependant, au point de vue économique il vaut mieux travailler à température élevée que d'utiliser la craquage thermique sous radiation. Même s'il y a quelques différences de distribution pour les fractions légères, elles n'ont probablement pas de sens économique, car on a mis au point des processus de recombinaison efficaces pour toutes les fractions légères. Il me semble que le résultat le plus significatif que l'auteur ait présenté est qu'il y a une nette diminution de la formation de produits noirs et de gommages par rapport à la pyrolyse. Le Dr Pollak a-t-il d'autres données sur l'importance de la diminution de la formation des fractions lourdes?

P. S. POLLAK (URSS): Le rendement en produits lourds décroît très nettement et ce phénomène a fait l'objet d'une étude spéciale. En fait, ce rendement

tombe pratiquement à la production de traces pour certains produits légers, qui dans les procédés normaux augmentent considérablement. le coût de séparation des produits.

Au point de vue économique, pour les applications chimiques, un réacteur qui constituerait l'unité essentielle d'un ensemble pétrochimique, donne l'efficacité économique de la combinaison des processus radiothermique et radiocatalytique.

Mémoire P/112 (présenté par L. Zagórski)

Ce mémoire n'a pas fait l'objet d'une discussion.

Mémoire P/197

DISCUSSION

A. H. W. ATEN (Pays-Bas): S'il faut un flux de neutrons rapides constant et si le courant est augmenté au fur et à mesure de la disparition du tritium, il y a d'autres solutions à ce problème en dehors de la solution mentionnée par le Dr Guinn dans la première section de son mémoire. Une solution possible consiste à utiliser des tubes à neutrons avec un faisceau d'ions composé d'un mélange de deutérons et de tritons. De cette façon, la cible est constamment rechargée en tritium. Il y a une demande croissante pour de tels tubes destinés à l'analyse par activation dans les laboratoires médicaux et industriels. De tels laboratoires sont souvent désireux d'avoir des générateurs de neutrons d'assez faible intensité, qui ne nécessitent pas de protection ou une protection peu importante.

On a essayé d'utiliser des convertisseurs formés de deutérum de lithium pour la production de neutrons de 14 MeV il y a plus de dix ans, mais les résultats ont été désappointants. Les flux se sont révélés beaucoup plus faibles qu'il n'était prévu. Je voudrais demander au Dr Guinn s'il existe maintenant un type convenable de convertisseur au deutérum de lithium. Sinon, l'un des spécialistes de réacteurs présents à cette conférence voudra peut-être étudier cette question.

V. P. GUINN (Etats-Unis d'Amérique): Il y a au moins un type de générateur de neutrons qui assure la régénération périodique des cibles tritiées par bombardement avec des ions T⁺. Un autre type, un modèle à tube scellé, utilise un faisceau mixte D⁺/T⁺, et il est garanti comme capable de fournir un flux de neutrons au moins égal à 10¹⁰ n/s pendant un minimum de 100 h.

Il y a quelques années, on a fait des mesures avec ⁶Li D. Elles ont montré qu'il y avait une bonne absorption des neutrons thermiques venant du réacteur; il n'y avait pratiquement pas d'absorption des neutrons rapides du réacteur, mais il y avait une légère augmentation du flux de neutrons rapides par les neutrons de 14 MeV de la réaction (d, t); j'espère améliorer l'aug-

mentation du flux dans une certaine mesure grâce à un appareil plus efficace. Même si cela est possible, l'amélioration ne pourrait pas être très grande, mais elle pourrait être suffisante pour avoir une valeur pratique.

Mémoire P/829 (présenté par M. Abdel-Rassoul)

DISCUSSION

V. P. GUINN (Etats-Unis d'Amérique): Il est dit dans le mémoire que la spectrométrie directe des rayons gamma a été essayée mais que les taux de comptage étaient trop faibles. Cependant quelques calculs montrent que les taux de désintégration gamma des types d'échantillons analysés devaient être très élevés. Par exemple, 4 g de votre échantillon Pb-3 devraient produire à peu près 20 million de dpm gamma, et 0,5 g de votre échantillon Al-2 devrait produire environ 2 millions de dpm gamma (dans chaque cas après 48 h dans un flux de 1,3.10¹³ et une à deux semaines de décroissance). Il devrait être possible, à mon avis, de détecter cinq des six éléments d'impuretés étudiés par spectrométrie gamma directe. Dans de tels échantillons, il faut encore déterminer le cadmium par séparation radiochimique. Dans l'échantillon Al-2, l'étain devrait aussi être déterminé radiochimiquement. Une utilisation plus grande des techniques instrumentales éviterait ainsi beaucoup d'efforts et de temps perdu, les séparations radiochimiques plus pénibles n'étant alors faites que dans le cas du cadmium, et peut-être de l'étain.

M. ABDEL-RASSOUL (République arabe unie): Après irradiation, tous les échantillons analysés avaient effectivement des taux de comptage gamma élevés. Cependant, après séparation des fractions individuelles et élimination des contaminations radiochimiques, le sélecteur utilisé indiquait que le taux de comptage de chaque espèce était insuffisant; ceci est peut-être dû à la faible efficacité de comptage du cristal utilisé.

Mémoire P/92 (présenté par D. Dautreppe)

DISCUSSION

V. P. GUINN (Etats-Unis d'Amérique): Comme le bombardement par des neutrons rapides d'un solide ordonné, à l'équilibre, produit des défauts qui ne sont pas à l'équilibre, ai-je raison de penser que vos transformations de réseau cristallin induites par neutrons conduisent à une nouvelle structure assez imparfaite, contenant de nombreux défauts?

D. DAUTREPPE (France): Oui. La nouvelle structure ordonnée conservera évidemment les défauts dont la température de guérison est supérieure à la température d'irradiation.

Mémoire P/291 (présenté par G. W. Johnson)

DISCUSSION

T. E. W. SCHUMANN (Afrique du Sud): A-t-on essayé d'estimer le coût et les autres facteurs impliqués dans la construction d'un second canal de Panama?

Je voudrais aussi demander s'il est possible de déterminer, à partir des expériences réalisées à ce jour, ce que représenterait un essai de déplacement d'un grand champ de glace de l'Antarctique, soit pour la fourniture d'eau douce, soit, par exemple, en vue d'influencer le climat d'une région tropicale au voisinage de laquelle la glace pourrait être amarrée.

G. W. JOHNSON (Etats-Unis d'Amérique): La construction d'un canal au niveau de la mer à travers l'isthme de Panama est étudiée depuis plusieurs années, et il semble qu'une excavation nucléaire pourrait être réalisée au tiers du coût de la conversion du canal actuel en un canal au niveau de la mer par des méthodes classiques, coût que l'on évalue à 2,3 milliards de dollars. Le problème de la radioactivité ne constitue plus un obstacle sérieux, car on estime maintenant que les retombées radioactives seraient 100 fois plus faibles que les prévisions faites en 1960.

Quant à votre seconde question, on pourrait sans doute détacher des icebergs de la calotte glaciaire de l'Antarctique, mais le coût du remorquage serait certainement prohibitif. Il n'y a pas eu d'explosions nucléaires dans de la glace, mais l'expérience acquise avec les explosifs chimiques indique que la glace ne se fracture pas trop.

K. MAHMOUD (République arabe unie): Je voudrais poser deux questions. Premièrement, dans le cas de l'explosion souterraine contenue (mentionnée dans le mémoire) où la cavité s'est effondrée 11 h après la détonation, pourquoi y a-t-il eu un si long délai avant l'effondrement?

Deuxièmement, y a-t-il des données numériques ou des calculs justifiant l'hypothèse selon laquelle de futurs projets d'excavation ne produiraient que de faibles quantités de radioactivité?

G. W. JOHNSON (Etats-Unis d'Amérique): Le temps qui s'écoule avant l'effondrement de la cavité est un problème statistique, et il est déterminé par les caractéristiques géologiques du site et la profondeur relative de l'emplacement de l'explosif.

La radioactivité est en grande partie limitée à la zone de débris formée de matériaux qui sont retombés dans le cratère. En général, la fraction contenue est d'environ 95% de la radioactivité produite, mais ce pourcentage dépend de la nature du milieu. Si on utilisait un emplacement à plus grande profondeur, la quantité de radioactivité libérée à la surface serait encore plus faible, mais il faudrait sacrifier un peu les dimensions du cratère.

G. F. KENNEDY (Royaume-Uni): Quel est le coût normal maximal d'excavation et quel est le volume minimal d'excavation dans du roc et dans des matériaux tendres qui conduiraient probablement à un avantage économique en faveur des explosifs nucléaires?

On peut s'attendre à ce que la structure du sol au-dessus d'une explosion nucléaire soit considérablement perturbée. Dans quelle mesure le sol est-il susceptible de s'affaisser si, par exemple, on construit un canal?

G. W. JOHNSON (Etats-Unis d'Amérique): Le point auquel le coût d'utilisation des explosifs nucléaires devient compétitif avec celui qui correspond aux méthodes classiques dépend de la nature spécifique de la tâche à accomplir. Si on pouvait utiliser le volume entier du cratère, le prix pourrait être compétitif pour l'utilisation d'explosifs donnant un rendement de 10 kilotonnes, mais si on ne peut utiliser qu'une partie du volume, comme dans le cas d'un canal, il semble que le prix deviendrait compétitif pour un rendement de l'ordre de 100 kilotonnes pour des rangées de charges.

La stabilité des pentes qui entourent le cratère est un facteur très important, et quelques données limitées ont été fournies par l'étude des cratères existants, au Nevada et sur les atolls du Pacifique, et des cratères formés par des météorites. La question de savoir ce que coûterait la mise en état ou la stabilisation des pentes n'a pas reçu de réponse, mais on pense que le coût serait faible par rapport au coût total de construction, par exemple, d'un canal important au niveau de la mer.

Mémoire P/828 (présenté par P. Platzek)

Ce mémoire n'a pas fait l'objet d'une discussion.

Mémoire P/862 (présenté par T. Cless-Bernert)

DISCUSSION

B. MANOWITZ (Etats-Unis d'Amérique): Avez-vous envisagé d'utiliser les sources bêta à ^{90}Sr qui sont décrites dans le mémoire, pour irradier des gaz sous pression?

T. CLESS-BERNERT (Autriche): Notre source a été spécifiquement conçue pour irradier des liquides, mais on peut, naturellement, l'utiliser pour irradier des gaz. L'appareil que montre la figure 9 du mémoire que j'ai présenté peut être mis sous vide ou sous pression quand les cellules sont montées en parallèle.

K. MAHMOUD (République arabe unie): En raison des mesures de précaution qu'il faut prendre dans la préparation des sources bêta radiotoxiques que vous avez mentionnées, leur utilisation industrielle à grande échelle serait-elle justifiée, c'est-à-dire leur application

à une échelle leur permettant d'entrer en compétition avec les cellules d'irradiation gamma bien connues?

T. CLESS-BERNERT (Autriche): Les sources d'irradiation bêta peuvent être très sûres, spécialement quand elles utilisent des composés insolubles du

strontium (SrTiO_3). On peut les utiliser pour irradier des aliments.

Mémoire P/879

Ce mémoire n'a pas fait l'objet d'une discussion.

Протокол заседания 4.2

Различные применения атомной энергии

Председатель: X. Хулубей (Румыния)

Доклад P/542 (представил С. Рёзингер)

ДИСКУССИЯ

В. МАНОВИЦ (США): В Соединенных Штатах мы также рассматривали типы реакторов с точки зрения получения γ -излучения и пришли к выводу о преимуществе «комбинированных» реакторов, которые очень похожи на те, о которых упоминал доктор Рёзингер. Что касается типа реактора на осколках деления, то мне хотелось бы отметить, что в Соединенных Штатах было проведено значительное количество опытно-конструкторских работ по этому реактору, о большинстве которых сообщается в докладе P/292. Достигнуты успехи в разработке топлив, которые имеют очень небольшую толщину, но обладают очень хорошей конструкционной структурной и радиационной стабильностью. Приводятся также данные по химии осколков деления для систем аммиак и кислород — азот. Мы пришли к выводу, что использование реакторов на осколках деления для инициирования химических реакций, для которых коэффициент G лежит в пределах от 2 до 15 (то есть гидразин и озон), должно быть экономически рентабельным.

Что касается «комбинированного» реактора, о котором упоминал д-р Рёзингер, то, по моему мнению, одной из реакций, которая может быть осуществлена в таком реакторе, является реакция окисления бензола с целью получения фенола. Проводился ли детальный анализ экономики получения фенола в «комбинированном» реакторе?

С. РЕЗИНГЕР (ФРГ): Мы изучали окисление бензола для получения фенола, и, поскольку величина коэффициента G в настоящее время составляет около 20, мы не считаем возможным инициировать эту реакцию в «комбинированном» реакторе. Если удастся повысить значение G более 100 и решить проблему работы с кислородом, находящимся под большим

давлением в смеси, то появится возможность экономически рентабельного получения фенола.

М. АБДЕЛЬ ВАХАБ (ОАР): Из какого металла изготовлены реакционные сосуды и какая используется минимальная толщина стенки для ослабления γ -излучения? Я хотел бы также спросить, какой материал был использован для биологической защиты в баке и предпринималась ли какая-либо попытка определить зависимость между объемом воды в баке и мощностью дозы, измеренной с наружной стороны бака?

С. РЕЗИНГЕР (ФРГ): Материал, использованный в химической части «комбинированного» реактора, выбран в соответствии с условиями химического процесса, поскольку эта часть расположена вне ядерного реактора. Стенка должна быть по возможности тоньше, однако толщина должна быть достаточной для того, чтобы выдержать любое давление, которое может возникнуть, например, при реакциях высокого давления.

Что касается Вашего второго вопроса, то бак с водой, по нашему мнению, служит удобной биологической защитой, но для постоянных установок можно рассмотреть применение бетонной или свинцовой защиты. Мощность дозы не должна превышать 0,1—1 мбэр/ч. Такие или даже более низкие значения легко обеспечить.

Доклад P/389

ДИСКУССИЯ

В. МАНОВИЦ (США): Как показал автор и как это наблюдалось в других исследованиях, радиационно-термический крекинг некоторых видов сырой нефти может осуществляться при температурах, которые на 100°C ниже температуры термического крекинга, и распределение газообразных продуктов отличается от распределения этих продуктов при термическом

крекинге при указанной пониженной температуре. Однако с экономической точки зрения значительно дешевле вести процесс при повышенной температуре по сравнению с использованием радиационно-термического крекинга. Несмотря на то что имеются некоторые различия в распределении легких фракций, они, вероятно, не являются экономически значительными, поскольку для всех легких фракций разработаны эффективные рекомбинационные процессы. Мне кажется, что наиболее важным результатом, который представил автор, является резкое уменьшение в образовании сажи и смол по сравнению с пиролизом. Не может ли д-р Полак привести дополнительные данные о степени уменьшения образования тяжелой фракции?

П. С. ПОЛАК (СССР): Выход тяжелых продуктов резко уменьшается, и это явление было предметом специального исследования. Практически он снижается до следов некоторых легких продуктов, тогда как в обычных процессах наличие больших количеств таких продуктов существенно повышает стоимость разделения этих продуктов.

С экономической точки зрения энергетически-химический реактор, который является основной установкой нефтехимического комбината, обеспечивает экономическую эффективность комбинированных радиотермических и радиокаталитических процессов.

Доклад P/112 (представил Э. Загорский)

По этому докладу дискуссии не было.

Доклад P/197

ДИСКУССИЯ

А. Х. В. АТЕН (Нидерланды): Если необходим постоянный поток быстрых нейтронов, а ток возрастает по мере истощения трития, то существуют другие решения этой проблемы помимо решения, указанного д-ром Гуинном в первом разделе его доклада. Другое решение состоит в использовании нейтронных трубок с ионным пучком, состоящим из дейтронов, смешанных с тритонами. Таким путем мишень постоянно пополняется тритием. Возрастает спрос на такие трубки для использования при акти-вационном анализе в медицинских и промышленных лабораториях. Особый интерес для таких лабораторий часто представляют генераторы нейтронов с относительно малым выходом, для которых требуется очень небольшая защита или ее совершенно не требуется.

Более десяти лет назад была сделана попытка использовать преобразователи из дейтеридов лития для получения нейтронов с энергией 14 Мэв, но результаты были неудачными. Полученные потоки оказались значительно меньше, чем ожидалось. Я хотел бы спросить д-ра Гуинна, имеется ли в настоящее время удо-

летворительная конструкция преобразователя из дейтеридов лития. Если такой конструкции нет, то, может быть, кто-нибудь из присутствующих здесь специалистов по реакторам захочет изучить этот вопрос.

В. П. ГУИНН (США): По крайней мере, один тип генератора нейтронов позволяет производить периодическую регенерацию тритиевых мишеней посредством бомбардировки T^+ -ионами. В другом типе генератора с герметичной трубкой используется смешанный D^+/T^+ -пучок, что обеспечивает гарантированный выход нейтронов не менее 10^{10} нейтр/сек в течение 100 ч или более длительного периода.

Несколько лет назад были проведены измерения Li^6D . Они показали хорошее поглощение бомбардирующих тепловых нейтронов из реактора; существенного поглощения быстрых нейтронов из реактора не наблюдалось, но имело место небольшое увеличение потока быстрых нейтронов под воздействием (d, t) нейтронов с энергией 14 Мэв. Я надеюсь повысить еще до некоторой степени поток путем усовершенствования конструкции. Даже если это удастся осуществить, то усовершенствование, как полагают, не будет очень большим, но оно может быть достаточным для практических целей.

Доклад P/829 (представил М. Абдель-Расул)

ДИСКУССИЯ

В. П. ГУИНН (США): В докладе говорится, что была применена непосредственная γ -спектрометрия, но скорости счета были слишком малы. Однако несколько расчетов показывают, что скорости γ -распада подвергнутых анализу типов образцов должны быть очень высокими. Например, 4г образца Pb-3 должны дать около 20 млн. γ -распадов, а 0,5 г образца Al-2 — около 2 млн. γ -распадов (в каждом случае после 48 ч при потоке $1,3 \cdot 10^{13}$ в одно-двухнедельном распаде). По моему мнению, должна быть возможность обнаружить пять или шесть элементов примесей при изучении путем прямой γ -спектрометрии. В таких образцах кадмий все еще придется определять путем радиохимического разделения. В образце Al-2 олово также необходимо определять радиохимическим путем. Таким образом, большее использование приборов позволит сберечь значительное время и усилия, а более трудоемкие радиохимические разделения придется проводить только в случае кадмия и, возможно, олова.

М. АБДЕЛЬ-РАССУЛ (ОАР): После облучения все подвергнутые анализу образцы показали действительно высокие скорости γ -распада. Однако после отделения определенных фракций и удаления радиохимических загрязнений ис-

пользованная амплитудно-импульсная система показала, что скорость счета для каждого вида была недостаточно высокой; это можно объяснить небольшой эффективностью счета использованного кристалла.

Доклад P/92 (представил Д. Дотрепп)

ДИСКУССИЯ

В. П. ГУИНН (США): Поскольку бомбардировка нейтронами равновесного упорядоченного твердого тела приводит к появлению неуравновешенных дефектов, то прав ли я, когда я допускаю, что вызванные нейтронами превращения кристаллической решетки приводят в результате к образованию довольно несовершенной новой структуры с большим количеством дефектов?

Д. ДОТРЕПП (Франция): Да. В новой упорядоченной структуре, очевидно, сохранятся дефекты, температура отжига которых выше температуры облучения.

Доклад P/291 (представил Г. У. Джонсон)

ДИСКУССИЯ

Т. Э. В. ШУМАНН (ЮАР): Делались ли какие-либо оценки расходов и других факторов, связанных со строительством второго Панамского канала?

Я хотел бы также спросить, можно ли определить на основе проведенных к настоящему времени экспериментов, с чем будет связана попытка отколоть от Антарктики громадный ледник для использования его в качестве источника пресной воды или, например, для оказания влияния на климат какой-нибудь тропической страны, к которой можно доставить этот ледник.

Г. У. ДЖОНСОН (США): Строительство канала через Панамский перешеек на уровне моря изучалось в течение нескольких лет и, по видимому, стоимость использования ядерных взрывчатых веществ для выполнения необходимых работ по выемке грунта составит одну треть от стоимости превращения существующего канала в канал на уровне моря, с использованием обычных методов строительства, которая оценивается в 2,3 млрд. долларов. Проблема радиоактивности не является больше таким серьезным препятствием, поскольку по современным оценкам величина радиоактивных выпадений будет в 100 раз меньше, чем подсчитанная в 1960 г.

Что касается Вашего второго вопроса, то от антарктических льдов, вероятно, можно отколоть айсберги, но стоимость их буксировки к месту назначения несомненно явится непреодолимым препятствием. Во льдах не проводи-

лось ядерных взрывов, но опыт, полученный с химическими взрывчатыми веществами, показывает, что во льду не образуется избыточного количества трещин.

К. МАХМУД (ОАР): У меня есть два вопроса. Во-первых, в случае подземного взрыва, как указано в докладе, когда образовавшиеся в результате взрыва полости обрушились через 11 ч после взрыва, почему прошел такой большой промежуток времени прежде, чем они обрушились?

Во-вторых, есть ли какие-либо цифровые или расчетные данные, которые подтвердили бы допущение о том, что в будущем использование ядерной взрывчатки для выемки грунта будет связано с образованием очень небольших количеств радиоактивности?

Г. У. ДЖОНСОН (США): Промежуток времени, который проходит прежде, чем обрушатся полости, носит статический характер и определяется геологическими особенностями участка и относительной глубиной, на которую закладывается взрывчатка.

Радиоактивность ограничивается в основном дислокационной зоной, состоящей из материала, который упал обратно в кратер обрушения. Как правило, доля находящегося в кратере материала составляет около 95% количества такого материала, образовавшегося при взрыве, но она зависит от природы среды. При использовании большей глубины заложения взрывчатки количество подавшей на поверхность радиоактивности будет еще меньше, но при этом размеры кратера уменьшатся.

Г. Ф. КЕННЕДИ (Соединенное Королевство): Какова максимальная нормальная стоимость работ по выемке грунта и каков минимальный объем выемки скальных пород и мягких пород, который, вероятно, даст экономическую выгоду при использовании ядерных взрывчатых веществ?

Можно ожидать, что структура земли поверх ядерного взрыва будет в значительной степени разрушена. В какой степени следует ожидать оседаний грунта, если, например, построить таким образом канал?

Г. У. ДЖОНСОН (США): Точка, в которой использование ядерных взрывчатых веществ становится экономически рентабельным по сравнению с обычными методами, зависит от специфических особенностей поставленной задачи. Если может быть использован весь объем получаемого кратера, то рентабельным может быть применение ядерных взрывчатых веществ с мощностью взрыва 10 кт. Но, если можно использовать только часть объема кратера, как это имеет место в случае каналов, то применение ядерных взрывчатых веществ становится рентабельным при общей мощности взрыва ряда зарядов примерно 100 кт.

Стабильность склонов кратера является очень важным фактором, и некоторое число ограни-

ченных данных было получено в результате изучения существующих кратеров в Неваде и на атоллах в Тихом океане, а также кратеров, образованных падающими метеоритами. Вопрос о том, какова будет стоимость приведения в порядок или стабилизации склонов, является открытым, но, как полагают, эта стоимость будет мала по сравнению с общей стоимостью строительства, например, крупных каналов на уровне моря.

Доклад P/828 (представил П. Плацен)

По этому докладу дискуссии не было.

Доклад P/862 (представил Т. Клесс-Бернерт)

ДИСКУССИЯ

В. МАНОВИЦ (США): Обсуждали ли Вы возможность использования рассмотренных β -

источников из Sr^{90} для облучения газов под давлением?

Т. КЛЕСС-БЕРНЕРТ (Австрия): Наш источник был создан специально для облучения жидкостей, но его, конечно, можно использовать и для облучения газов. В устройстве, показанном на рис. 9 в представленном мной докладе, можно создавать разрежение или повышать давление, когда камеры установлены параллельно.

К. МАХМУД (ОАР): Учитывая меры предосторожности, которые необходимо принимать при приготовлении радиотоксичных β -излучателей, о которых Вы говорили, будет ли оправданным их широкое промышленное применение, то есть их применение в масштабе, который позволил бы им конкурировать с хорошо известными γ -излучателями?

Т. КЛЕСС-БЕРНЕРТ (Австрия): β -излучатели могут быть очень безопасными, особенно если используются нерастворимые соединения стронция (SrTiO_3). Их можно применять для облучения пищевых продуктов.

Acta de la sesión 4.2

Aplicaciones diversas de la energía atómica

Presidente: H. Hulubei (Rumania)

Documento P/542 (presentado por S. Roesinger)

DISCUSIÓN

B. MANOWITZ (Estados Unidos de América): Hemos analizado ampliamente en los Estados Unidos distintos tipos de reactor para la producción de radiación gamma, y hemos llegado a conclusiones respecto a las ventajas de los reactores « compuestos », que son muy semejantes a los mencionados por el Dr. Roesinger. Deseo puntualizar, respecto al tipo de productos de fisión del citado reactor, que se ha realizado una labor importante de desarrollo, en los Estados Unidos, resumida en su mayor parte en el documento P/292. Se ha progresado en el desarrollo de combustibles que, a pesar de ser muy finos, presentan una buena estabilidad estructural y a la radiación. Se suministra igualmente información respecto a la química de productos de fisión en sistemas de amoníaco y oxígeno-nitrógeno. Nuestras conclusiones son que sería económicamente factible la utilización de reactores de productos de fisión para la producción de ciertas reacciones químicas cuyos valores de G se encuentran en el intervalo de 2 a 15 (tales como hidracina y ozono).

Con relación al reactor « compuesto » mencionado por el Dr. Roesinger, creo que una reacción factible en él sería la oxidación de benceno a fenol. ¿Se ha realizado algún estudio económico detallado sobre el coste de producción de fenol en un reactor « compuesto »?

S. ROESINGER (República Federal de Alemania): Hemos estudiado la oxidación de benceno para la producción de fenol, pero, dado que hasta el momento el valor máximo de G alcanzado es aproximadamente de 20, no consideramos factible la producción mediante esta reacción en el reactor « compuesto ». Tan sólo sería económica si se pudiera incrementar el valor de G por encima de 100 y se resolviera el problema del manejo de oxígeno a presión elevada en la mezcla.

M. F. ABDEL-WAHAB (República Árabe Unida): ¿Qué tipo de metal se ha utilizado en las vasijas de reacción y cuál es el espesor mínimo de pared empleado para atenuar la radiación gamma? Desearía igualmente saber qué tipo de material se ha usado en el tanque para la protección biológica, y si se ha intentado determinar la relación entre el volumen de agua en el tanque y la dosis de radiación medida en su exterior.

S. ROESINGER (República Federal de Alemania): El material en la parte química del reactor « compuesto » se elige de acuerdo con las necesidades del proceso químico ya que esta parte es exterior al reactor nuclear. La pared deberá ser lo más delgada posible, pero con todo, suficientemente gruesa como para resistir sobrepresiones eventuales que puedan surgir, por ejemplo, en reacciones a presión elevada.

Referente a su segunda pregunta, consideramos que un tanque de agua serviría como protección biológica conveniente, pero, para instalaciones permanentes, se pueden construir blindajes de cemento o plomo. La dosis de radiación no deberá exceder de 0,1 a 1 mrem/h. Estos valores, o incluso más bajos, serán fáciles de alcanzar.

Documento P/389

DISCUSIÓN

B. MANOWITZ (Estados Unidos de América): Tal como el autor indica, y se ha observado ya, el craqueo térmico por radiación de ciertos aceites puede tener lugar a temperaturas 100 °C inferiores a las necesarias en el craqueo térmico, y la distribución de productos gaseosos es distinta a la del craqueo térmico a temperatura inferior. Sin embargo, desde un punto de vista económico, es mucho más barato trabajar a temperatura elevada que utilizar el craqueo térmico por radiación. Incluso si existen diferencias de distribución de las fracciones ligeras, no son económicamente significativas, ya que pueden desarrollarse procesos eficientes de recombinación para todas las fracciones ligeras. A mí me parece que el resultado más significativo presentado por el autor es la afirmación de que el descenso es acusado en la formación de alquitrán y gomas en comparación con la pirólisis. ¿Posee el Dr. Pollak datos adicionales sobre la medida del descenso de formación de la fracción pesada?

P. S. POLLAK (URSS): El rendimiento de productos pesados disminuye bruscamente, y este fenómeno ha sido objeto de investigación especial. En efecto, el rendimiento de la fracción pesada se reduce virtualmente a trazas de ciertos productos ligeros, que en procesos normales aumenta considerablemente el costo de separación de productos.

Desde el punto de vista económico, un reactor de potencia químico, que será la unidad básica del complejo petroquímico, asegura la efectividad económica de los procesos combinados radiotérmico y radiocatalítico.

Documento P/112 (presentado por Z. Zagórski)

No hubo discusión de esta memoria.

Documento P/197

DISCUSIÓN

A. H. W. ATEN (Países Bajos): Si se necesita un flujo constante de neutrones rápidos y se aumenta la corriente a medida que se agota el tritio, existen otras soluciones del problema, aparte de la mencionada por el Dr. Guinn en la primera parte de su memoria. Los tubos de neutrones de haz iónico mixto de tritones y deuterones, ofrecen otra posible solución y permiten la reposición constante de tritio en el blanco. Existe una demanda creciente de este tipo de tubo, para la realización de análisis por activación y en laboratorios médicos e industriales, que están particularmente interesados en generadores de neutrones, de salida más bien baja, pero que requieren poco o ningún apantallamiento.

Hace más de 10 años se intentó la utilización de convertidores de deuteruro de litio, para la producción de neutrones de 14 MeV, pero los resultados han sido decepcionantes, ya que los flujos obtenidos han sido muy inferiores a los previstos. Descaría preguntar al Dr. Guinn si existe actualmente algún dispositivo adecuado para el convertidor de deuteruro de litio. En caso negativo, tal vez alguno de los especialistas en reactores presente en la Conferencia pudiera estudiar el tema.

V. P. GUINN (Estados Unidos de América): Por lo menos en un tipo de tubo productor de neutrones se efectúa una regeneración periódica, bombardeando los blancos de litio con iones de tritio. En otro tipo de tubo de cierre hermético, se usa un haz mixto D^+/T^+ , y se garantiza que mantiene una producción de neutrones por lo menos de 10^{10} n/s, durante un tiempo mínimo de 100 horas.

Hace algunos años, se hicieron medidas con ${}^6\text{Li D}$, y se observó una buena absorción de los neutrones térmicos incidentes. No hubo esencialmente absorción de neutrones rápidos del reactor, pero sí un ligero aumento de flujo, debido a los neutrones de 14 MeV originados en la reacción (d, t). Confío en incrementar algo este aumento de flujo con un diseño más eficiente. Aún en el caso en que esto sea posible, no se espera una gran mejora, pero ésta puede ser suficiente para tener valor práctico.

Documento P/829 (presentado por A. A. Abdel-Rassoul)

DISCUSIÓN

V. P. GUINN (Estados Unidos de América): En la memoria se afirma que se eligió la espectrometría gamma directa, pero que los ritmos de recuento fueron muy bajos. Sin embargo, un pequeño cálculo indica que las actividades gamma en los tipos de muestras analizadas podían ser muy elevadas. Por ejemplo, 4 g de su muestra Pb-3, producirían unos

2×10^7 y pdm y 0,5 g de la Al-2, unas 2×10^6 y dpm (en ambos casos tras una irradiación de 48 horas en un flujo de $1,3 \times 10^{13}$ n/cm² s, y una o dos semanas de espera antes de la medida). Creo que sería posible la detección de cinco de los seis elementos de impurezas estudiados por espectrometría gamma directa. En estas muestras, el cadmio podría determinarse por separación radioquímica. En la muestra Al-2 podría determinarse radioquímicamente el estaño. La utilización más cuidadosa de las técnicas instrumentales podría así ahorrar considerablemente tiempo y esfuerzos, y solamente se efectuarían las engorrosas separaciones radioquímicas en el caso del cadmio, y tal vez del estaño.

A. A. ABDEL-RASSOUL (República Árabe Unida): Después de la irradiación, todas las muestras analizadas poseen una actividad gamma muy elevada. Sin embargo, después de la separación de las fracciones individuales y de la eliminación de los contaminantes radioquímicos, el dispositivo espectrométrico utilizado indica que el ritmo de recuento en cada caso no era suficiente, lo cual puede atribuirse al rendimiento bajo del cristal utilizado.

Documento P/92 (presentado por D. Dautreppe)

DISCUSIÓN

V. P. GUINN (Estados Unidos de América): Puesto que el bombardeo con neutrones rápidos de un sólido equilibradamente ordenado da lugar a defectos en desequilibrio, ¿estoy en lo cierto al suponer que las transformaciones en la red cristalina por la acción de los neutrones da lugar a una nueva estructura imperfecta que contiene muchos defectos?

D. DAUTREPPE (Francia): La respuesta es afirmativa. La nueva estructura reordenada mantendrá obviamente aquellos defectos cuya temperatura de recocido sea más elevada que la irradiación.

Documento P/291 (presentado por G. W. Johnson)

DISCUSIÓN

T. E. W. SCHUMANN (Sudáfrica): ¿Se ha realizado alguna estimación acerca del coste y otros factores relacionados con la construcción de un segundo canal de Panamá?

Desearía saber también si es posible determinar, a partir de experiencias efectuadas hasta el momento, las condiciones de arranque de un vasto témpano de hielo de la Antártida, bien para el suministro de agua fría, o por ejemplo para alterar el clima de algún país tropical en cuya proximidad pudiera anclarse el témpano.

G. W. JOHNSON (Estados Unidos de América): La construcción de un canal al nivel del mar en el istmo de Panamá ha sido estudiada durante varios años, y parece ser que la excavación nuclear para la conversión

del actual canal, en otro al nivel del mar, puede realizarse a la tercera parte del coste requerido por métodos convencionales, que se cifra en 2 300 millones de dólares. El problema de la radiactividad ya no constituye un obstáculo serio puesto que ahora se estima que la precipitación radiactiva sería unas 100 veces inferior a la estimada en 1960.

Respecto a su segunda pregunta, podrían probablemente arrancarse témpanos de hielo del casquete antártico, pero indudablemente los gastos de remolque serían prohibitivos. No existe experiencia sobre explosiones nucleares en hielo, pero la obtenida con explosivos químicos indica que el hielo no se resquebraja excesivamente.

K. MAHMOUD (República Árabe Unida): Deseo formular dos preguntas. La primera, en el caso de una explosión subterránea confinada, como se indica en la memoria, donde la cavidad se cierra 11 horas después de la detonación, ¿por qué existe tan largo retardo en el cierre?

En segundo lugar, ¿existen datos numéricos o cálculos que puedan justificar la suposición de que en las futuras excavaciones se produzca un mínimo de radiactividad?

G. W. JOHNSON (Estados Unidos de América): El tiempo que transcurre hasta que se cierra la cavidad es de naturaleza estadística y viene determinado por las características geológicas del lugar y la profundidad relativa de localización del explosivo.

La radiactividad viene limitada en su mayor parte por la zona de cascotes, consistente en los materiales que se derrumban en el cráter, y que retiene, por lo general, aproximadamente el 95% de la radiactividad producida: la proporción en cada caso depende de la naturaleza del lugar. A medida que aumenta la profundidad del emplazamiento disminuye la proporción de radiactividad liberada en la superficie, pero a cambio de sacrificar las dimensiones del cráter.

G. F. KENNEDY (Reino Unido): ¿Cuál es el coste normal máximo de excavación y el volumen mínimo en rocas y materiales blandos que ofrece ventajas económicas en el caso de empleo de explosivos nucleares?

Es previsible que la estructura del suelo sobre el que tiene lugar una explosión nuclear quede considerablemente resquebrajada. ¿En qué medida sería evitable este efecto, por ejemplo, en la construcción de un canal?

G. W. JOHNSON (Estados Unidos de América): El punto en que el coste de utilización de explosivos nucleares puede competir con el de los métodos convencionales depende de la naturaleza específica de la excavación. Si el volumen completo del cráter es utilizable, el coste puede ser competitivo a partir de 10 kt, pero, si únicamente es utilizable una fracción

del volumen excavado, tal como ocurre en los canales, el precio es competitivo por encima de las 100 kt.

La estabilidad de los taludes que circundan el cráter es un factor muy importante, y se han obtenido algunos datos limitados, a través del estudio de cráteres existentes en Nevada y en atolones del Pacífico, así como en los cráteres producidos por meteoritos. La pregunta sobre el coste de desbaste o estabilización de los taludes está aún por contestar, pero se supone que sería pequeño en relación con el del total de la construcción, por ejemplo, en canales a nivel del mar.

Documento P/828 (presentado por P. Platzek)

No hubo discusión de esta memoria.

Documento P/862 (presentado por T. Cless-Bernert)

DISCUSIÓN

B. MANOWITZ (Estados Unidos de América): ¿Ha considerado Vd. el uso de la fuente beta de ^{90}Sr descrita para irradiar gases a presión?

T. CLESS-BERNERT (Austria): Nuestra fuente fue específicamente diseñada para la irradiación de líquidos, pero puede evidentemente emplearse para irradiar gases. El dispositivo mostrado en la figura 9 de la memoria que he presentado puede ser evacuado o presurizado cuando las celdas se montan en paralelo.

K. MAHMOUD (República Árabe Unida): En vista de las medidas de precaución que Vd. ha tomado para preparar las fuentes beta radiactivas mencionadas, ¿podría garantizarse su aplicación industrial en gran escala, en plan competitivo con las bien conocidas celdas de irradiación gamma?

T. CLESS-BERNERT (Austria): Las fuentes de irradiación beta pueden ser muy seguras especialmente cuando se utilizan compuestos insolubles de estroncio (SrTiO_3). Estas fuentes pueden utilizarse para la irradiación de alimentos.

Documento P/879

No hubo discusión de esta memoria.

List of Volumes

PEACEFUL USES OF ATOMIC ENERGY

Proceedings of the Third International Conference held at Geneva, 31 August-9 September 1964

The full list of the sixteen volumes comprising the multilingual edition of the Proceedings is given below. The sessional titles are included to show the main subjects dealt with in each individual volume.

Volume 1

Progress in Atomic Energy

Programme of the Conference

A Opening of the Conference

B New Economic Data. Energy Needs in Coming Years and the Role of Nuclear Power in Meeting these Needs

1.6 Technical and Economic Aspects of the Use of Nuclear Power

C International Collaboration in Nuclear Reactor Projects, including Developments of Major Co-operative Installations

H Closing of the Conference

Evening Lecture

Scientific Exhibition

Volume 2

Reactor Physics

3.1 New Developments in Reactor Physics

Volume 3

Reactor Studies and Performance

3.2 Lattice Studies and Critical Experiments

3.3 Reactor Performance

Volume 4

Reactor Control

3.4 Reactor Kinetics

3.5 Reactor Control and Shielding

Volume 5

Nuclear Reactors — I. Gas-cooled and Water-cooled Reactors

1.1 Gas-cooled and Graphite-moderated Reactors

1.2 Light-water Reactors

1.3 Heavy-water and Organic Reactors

Volume 6

Nuclear Reactors — II. Fast Reactors and Advanced Concepts

1.4 Fast Reactor Physics and Breeders

1.5 Superheating and Advanced Concepts

1.7 Reactors of Special Applications. Future Developments

Volume 7

Research and Testing Reactors

D Research Reactors

1.9 High Flux Reactors for Material Testing

1.8 Very High Flux Reactors, Construction and Uses

Volume 8

Reactor Engineering and Equipment

- 1.10 Heat Transfer
- 1.11 Hydraulic Problems of Reactor Engineering
- 3.7 Reactor Plant Equipment

Volume 9

Reactor Materials

- 2.8 Structural Materials
- 2.9 Structural and Control Materials and Moderators
- 2.4 Corrosion Studies. Non-destructive Testing

Volume 10

Nuclear Fuels — I. Fabrication and Reprocessing

- 2.3 Fuel Element Fabrication and Experience
- 2.6 Fuel Reprocessing, Part I
- 2.7 Fuel Reprocessing, Part II

Volume 11

Nuclear Fuels — II. Types and Economics

- 2.5 Economics of the Fuel Cycle
- 2.1 Metallic and Various Fuels
- 2.2 Ceramic Fuels

Volume 12

Nuclear Fuels — III. Raw Materials

- 2.11 Resources and Requirements
- 2.12 Prospecting Techniques and Recovery from Ores
- 2.10 Isotope Separation

Volume 13

Nuclear Safety

- 3.9 Nuclear Safety Research
- 3.8 Chemical Processing Plant Safety; Fuel Transport
- 3.6 Reactor Safety; Location and Containment; Reactor Tests

Volume 14

Environmental Aspects of Atomic Energy and Waste Management

- 3.10 Safety Aspects of Large-scale Use of Atomic Energy. Measurement and Limitation of Exposure in Radiation Emergencies
- 3.11 Radioactive Waste Management

Volume 15

Special Aspects of Nuclear Energy and Isotope Applications

E Controlled Nuclear Fusion

- 4.1 Direct Conversion of Heat to Electricity

F Applications of Isotopes and Radiation Sources in the Physical Sciences

G Applications of Isotopes and Radiation Sources in the Life Sciences

- 4.2 Miscellaneous Applications of Atomic Energy

Volume 16

List of Papers and Indexes

- List of Papers
- Author Index
- Country Index
- Sessional Index



**L'UTILISATION
DE L'ÉNERGIE ATOMIQUE
À DES FINS PACIFIQUES**

**ИСПОЛЬЗОВАНИЕ
АТОМНОЙ ЭНЕРГИИ
В МИРНЫХ ЦЕЛЯХ**

**LA UTILIZACION
DE LA ENERGIA ATOMICA
CON FINES PACIFICOS**

MULTILINGUAL EDITION • ÉDITION MULTILINGUE • МНОГОЯЗЫЧНОЕ ИЗДАНИЕ • EDICION PLURILINGÜE