

УДК 681,3 : 621.384.8

Автоматизированная измерительная система изотопного масс-спектрометра с непосредственным интегрированием ионных токов. Гольдин А. А., Гузиков Е. С., Исаков Ю. А., Либерман А. З., Манойлов В. В. — В кн.: Научное приборостроение. Теоретические и экспериментальные исследования. Л.: Наука, 1984, с. 145—153.

Использование метода непосредственного интегрирования в изотопной масс-спектрометрии дает возможность повысить чувствительность, точность и расширить динамический диапазон при измерении ионных токов. Рассматриваются основные причины погрешностей измерения и меры их снижения. Описана структурная схема и основные узлы автоматизированной системы измерения. В состав системы входят: интегрирующий электромметр, преобразователь напряжения в частоту, ЭВМ «Искра-126», селектор пиков и интерфейсный блок для организации байтового обмена данными между ЭВМ и масс-спектрометром. Порог чувствительности системы $2 \cdot 10^{-17}$ А, динамический диапазон измеряемых токов $6 \cdot 10^6$. Сходимость измерений отношений ионных токов в диапазоне $10^{-18} + 10^{-10}$ А — 0.02%. Лит. — 17 назв., ил. — 4.

АВТОМАТИЗИРОВАННАЯ ИЗМЕРИТЕЛЬНАЯ СИСТЕМА ИЗОТОПНОГО МАСС-СПЕКТРОМЕТРА С НЕПОСРЕДСТВЕННЫМ ИНТЕГРИРОВАНИЕМ ИОННЫХ ТОКОВ

Перспективным методом повышения точности изотопного анализа является непосредственное интегрирование ионных токов, которое дает возможность повысить чувствительность, точность и расширить динамический диапазон измерения [1, 2]. В работе [1] рассмотрена измерительная система, реализующая метод непосредственного интегрирования ионных токов. Положительные результаты, полученные при испытаниях системы в составе масс-спектрометра МИ1320, явились предпосылкой к разработке автоматизированной системы измерения и регистрации изотопных отношений с использованием ЭВМ для нового поколения изотопных масс-спектрометров. В рассматриваемой автоматизированной системе повышение точности измерения изотопных отношений достигнуто как путем совершенствования интегрирующего электрометра (ИЭ) и других аппаратных средств, так и реализации эффективных алгоритмических средств обработки информации, отражающих специфику измерений с использованием ИЭ.

1. Основные причины погрешностей измерения ионных токов и меры их снижения

1.1. Собственные помехи ИЭ

Собственные помехи электрометрической аппаратуры имеют специфический характер, определяющий реально достижимый порог чувствительности. К ним относятся паразитные токи изолятора входной цепи, паразитные токи от фонового радиоактивного излучения и радиоактивной загрязненности материалов, электростатические поля, создаваемые зарядами на изоляторах, и т. п.

В рассматриваемом ИЭ в качестве входного изолятора использован лейкосапфир, являющийся одним из лучших материалов для электрометрических

изоляторов. Удельное сопротивление лейкосапфира не менее 10^{18} Ом·см, а паразитный ток не превышает 10^{-17} А [3].

Существенный вклад в величину паразитного тока вносит фоновое радиоактивное излучение, обусловленное радиоактивными примесями в материалах, из которых изготовлены детали ИЭ, причем наибольший вклад вносят α -частицы [4, 5]. Ионизация воздуха одной α -частицей дает заряд $\sim 3 \cdot 10^{-14}$ Кл [4]. С точки зрения α -«загрязненности» наихудшим среди известных материалов является свинец [6], который создает поток α -частиц, в среднем на два порядка превышающий поток α -частиц других материалов. Так, например, припой оловянно-свинцовый излучает с поверхности 1 см^2 28α -частиц в час, т. е. средний за час паразитный ток составляет $2 \cdot 10^{-16}$ А. В связи с этим в конструкции ИЭ используются материалы с низким содержанием свинца. Плотность фонового тока в воздухе в нормальных условиях, определяемая естественным радиоактивным излучением, составляет около $2 \cdot 10^{-18}$ А/см³ [7]. С целью уменьшения рассматриваемой составляющей паразитного тока активный объем воздуха, окружающего детали входной цепи ИЭ, сведен к минимуму. Кроме того, предусмотрена возможность вакуумировать электрометрическую головку. Рассмотренные пути снижения уровня собственных помех ИЭ позволили получить пороговую чувствительность ИЭ по току $2 \cdot 10^{-17}$ А.

1.2. Погрешность измерения выходного напряжения ИЭ

Величина ионного тока при постоянной времени саморазряда измерительного конденсатора, значительно большей времени интегрирования, и достаточно большом коэффициенте усиления ИЭ ($>10^5$) определяется по формуле [8]:

$$I_{\text{и}} = \frac{\Delta U_{\text{вых}} C_{\text{и}}}{T}, \quad (1)$$

где $\Delta U_{\text{вых}}$ — изменение выходного напряжения ИЭ за время интегрирования T ; $C_{\text{и}}$ — емкость измерительного конденсатора. Как показано в [9], величины $C_{\text{и}}$ и T могут быть определены с высокой точностью, поэтому погрешность определения $I_{\text{и}}$ в основном обусловлена погрешностью измерения выходного напряжения ИЭ. Для измерения выходного напряжения ИЭ необходимо использовать такой аналого-цифровой преобразователь, в котором временная задержка $\Delta t_{\text{и}}$ между моментом выдачи команды на измерение и моментом получения отсчета была бы минимальной.

Оценим величину погрешности, вызванной указанной временной задержкой, при использовании для измерения выходного напряжения ИЭ высокоточного цифрового вольтметра (ЦВ). Пусть команда на измерение выдается в момент времени T , которому соответствует выходное напряжение U . В течение времени $\Delta t_{\text{и}}$ выходное напряжение ИЭ изменится так, что моменту времени получения отсчета ЦВ $T + \Delta t_{\text{и}}$ будет соответствовать напряжение $U + \Delta U$. Учитывая (1), определяем значение тока, полученное при измерении

$$I_{\text{и}} = C_{\text{и}} \frac{U + \Delta U}{T}.$$

С другой стороны, истинное значение измеряемого тока

$$I = C_{\text{и}} \frac{U + \Delta U}{T + \Delta t_{\text{и}}}.$$

Абсолютная погрешность определения величины ионного тока

$$\Delta I = I_{\text{и}} - I = C_{\text{и}} \frac{\Delta t_{\text{и}} (U + \Delta U)}{T (T + \Delta t_{\text{и}})},$$

а относительная погрешность

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{\Delta t_{\text{и}}}{T}. \quad (2)$$

Время Δt_n высокоточных ЦВ составляет в лучшем случае 20–40 мс [10, 11]. При времени интегрирования $T = 10$ с погрешность измерения (2) составляет 0.2–0.4%, что не удовлетворяет требованиям современного изотопного анализа.

Рассмотренную составляющую погрешности можно снизить, если осуществлять преобразование выходного напряжения ИЭ в частоту следования импульсов с одновременным их накоплением в счетчике в течение времени интегрирования T . В этом случае величина Δt_n , входящая в выражение (2), соответствует времени задержки сигнала при запираании накопительного счетчика в конце времени интегрирования. Для современной элементной базы (например микросхемы серии К155) время задержки сигнала не превышает десятков наносекунд.

Количество импульсов n , накопленных в счетчике за время T , определяется выражением:

$$n = k_f \int_0^T U dt. \quad (3)$$

Здесь k_f — коэффициент преобразования напряжения в частоту;

$$U = U_0 + \frac{I_n T}{C_n}, \quad (4)$$

где U_0 — начальное напряжение на выходе ИЭ.

Подставляя (4) в (3) и проведя интегрирование, находим

$$n = k_f \left(U_0 T + \frac{I_n T^2}{2C_n} \right), \quad (5)$$

откуда

$$I_n = \frac{2C_n (n - k_f U_0 T)}{k_f T^2}. \quad (6)$$

Таким образом, величина ионного тока определяется из показаний накопительного счетчика.

1.3. Влияние начального напряжения ИЭ

Как следует из формулы (6), при определении I_n необходимо учитывать величину начального напряжения U_0 . Измерение U_0 требует дополнительных затрат времени, что может существенно повысить общее время изотопного анализа. Рассмотрим алгоритм определения величины ионного тока I_n , не требующий измерения U_0 . В этом алгоритме используется постоянство значений вторых разностей для полинома второй степени [12]. Для снижения случайной погрешности при определении величины ионного тока показания накопительного счетчика снимаются несколько раз в течение времени интегрирования через интервалы времени $\Delta t = t_{i+1} - t_i$.

Найдем разность показаний счетчика, разделенных интервалом времени Δt :

$$\Delta^1 n_i = n(t_i + \Delta t) - n(t_i). \quad (7)$$

Подставляя в (7) значения n из (5) для моментов времени $t_i + \Delta t$ и t_i , получаем

$$\begin{aligned} \Delta^1 n_i &= k_f U_0 (t_i + \Delta t) + \frac{I_n k_f (t_i + \Delta t)^2}{2C_n} - k_f U_0 t_i - \frac{I_n k_f t_i^2}{2C_n} = \\ &= k_f U_0 \Delta t + \frac{I_n k_f t_i \Delta t}{C_n} + \frac{I_n k_f \Delta t^2}{2C_n}. \end{aligned}$$

Найдем вторую разность показаний счетчика:

$$\begin{aligned} \Delta^2 n_i &= [n(t_i + 2\Delta t) - n(t_i + \Delta t)] - [n(t_i + \Delta t) - n(t_i)] = \\ &= n(t_i + 2\Delta t) - 2n(t_i + \Delta t) + n(t_i). \end{aligned} \quad (8)$$

Подставляя в (8) значения n из (5) для моментов времени t_i , $t_i + \Delta t$, $t_i + 2\Delta t$, получаем в результате

$$\Delta^{II}n_i = \frac{I_n k_f \Delta t^2}{C_n}. \quad (9)$$

Таким образом, вторая разность показаний счетчика связана только с интервалом времени между отсчетами и не зависит от U_0 .

Из (9) с учетом (8) определяем единичное значение измеряемой величины ионного тока для i -й второй разности:

$$(I_n)_i = \frac{C_n}{k_f \Delta t^2} [n(t_i + 2\Delta t) - 2n(t_i + \Delta t) + n(t_i)].$$

Для получения окончательного результата единичные значения, вычисленные по формуле (9) для всех вторых разностей, полученных в течение времени интегрирования, усредняются.

1.4. «Сорные» значения измерений

В изотопном масс-спектрометре возможно появление импульсных помех, связанных с действием кратковременных пробоев в высоковольтных устройствах, мощных радиопомех и т. п. Помехи такого типа приводят к появлению в выборке измерений так называемых «сорных» значений. Эти значения существенно отличаются от математического ожидания искомой величины и искажают окончательный результат. В рассматриваемой системе отбраковка «сорных» значений производится с использованием метода винзорирования выборки [13, 14].

Суть метода для нашего случая состоит в следующем. Из значений вторых разностей, вычисляемых по формуле (9), строится вариационный ряд (ряд значений, построенных в порядке возрастания). «Сорные» значения оказываются в начале или конце вариационного ряда и заменяются соседними (винзорируются). Величина ионного тока определяется в формуле:

$$I_n = \frac{C_n}{k_f T^2 p} \left[\sum_{i=r+2}^{p-r-1} \Delta^{II}n_i + (r+1)(\Delta^{II}n_{r+1} + \Delta^{II}n_{p-r}) \right],$$

где r — количество винзорированных значений с каждой стороны вариационного ряда; p — общее количество значений вторых разностей, получаемых в течение времени интегрирования.

При таком методе влияние «сорных» значений на точность окончательного результата измерения величины ионного тока значительно снижается.

1.5. Переходные процессы при разряде измерительного конденсатора

После измерения ионного тока одного изотопа нужно перестроить масс-спектрометр на измерение ионного тока другого изотопа и разрядить измерительный конденсатор. Разряд измерительного конденсатора производится бесконтактным способом, описанным в [15]. После разряда измерительного конденсатора паразитный ток I_n ИЭ принимает свое установившееся значение $I_{n,уст}$ лишь через некоторое время. Это связано с поляризационными явлениями в ИЭ и абсорбционными свойствами измерительного конденсатора. Длительность процесса установления зависит от величины напряжения, до которого был заряжен измерительный конденсатор (рис. 1), а также от времени нахождения конденсатора под напряжением, и может составлять десятки секунд.

Для снижения погрешности измерений, вызванной переходными процессами в ИЭ после разряда измерительного конденсатора, ионный ток очередного изотопа приходится измерять по окончании процесса установления. При этом увеличивается общее время анализа. С целью сокращения времени анализа были проведены исследования по определению аппроксимирующей функции переходного процесса после разряда измерительного конденсатора. Значение аппро-

ксимирующей функции, экстраполированное на момент начала интегрирования очередного изотопа, используется при вычислении изотопных отношений. Экспериментальные исследования показали, что изменение напряжения на выходе ИЭ, обусловленное переходными процессами, с достаточной точностью аппроксимируется функцией вида $U(t) = \exp(A_0 + A_1 t + A_2 t^2)$. По значениям выходного сигнала ИЭ вычисляются коэффициенты A_0, A_1, A_2 , с помощью которых оценивается величина I_n во время интегрирования ионного тока очередного изотопа.

Другим методом сокращения времени анализа является интегрирование ионных токов анализируемых изотопов без разряда измерительного конденса-

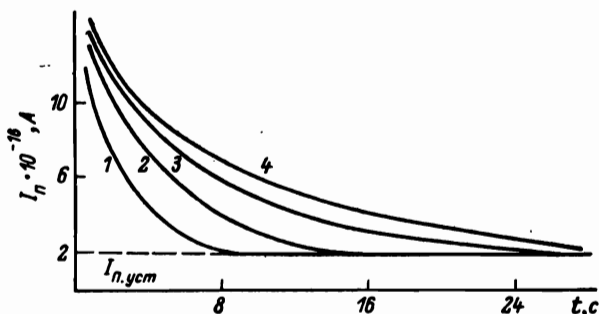


Рис. 1. Изменение паразитного тока I_n ИЭ после разряда измерительного конденсатора при различных значениях выходного напряжения.

U : 1 — 25, 2 — 50, 3 — 100, 4 — 200 В.

тора. Такой метод целесообразно использовать при анализе малых проб (ионные токи меньше 10^{-12} А). Большая постоянная времени саморазряда измерительного конденсатора ($\sim 10^6$ с) в сочетании с большим динамическим диапазоном ИЭ ($6 \cdot 10^6$) позволяет осуществлять измерение 15—20 спектров анализируемых изотопов при интенсивности ионных токов $10^{-14} \div 10^{-12}$ А без разряда измерительного конденсатора. Линейный характер изменения выходного сигнала ИЭ при интегрировании ионного тока каждого изотопа позволяет выбрать искомый поддиапазон и время интегрирования по результатам обработки измерений на начальном участке интегрирования как первого, так и второго изотопа. Включив в начальные моменты времени самый чувствительный поддиапазон и определив по двум точкам коэффициент наклона, ЭВМ путем экстраполяции линейной функции находит нужные поддиапазон и время измерения.

2. Построение аппаратной части

2.1. Структурная схема

Рассмотренные выше методы снижения погрешности измерения отношений ионных токов изотопного масс-спектрометра проверены на макете автоматизированной системы (рис. 2).

В состав системы входят интегрирующий электрометр ИЭ, преобразователь напряжения в частоту ПНЧ и счетчик, осуществляющие цифровое интегрирование выходного напряжения ИЭ, таймер, селектор пиков. Работой системы управляет ЭВМ через блок интерфейсный функциональный БИФ. ЭВМ взаимодействует также со стандартными периферийными устройствами, входящими в состав системы: кассетным накопителем на магнитной ленте КНМЛ, алфавитно-цифровым печатающим устройством АЦПУ, видеотерминальным устройством ВТУ.

Перед началом измерений в диалоговом режиме в ЭВМ вводятся данные, определяющие последовательность анализируемых изотопов масс-спектра и интервалы времени интегрирования ионных токов каждого из изотопов. Затем ЭВМ выдает сигналы для установки значения магнитного поля, соответствующего первому из анализируемых изотопов, и интервала времени интегрирования. После задержки, определяемой временем установления магнитного поля, начинается процесс интегрирования ионного тока. Одновременно с этим идет процесс преобразования выходного напряжения ИЭ в частоту следования импульсов. Выходные импульсы ПНЧ накапливаются в счетчике, вход кото-

рого запирается по окончании заданного времени интегрирования. При этом в ЭВМ поступает сигнал готовности к выдаче данных. ЭВМ принимает данные счетчика, выдает команду на разряд измерительного конденсатора ИЭ, а затем выдает сигнал для перехода на новое значение магнитного поля. Поступающие в ЭВМ данные подвергаются математической обработке, результаты которой

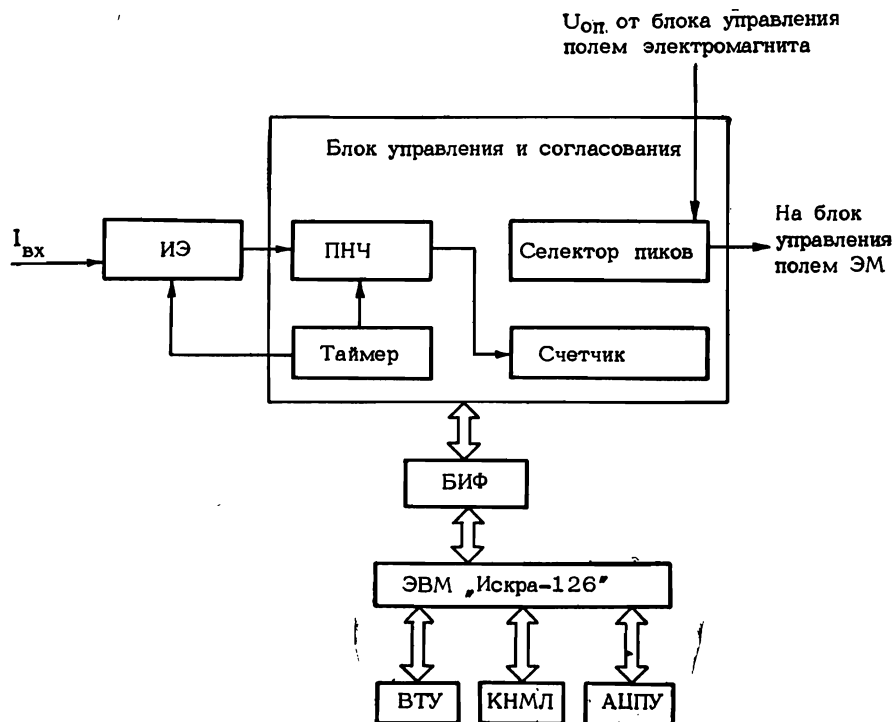


Рис. 2. Структурная схема автоматизированной системы.

отображаются на экране ВТУ и фиксируются на ленте АЦПУ. Аналогично происходит измерение ионных токов последующих изотопов.

После того как измерены ионные токи всех изотопов масс-спектра, производится повторное измерение ионного тока первого из анализируемых изотопов, затем второго и т. д. Такой цикл повторяется заданное количество раз, а затем ЭВМ переходит к вычислению и статистической обработке изотопных отношений. В заключение осуществляется документирование результатов анализа в целом на ленте АЦПУ.

2.2. Основные узлы системы

Интегрирующий электрометр ИЭ представляет собой электрометрический усилитель с измерительным конденсатором в цепи обратной связи. Конденсатор выполнен воздушным по трехзвенной схеме. Входной каскад ИЭ выполнен на электрометрической лампе ЭМ-10. В результате экспериментальных исследований выбран режим работы лампы, позволивший на порядок по сравнению с паспортной снизить величину сеточного тока лампы. Для того чтобы свести к минимуму α -излучение электрических соединений, пайки в ИЭ выполнены припоем П150А, не содержащим в своем составе свинец. Порог чувствительности ИЭ $2 \cdot 10^{-17}$ А, динамический диапазон измеряемых токов $6 \cdot 10^6$, максимальное выходное напряжение — минус 200 В.

В основе разработанной схемы ПНЧ лежит принцип периодического разряда и заряда конденсатора. Для повышения линейности использован метод преобразования со сбалансированным зарядом и разрядом [16]. На рис. 3 изображена структурная схема ПНЧ, реализующая этот метод. Период заряда конденсатора C в этой схеме не фиксируется, а продолжается до тех пор, пока напряже-

ние на конденсаторе не достигнет определенного порогового уровня. Пороговое устройство при этом меняет свое состояние под действием первого пришедшего импульса тактового генератора. Источник эталонного тока подключается ко входу $OУ$ для разряда конденсатора разностным током $I_{эт} - I_{вх}$, а импульс тактового генератора появляется на выходе ПНЧ. Конденсатор разряжается до тех пор, пока напряжение на нем снова не достигнет порогового уровня.

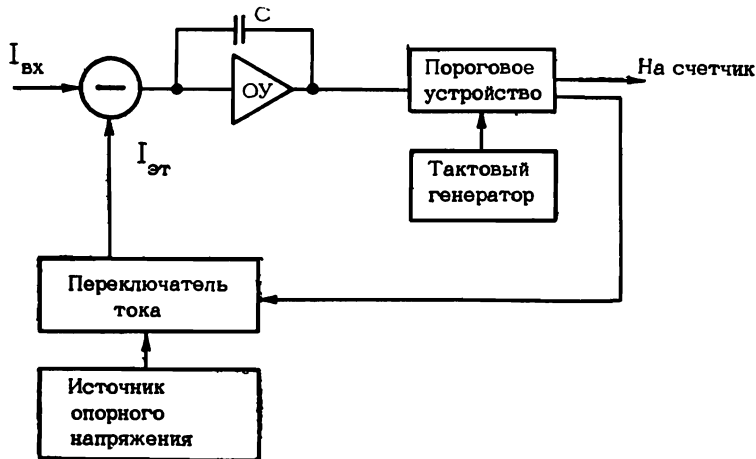


Рис. 3. Структурная схема преобразователя напряжения в частоту.

Величина эталонного тока выбирается большей максимального входного сигнала. Процесс повторяется до окончания периода преобразования.

Временной интервал преобразования ионного тока задается таймером. Основой таймера является кварцевый генератор.

Селектор пиков реализует дискретную развертку масс-спектра и представляет собой коммутируемый прецизионный делитель опорного напряжения $U_{оп}$, поступающего из блока управления полем электромагнита масс-спектрометра.

2.3. ЭВМ и интерфейсное устройство

В макете автоматизированной системы используется ЭВМ «Искра-126», представляющая собой программно-управляемую вычислительную машину с совмещенным выполнением операций ввода—вывода каналным процессором и обработки данных центральным процессором. Магистраль ввода—вывода состоит из 8-разрядной шины данных, 4-разрядных шин команд и состояний, а также управляющих шин начальной установки, вызова и запроса на прерывание. Канальный процессор имеет свою систему команд, отличную от системы команд центрального процессора. Основу программного обеспечения центрального процессора составляет интерпретирующий язык БЭЙСИК. Обращение к программе канального процессора происходит по обобщенному оператору ввода—вывода, позволяющему в рамках языка БЭЙСИК обеспечить обмен данными между центральным процессором и устройствами ввода—вывода, подключенными к ЭВМ.

Для организации байтового асинхронного обмена данными между ЭВМ «Искра-126» и системой используется блок интерфейсный функциональный (БИФ). Разработанный БИФ, кроме рассматриваемой системы, может найти применение в любой другой системе, где необходимо производить обмен данными в 16-разрядном параллельном двоичном коде.

Рассмотрим работу БИФ по структурной схеме (рис. 4). На схеме приведены названия шин и сигналов в форме, принятой в техническом описании ЭВМ «Искра-126» [17]. В цикле обмена информацией с устройствами ввода—вывода (УВВ) схема контроля адреса $СКА$ сравнивает передаваемый по информацион-

ной магистрали ввода-вывода *ИМВВ* физический адрес устройства (ФАУ) со значением, установленным в БИФ. При их совпадении происходит установка триггера *T*, разрешающего взаимодействие УВВ с магистралью. По команде «Начальная установка» *НУ* или при выдаче ФАУ, не равного установленному в БИФ, связь обрывается. Поскольку данные внешнего устройства представлены 16-разрядным кодом, то передача их по 8-разрядной магистрали ЭВМ происходит побайтно в два этапа. Во время выдачи данных по команде «Принять первый байт» *ППБ*, первый байт информации записывается в буферный регистр *БР1*, а по команде «Принять байт последний» *ПБП* два байта информации из буферного регистра и с магистрали ввода—вывода одновременно передаются во вне-

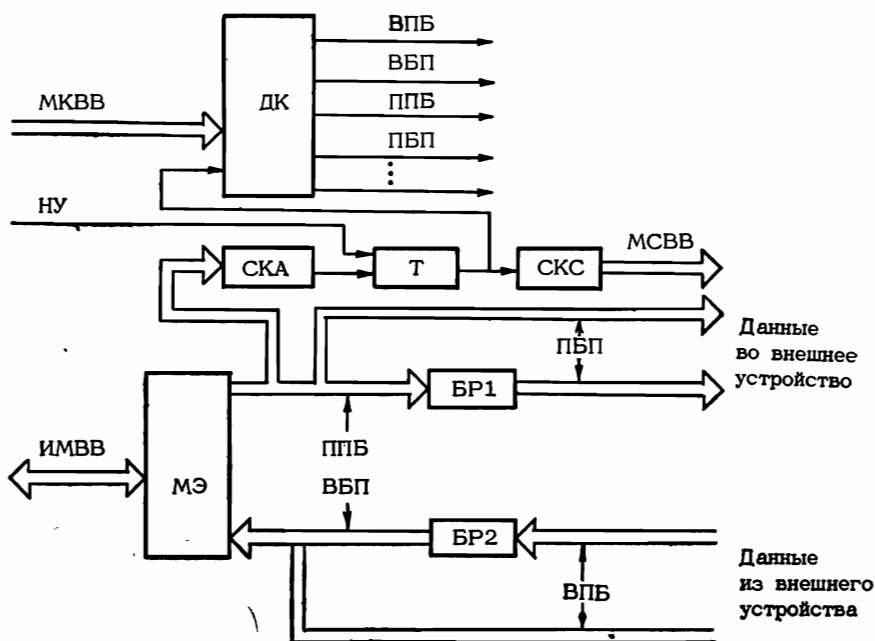


Рис. 4. Структурная схема блока интерфейсного функционального для организации обмена данными в 16-разрядном параллельном коде с ЭВМ «Искра-126».

шнее устройство. Во время приема данных оба байта информации одновременно поступают из внешнего устройства, причем по команде «выдать первый байт» *ВПБ* один из них сразу передается на информационную шину магистрали, а другой записывается в буферный регистр *БР2*. По команде «Выдать байт последний» *ВБП* данные буферного регистра поступают в магистраль ввода—вывода *МКВВ* в дешифратор команд *ДК*, сигналы которого используются для выполнения указанных в команде действий. Схема контроля состояния *СКС* служит для формирования сигналов магистрали состояния ввода—вывода *МСВВ* в момент выполнения команды. Магистральные элементы *МЭ* служат для энергетического сопряжения магистрали ввода—вывода с БИФ.

Математическое обеспечение системы включает программы обработки информации на языке БЭИСИК и программы ввода—вывода в системе команд канального процессора.

Заключение

Проведенные испытания системы показали, что высокие метрологические характеристики интегрирующего электрометра наряду с реализацией метода преобразования напряжения в частоту и алгоритмами обработки результатов измерений позволяют снизить сходимость измерений отношений ионных токов в диапазоне 10^{-13} — 10^{-10} А до величины меньшей 0.02% и расширить динамический диапазон измеряемых токов до величины $6 \cdot 10^6$ [9].

ЛИТЕРАТУРА

1. Гольдин А. А. и др. — В кн.: Приборы для научных исследований и автоматизации эксперимента. Л., 1982, с. 148.
2. Гольдин А. А. и др. — ПТЭ, 1980, № 5, с. 105.
3. Классен-Неклюдова М. В., Багдасарова Х. С. Рубин и сапфир. М., 1974.
4. Илюкович А. М. Техника электрометрии. М., 1976.
5. Прайс В. Регистрация ядерного излучения. М., 1960.
6. Кочаров Г. Е., Найденов В. О. — ПТЭ, 1966, № 3, с. 5.
7. Кайтса Э. К. и др. — Труды ВНИИФТРИ, 1973, вып. 10 (40), с. 18.
8. Александров В. С. и др. Приборы для измерения малых постоянных напряжений и токов. Л., 1971.
9. Исследование методов и средств повышения точности измерения изотопных отношений и создание автоматизированной системы на базе электрометрического интегратора: Отчет о науч.-иссл. работе 102 НИР-И № 79060714. Л., 1981.
10. Капиев Р. Э. и др. — ПСУ, 1979, № 12, с. 16.
11. Цифровой вольтметр постоянного тока Щ1516: Техническое описание и инструкция по эксплуатации. М., 1981.
12. Хемминг Р. В. Численные методы. М., 1968.
13. Ефремов Л. И. — Измерение, контроль, автоматизация, 1981, № 5, с. 19.
14. Стогов Г. В. и др. — Зарубежная радиоэлектроника, 1979, № 10, с. 3.
15. А. с. 620901 (СССР). Устройство для измерения малых токов / А. А. Гольдин, Е. С. Гужиков, Ю. А. Исаков, В. А. Павленко. — Оpubл. в Б. И., 1978, № 31.
16. Кайм Г. Г. — Электроника, 1973, № 11, с. 37.
17. «Искра-126»: Техническое описание. Л., 1979.