

УДК 533.951

ПОЛУЧЕНИЕ ИЗОТОПОВ ПЛАТИНЫ С ПОМОЩЬЮ ИСТОЧНИКА ИОНОВ НА ОСНОВЕ КАТОДНОГО РАСПЫЛЕНИЯ

Р. Н. Кузьмин, Н. Н. Семашко
РНИЦ "Курчатовский институт", Москва, Россия

Д. В. Соколов
Московский энергетический институт, Москва, Россия

Исследовано несколько конструктивных схем источника ионов платины, предназначенного для электромагнитной сепарации изотопов. Обсуждается разделение изотопов некоторых тугоплавких элементов, например, платинопалладиевой группы, различные конструкции ионного источника как в магнитном поле, так и вне его. Суммарный ток изотопов платины достигал 5 мА. Предложена новая конструкция источника ионов на основе катодного распыления (источник ионов с изолированным электродом. Такая конструкция ионного источника при использовании эффективных катодов и специальных изолированных электродов позволяет достигать режима "самораспыления". Проведен анализ по повышению эффективности ионного источника.

Введение

Ионные источники, предназначенные для разделения изотопов электромагнитным методом, можно условно разделить на три группы: низкотемпературные, высокотемпературные, источники, основанные на других физических принципах подачи ионизируемого вещества в разряд.

Например, для разделения изотопов таллия применяют низкотемпературные источники ионов, так как для достижения давления паров таллия, необходимого для поддержания устойчивого дугового разряда 10^{-2} — 10^{-3} торр, необходимо нагревать рабочее вещество (Tl) до температуры 527°C ($p = 10^{-3}$ торр) [1]. Для сравнения, для получения таких же давлений паров палладия необходимо нагревать рабочее вещество до 1400°C ($p = 10^{-3}$ торр). Поэтому для разделения изотопов палладия применяют источники ионов второго типа — высокотемпературные. Необходимо отметить, что нагрев рабочего вещества и всего газоразрядного узла до температуры 1400 — 1500°C также представляет сложную, хотя и решаемую задачу.

Давление паров платины $p = 10^{-3}$ торр достигается при температуре свыше 1900°C , поэтому в этом случае используют источник ионов третьего типа.

Разработке методов разделения изотопов платины (и других элементов платинопалладиевой группы), имеющих низкую упругость паров при доступных температурах (до 1500°C), посвящено немало исследований. Отметим работу [2], в которой была предложена технология разделения изотопов платины, палладия и других элементов этой группы электромагнитным методом. Однако эта технология предусматривает применение газообразного фтора для получения легкоиспаряемого соединения путем фторирования металла непосредственно в тигле ионного источника. Применение газообразного фтора требует соответствующих мер безопасности, организация которых в конкретных условиях действующего изотопного производства представляет серьезную проблему. В этой же работе показана невысокая эффективность процесса разделения при работе на соединениях платины карбонилхлоридах — малый ионный ток, невысокое обогащение полученных изотопов, низкий коэффициент использования вещества. (Под коэффициентом использования вещества мы понимаем отношение массы всех выделенных изотопов к массе загрузки.)

Источник ионов, предложенный в работе [3], отличается высокой производительностью, токи ионов Pd, Os, Ir и Pt достигают 20—30 мА, однако коэффициент использования рабочего вещества также низок и составляет около 5 %. Эта величина невелика с учетом высокой стоимости драгметаллов. Отметим, что достаточным считался бы коэффициент использования вещества не менее 25 %. С этой точки зрения не являются удовлетворительными многие другие методы разделения изотопов платинопалладиевой группы, например метод плазменной центрифуги [4, 5], который в виду его универсальности применим к задаче разделения изотопов тугоплавких элементов, в этом методе невысока кратность обогащения. Поэтому были предприняты исследования параметров источника ионов платины на основе катодного распыления.

Конфигурация источника ионов и некоторые предварительные результаты

Возможны различные пути решения поставленной задачи — получения изотопов платины с помощью источника ионов на основе катодного распыления, имеется в виду конфигурация источника ионов.

Рассмотрим эти возможные конфигурации. Первая схема расположения рабочего вещества (Pt) в разрядной камере ионного источника была реализована в ГИПИ ИЯС (Группа ионных и плазменных источников Института ядерного синтеза) в 1985—1987 гг., а также подтверждена работой с этим источником в 1995 г. В этом источнике ионов платина наносилась на стенки газоразрядной камеры (ГРК) (слой ~ 2 мм), на которую подавался отрицательный относительно анода (или катода) потенциал, величиной 300—400 В, так как при энергиях бомбардирующих ионов (использовались ионы аргона и ксенона) в 300—400 эВ коэффициент распыления ионами атомов платины более единицы [6].

В 1985—1987 гг. и в 1995 г. использовался источник, находящийся в магнитном поле, величина которого составляла ~ 0,16 Тл. В источнике с помощью накаливаемого катода поддерживался дуговой разряд в магнитном поле (параметры разряда 2—5 А; 120—130 В).

К основным результатам работы 1985—1987 гг. можно отнести следующее:

получены ионные токи J_{Pt}^+ до 5 мА. Фиксировался суммарный ток ионов платины на приемник. Для практического деления достаточным считался бы ток не менее 5 мА;

были получены хорошие результаты по получению максимальных ионных токов, однако при $J_{Pt}^+ > 1,5—2$ мА разрешение изотопных линий отсутствовало;

источник ионов мог работать 12 ч и более в режиме деления при малых разрядных токах 2—3 А;

разборка отработавшего источника показала, что платина на крышке (щели) и задней поверхности ГРК полностью распылена и анод сильно подплавлен.

К основным результатам работы, проводимой в 1995 г., можно отнести следующее:

в целом подтвердила более раннюю работу, получены ионные токи платины до 4 мА. Регистрации разрешения в этой работе не проводилось;

при использовании Хе в качестве вспомогательного газа наблюдались интенсивные колебания в разряде в зависимости от величины прикладываемого “распылительного напряжения” (эти колебания наблюдались и в работе 1985—1987 гг.);

соотношение J_{Pt}^+ / J_{Xe}^+ оказалось в зависимости от режима от 0,13 до 0,3 (при $U_{расп} = 250$ В);

разборка источника ионов показала, что равномерное по длине разрядного канала парораспределение вспомогательного газа в ГРК ведет к появлению в прикатодной области оплавлений и прогаров, т. е. к выходу источника ионов из строя.

На рис. 1 показано, что камера и щель имеют один потенциал, поэтому внутренняя поверхность щели также подвергается бомбардировке положительными ионами. Вследствие этого щель может деформироваться, что отрицательно скажется на фокусировке пучка. Ресурс такого источника ионов ограничен нагрузкой P_t и изменением геометрии крышки источника.

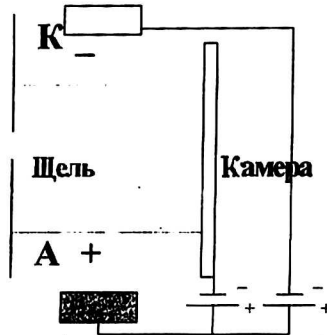


Рис. 1. Источник ионов, в котором в качестве распыляемого электрода использовалась непосредственно разрядная камера

Кроме того, работа с натекателем газа неудобна, так как осуществить удобное регулирование и обеспечить постоянное во времени натекание требуют специальных устройств. К тому же, ксенон, к примеру, достаточно дорог.

Поэтому возникла идея по созданию источника ионов платины “с изолированным электродом” (рис. 2). В этом случае камера (и щель) не подвергается интенсивному распылению, отрицательный относительно катода потенциал подается на изолированный электрод. Реально он представляет собой бинарную пластину определенной кривизны. Вогнутая сторона пластины выполнена из пластины и обращена к щели ГРК, а выпуклая — была сделана из тантала.

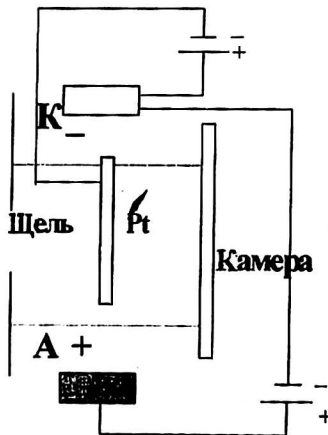


Рис. 2. Источник ионов, в котором в качестве распыляемого электрода использовался специально изготовленный электрод, помещенный в разрядный канал

Существуют и другие принципиальные отличия источника ионов “с изолированным электродом” от рассмотренного ранее источника:

в качестве вспомогательного вещества использовался таллий, что позволило отказаться от дорогостоящего ксенона и обеспечить более равномерную подачу пара в ГРК. Коэффициент распыления $K_{расп} Tl^+ \rightarrow Pt > 1$ при энергии ионов таллия > 350 эВ. Учитывая близость масс $Tl_{(203-205)}$ и $Pt_{(190-198)}$ не требуется специальных устройств для приема ионов Tl^+ ;

источник ионов не находился в области магнитного поля.

Эксперимент, результаты

Работа проводилась в Институте ядерного синтеза (ИЯС) РНЦ "Курчатовский институт", в Лаборатории электромагнитного разделения изотопов (ЛЭМРИ).

Эксперименты велись на электромагнитном сепараторе с радиусом траектории около 700 мм и магнитным полем, рассчитанным по трехсекторной схеме. Величина магнитного поля на центральной оси в медианной плоскости достигает 2—3 Тл. Камера откачивается высоковакуумным диффузионным насосом Н-20. Рабочее давление, при котором обеспечивается наиболее хорошая фокусировка пучков на приемнике, составляет $(8 \pm 20) \cdot 10^{-6}$ торр, скорость откачки при этом $\sim 5 \cdot 10^{-3}$ л/с. Чаще использовался приемник ионов типа "диск", т. е. измерялся суммарный ток ионов изотопов.

Рассмотренные выше конфигурации ионных источников имеют общую основу. В этих источниках используется дуговой разряд с накальным катодом. Катод выполнен из вольфрама и имеет площадь эмиссии около 1 см². Молибденовая разрядная камера размерами 70×20×15 мм изготовлена в виде параллелепипеда. Крышка ионного источника также выполнена из молибдена, имеет определенную кривизну, размер выходной щели 70×1,2 мм.

Получены следующие результаты работы ионного источника ионов "с изолированным электродом";

устойчивая работа источника ионов (имеется в виду отсутствие зон колебаний даже при напряжении смещения ($U_{расп}$) 500—600 В [кривые J_{Pt}^+ ($U_{расп}$), J_{Tl}^+ ($U_{расп}$)]);

на всех режимах наблюдаются полностью разрешенные линии изотопов платины Pt₁₉₄, Pt₁₉₅, Pt₁₉₆, а также хорошо заметен изотоп Pt₁₉₈ (7,23 %). При больших (> 500 В) $U_{расп}$ разрешение пучков не ухудшается;

при работе с этим источником так же, как и ранее фиксировался суммарный ток ионов платины, получены максимальные (для данного источника) ионные токи платины до 2,5 мА ($U_{расп} \sim 450$ В. Ток ионов таллия 23 мА, эксперимент проводился при токе разряда $J_p = 12,5$ А. Ток на электрод составил 1,17 А). Однако существенный вклад в полученный максимальный ток ионов платины внесли ионы, полученные в результате ионизации атомов платины, термически испаренных с поверхности изолированного электрода $J_{Pt}^+ / J_{Tl}^+ \sim 0,1$ (при $U_{расп} \sim 450$ В) [7];

плавление платины в разрядной камере недопустимо, снижение тепловой нагрузки на платиновый электрод в два раза приводит к уменьшению коэффициента J_{Pt}^+ / J_{Tl}^+ до 0,02 (при $U_{расп} \sim 450$ В) и соответственно токов ионов платины — до десятков микроампер. К тому же, изолированный электрод бинарного типа, изготовленный из платины и тантала, не может быть применен в источнике ионов с температурой поверхности этого электрода ~ 1500 °С, так как растворимость в твердом состоянии Та в Pt составляет 80 % уже при ~ 1000 °С [8].

Обсуждение результатов

Следует отметить важное ограничение при выборе режима работы источника ионов с изолированным электродом, имеющим заданные размеры:

$$W_3 < W_{крит}, \quad (1)$$

где W_3 — тепловая нагрузка на электрод, Вт;

$W_{крит}$ — максимальная тепловая нагрузка на электрод, Вт.

Величину $W_{крит}$ можно легко оценить, учитывая, что перенос тепла с электрода осуществляется в основном излучением. Приняв за максимальную температуру электрода температуру плавления платины (1773 °С), получим $W_{крит} \sim 400—450$ Вт.

В экспериментах 1998 г. были получены в основном зависимости типа $J_s(U_{расп})$, где J_s — ток на электрод, $J_{Pt}^+(U_{расп})$, $J_{Tl}^+(U_{расп})$.

Во всех зависимостях такого типа ток на электрод практически не зависел от энергии распыляющих ионов (см. таблицу), что хорошо согласуется с теорией ленгмюровских зондов в плазме: $J_p = 8 \text{ A}$; $U_p = 22 \text{ В}$.

$U_{расп}, \text{ В}$	$J_s, \text{ А}$	$J_{Pt}^+, \text{ мА}$	$J_{Tl}^+, \text{ мА}$
0	0,17	0,09	11
50	0,45	0,1	11,5
100	0,47	0,14	12,1
150	0,5	0,16	12,1
200	0,5	0,2	12,3
250	0,5	0,26	12,3
300	0,5	0,36	12,4
350	0,5	0,52	12,5
400	0,5	0,67	12,4
450	0,5	0,85	12,8

Таким образом, поскольку ток на электрод в основном представляет собой ток ионов таллия и платины, J_s зависит только от величины натекания паров таллия Q и степени их ионизации γ .

У источника ионов с данной конструкцией электрода при токе ионов изотопов платины на приемник $J_{Pt}^+ \cong 1\text{--}2 \text{ мА}$ ток на электрод составляет $1\text{--}1,5 \text{ А}$. Поэтому с учетом (1) "распылительное напряжение" не должно превышать $300\text{--}450 \text{ В}$, что является неудовлетворительным с точки зрения использования ионов вспомогательного вещества (таллия), так как известно, что коэффициент распыления атомов платины ионами таллия $K_{расп} Tl^+ \rightarrow Pt$ при $U_{расп} \cong 300 \text{ В}$ ожидаем близким к 1. Для эффективной работы источника ионов $U_{расп}$ должно быть не менее $600\text{--}700 \text{ В}$.

Эксперименты 1998 г. показали ряд существенных недостатков при работе с источником ионов, таких как низкий ионный ток ионов платины и низкое отношение J_{Pt}^+/J_{Tl}^+ . Предложена новая конструкция электрода и методы повышения эффективности работы источника ионов.

Электрод, изображенный на рис. 3, также бинарный, он выполнен из платины (внутренняя сторона) и графита (сторона внешняя). Электрод, выполненный по такой технологии, позволяет:

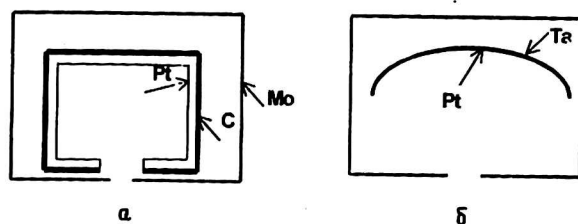


Рис. 3. Разрядная камера:
 а — новая конструкция;
 б — конструкция с электродом в виде дуги

уменьшить $W_{крит}$ за счет увеличения площади электрода в $1,5\text{--}1,7$ раза;
 повысить эффективность использования эмитированных электродом атомов платины в разрядном канале, так как с учетом их низкой ионизации $10\text{--}15 \%$,

большая часть атомов осаждалась на "холодных" ($\sim 800^\circ\text{C}$) стенках разрядной камеры, что и подтвердила ее разборка (конструкция с электродом в виде дуги);

графит, как и тантал, обладает низким коэффициентом распыления ионами таллия и понижает температуру плавления платины лишь до 1734°C , причем содержание углерода в такой эвтектике составляет 1,2% [8].

Оценим γ_{Pt} , γ_{Tl} — вероятности ионизации атомов платины и таллия:

$$\gamma = 1 - \exp(-j_e \sigma_i l / Ve) \cong j_e \sigma_i l / Ve, \quad (2)$$

- где j_e — плотность ионизирующих электронов, A/cm^2 ;
 σ_i — сечение ионизации, cm^2 ;
 l — средняя длина пробега в разрядном канале, cm ;
 V — средняя скорость атомов, cm/s ;
 e — заряд электрона, Кл.

При токе разряда 10 А $\gamma_{\text{Tl}} \cong 0,85$, а $\gamma_{\text{Pt}} \cong 0,1$. Увеличение вероятности ионизации атомов платины возможно за счет увеличения j_e , т. е. при использовании более эффективных катодов, например из гексаборида лантана (LaB_6) [9]. Отметим, что во всех вышеперечисленных источниках использовался вольфрамовый катод. Использование эффективных катодов позволит также увеличить γ_{Tl} . Ожидаемые трудности при работе с катодами из LaB_6 известны: низкая работа выхода электронов у La ($e\phi \sim 3,3$ эВ) может приводить к дополнительной эмиссии электронов из стенок ГРК и ионной оптики источника ионов.

Использование новой конструкции электрода и эффективного катода могут приводить к интересному режиму "самораспыления", если γ_{Pt} хотя бы $\cong 0,25$ и $K_{\text{расп}} \text{Pt}^+ \rightarrow \text{Pt} \cong 4$ ($U_{\text{расп}} \cong 700\text{--}800$ В).

Катодное распыление

К результатам работы можно отнести получение коэффициентов распыления платины ионами благородных газов (Ar^+ , Xe^+), а также ионами Tl^+ (рис. 4). Первые хорошо известны, например [6]. $K_{\text{расп}} \text{Tl}^+ \rightarrow \text{Pt}$ в зависимости от энергии ионов Tl^+ можно получить из выражений

$$K_{\text{расп}} \text{Tl}^+ \rightarrow \text{Pt} \cong J_{\text{Pt}}^+ \gamma_{\text{Tl}} / J_{\text{Tl}}^+ \gamma_{\text{Pt}}$$

$$K_{\text{расп}} \text{Tl}^+ \rightarrow \text{Pt} \cong J_{\text{Pt}}^+ \sigma_{\text{Tl}} V_{\text{Pt}} / J_{\text{EI}}^+ \sigma_{\text{Pt}} V_{\text{Tl}}$$

Оценки тепловой нагрузки на распыляемый электрод показывают, что при энергии ионов таллия выше 250—300 эВ существенным механизмом поступления атомов платины в разряд является их термическое испарение.

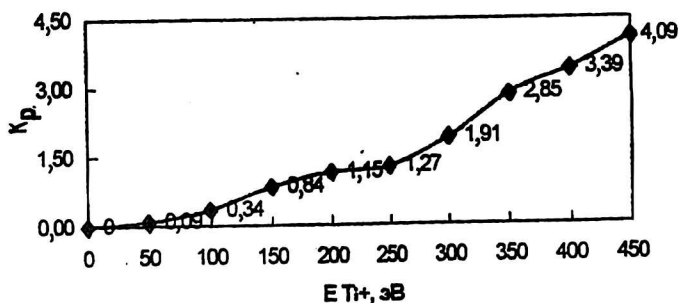


Рис. 4. Коэффициент распыления платины

Л и т е р а т у р а

1. Справочник/ Под. ред. акад. И. К. Кикоина.— М.: Атомиздат, 1976. С. 200.
2. Бочин В. П., Гаврилов В. Е., Золотарев В. С. *Isotopenpraxis*, 1971. № 7. Jahrgang. Heft, 6.
3. Гусев В. М. Тр. Всес. науч.-техн. конф. по применению радиоактивных и стабильных изотопов. — М.: Изд. АН СССР, 1958. С. 68.
4. Krishnan M., Geva M. and Hirschfield J. L.// *Physical Review Letters*. 1981. V. 46. № 1. P. 36—38.
5. Rahul R. Prasad and Mahadevan Krishnan// *J. Appl. Phys.* 1987. V. 61. № 9. P. 4464—4470.
6. Плешивцев Н. В. Катодное распыление. — М.: Атомиздат, 1968. С. 70.
7. Соколов Д. В. Матер. VIII международного семинара "Диагностика поверхности пучками". — Ужгород, 1998. С. 128—129.
8. Эллиотт Р. П. Двойные сплавы. — М.: Metallurgizdat, 1970. Т. 1. С. 252.
9. Кресанов В. С., Малахов Н. П., Морозов В. В., Семашко Н. Н., Шлюко В. Я. Высокоэффективный эмиттер электронов на основе гексаборида лантана. — М.: Энергоатомиздат, 1987.

RECEPTION OF PLATINUM ISOTOPES WITH HELP OF ION SOURCES ON CATHODE SPUTTERING

R. N. Kuzmin, N. N. Semashko
RRC "Kurchatov institute", Moscow, Russia
E-mail: gipi@qq.nfi.kiac.su

D. V. Sokolov

Moscow Power Engineering Institute, Moscow, Russia

The purpose of this work was the research of some constructive schemes of the ion source intended for electromagnetic isotopes separation. It is necessary to note the isotopes separation of the several high-melting elements (f. e. platinum-palladium group) presents serious problem. This article is also devoted to this scientific theme. The review of works' results with various construction of the ion source, which is located inside a magnetic field and outside, is here contained. Total currents of platinum isotopes are obtained up to 5 mA. In this article new construction of the ion source on the basis of cathode sputtering (ion source "with the isolated electrode") is offered and investigated. Such ion source construction using the effective cathodes and special isolated electrodes allows reaching the interesting "self-sputtering" mode. To increase of an overall yield of a ions source the analysis had been held.