

С 3454

П-199

26/11

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

2190/2-72

7 - 6344



А.С.Пасюк, Ю.П.Третьяков, Й.Дуда, Р.И.Иванников,
И.П.Кузнецова

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

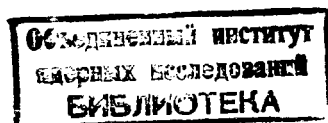
ПОЛУЧЕНИЕ И УСКОРЕНИЕ
ПЯТИЗАРЯДНЫХ ИОНОВ КРЕМНИЯ

1972

7 - 6344

А.С.Пасюк, Ю.П.Третьяков, Й.Дуда, Р.И.Иванников,
И.П.Кузнецова

ПОЛУЧЕНИЕ И УСКОРЕНИЕ
ПЯТИЗАРЯДНЫХ ИОНОВ КРЕМНИЯ



В настоящей работе представлены результаты опытов по получению ионов кремния из плазменных источников многозарядных ионов с целью ускорения их на циклотроне У-300 ОИЯИ. Нами были опробованы как источник для работы на газообразных соединениях /1/, так и источники для твердых веществ /2,3/, разработанные в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

1. Рабочие вещества для получения ионов кремния

В качестве рабочих веществ для газоразрядного ионного источника /1/ были использованы следующие соединения кремния:

$Si H_4$ - моносилан,

$Si F_4$ - четырехфтористый кремний,

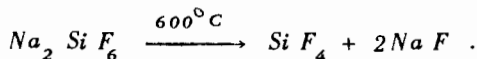
$Si Cl_4$ - четыреххлористый кремний.

Моносилан и четырехфтористый кремний - газы в нормальных условиях, четыреххлористый кремний - низкокипящая жидкость, давление паров которой при 20°C равно \approx 200 торр.

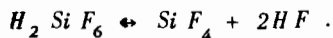
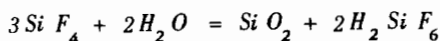
Молекулы перечисленных соединений содержат по одному атому кремния на 4 атома других элементов. С точки зрения относительного содержания кремния в соединении привлекательны сульфиды кремния $Si S_2$ и $Si S$, которые были использованы в качестве рабочего вещества в источнике с горячей разрядной камерой /2/.

В источнике с катодным распылением рабочего вещества /3/ использовались пластины элементарного кремния. Примененные в работе вещества $Si Cl_4$, $Si H_4$ и элементарный кремний - заводского производства.

Четырехфтористый кремний получали в лабораторной аппаратуре путем термического разложения кремнефтористого натрия по реакции



Аппаратура состояла из кварцевой ампулы с навеской исходного вещества (≈ 20 г), помещенной в электрической трубчатой печи, системы вымораживания из двух охлаждаемых ловушек, сборника газообразного продукта и форвакуумного насоса, поддерживающего в аппаратуре давление $10^{-1} + 10^{-2}$ торр. Отдельные части установки были соединены вакуумными резиновыми шлангами с трехходовыми кранами. Электродпечь питалась от лабораторного трансформатора, контроль за подъемом и поддержанием температуры осуществлялся с помощью *PtRh-Pt* терморпары. В первой ловушке ($-80^\circ C$) при работе осаждались твердые частицы $x Si O_2 \cdot y H_2 O$ и вымораживались пары $H_2 O$ и HF , роль которых при основном процессе описывается уравнениями гидролиза $Si F_4$ и разложения нестабильной $H_2 Si F_6$



Во второй ловушке ($-196^\circ C$) вымораживался сухой четырехфтористый кремний в виде белых кристаллов. При устранении охлаждения вещество из твердой фазы переходило непосредственно в газообразный $Si F_4$, использующийся затем в дальнейшей работе без дополнительных очисток.

Выход $Si F_4$ в описанном режиме получения составлял 95-98%. Анализ продукта на масс-спектрометре показал присутствие в качестве примесей незначительных следов кислорода.

Сульфиды кремния ($Si S$, $Si S_2$, $Si_n S_m$) получали по модифицированной методике /4/ прямым синтезом из элементов высокой чистоты (99,98%) в специальных двухсекционных толстостенных ампулах, изготовленных из кварцевых трубок диаметром 15 + 20 мм с толщиной стенки 2-3 мм.

Реакции велись с навесками 1-3 г каждого из элементов в вакуумированных до $(4 \pm 5) \cdot 10^{-5}$ торр секциях этих ампул при температуре от 600 до 1100°C, в зависимости от типа соединения. Из реакционной смеси данный сульфид перегонялся после устранения тонкой кварцевой перегородки во вторую секцию, находящуюся при комнатной температуре. Очистка перегонкой велась для каждого соединения при строго соблюдаемой температуре. После перегонки секция с продуктом отпаивалась.

Дисульфид кремния $Si S_2$ похож на бесцветные шелковистые нити, моносulfид $Si S$ представляет собой вещество желто-оранжевого цвета, полисульфиды $Si_n S_m$ окрашены в разные цвета.

2. Работа ионных источников на стенде

Рабочие газы подавались в разрядную камеру источника ^{1/1} по медным трубкам через обычный игольчатый вентиль, для соединений были использованы короткие шланги из вакуумной резины. Все три соединения ($Si H_4$, $Si F_4$ и $Si Cl_4$) легко подвергаются гидролизу, а четыреххлористый кремний, кроме того, реагирует со смазкой вакуумных кранов и резиной. Поэтому перед работой тщательно удалялась смазка из игольчатого вентиля. Однако несмотря на это, при работе с $Si Cl_4$ и $Si H_4$ игольчатый вентиль выходил из строя после 15-20 часов. Отверстие вентиля забивалось, причем во время работы с $Si H_4$ были случаи, когда $Si O_2$ забивал отверстие для подачи газа на разрядной камере источника (диаметр отверстия 2 мм). Резиновые трубки, по которым проходили пары $Si Cl_4$, теряли эластичность. Работа с четырехфтористым кремнием проходила без осложнений.

При получении ионов кремния из сульфидов в тигель источника с испарением твердого рабочего вещества ^{1/2} была загружена смесь моно- и дисульфида кремния с тонко измельченным элементарным кремнием. Последний при нагревании взаимодействует с $Si S_2$, образуя по реакции $Si + Si S_2 \rightarrow 2 Si S$ дополнительные количества моносulfида.

Тигель был изготовлен из нержавеющей стали, толщиной стенки 0,2 мм. После работы на сульфидах кремния металл тигля становился очень хрупким.

Для получения ионов кремния в источнике с катодным распылением рабочего вещества /3/ в качестве распыляемого электрода использовалась кремниевая пластина, которая припаивалась к медному основанию. Распыляемая площадь пластины равнялась 6 x 25 мм, толщина 1 - 10 мм. В отличие от описанных ранее источников /3/, наш был снабжен механизмом плавного перемещения распыляемого электрода в разряд и обратно во время работы. В качестве вспомогательного газа использовался ксенон. Результаты стендовых испытаний источников представлены в таблице.

Таблица

Токи ионов кремния из различных рабочих веществ

Рабочее вещество	Режим разряда		Общий ток ионов, ма	Ток ионов кремния по зарядам, ма					Доля кремния в общем токе
	$U_{д}$, в	$I_{д}$, а		I+	2+	3+	4+	5+	
Si H ₄	750	8,3	100	10,4	19,8	27,2	16,6	I	
Si Cl ₄	500	7,6	140	2	8,8	11,5	6,9	0,2	0,2
Si F ₄	750	12,8	160	2,4	14	30	12	1,2	0,3
Si S ₂ + Si + SiS	600	9,5	250	23,9	38,6	26,8	16,4	2,6	0,5
Si	620	11	130	12,1	45,6	34,9	12,8	1,6	0,8

Источники работали в импульсном режиме при длительности импульса 1 мсек и частоте повторения 100 гц. В таблице указаны как величины токов кремния по зарядностям, так и всего извлеченного из источника ионного тока в импульсе. Ионы извлекались из эмиссионной щели источника напряжением 20-25 кв. Размер щели у газового источника и источника с катодным распылением рабочего вещества был равен 15 x 1 мм. Для работы со смесью Si S₂ + Si + SiS был взят циклотронный источник, который имел молибденовую разрядную камеру с эмиссионной щелью размером 14 x 2,5 мм. В начале работы источника с этой смесью температура тигля равнялась 600°C, по мере расхода вещества необходимо было ее повышать.

Источник с катодным распылением рабочего вещества работал при напряжении на электроде 1800 в, ток на распыляемый электрод равен 2,4 а. Расход кремния в этом источнике составил 120 мг/час. Расход четырехфтористого кремния в газовом источнике равнялся 0,6 см³/мин.

3. Работа на циклотроне

На циклотроне У-300 ускорялись ионы ${}_{28}\text{Si}^{5+}$, полученные при работе газового ионного источника с соединениями SiCl_4 , SiH_4 , SiF_4 . Как и ожидалось, наибольшие токи иона Si^{5+} были получены при использовании четырехфтористого кремния. Во время работы на SiF_4 измерялась зависимость тока пучка ионов Si^{5+} , выведенного из ускорителя, от вакуума в камере циклотрона. Давление в камере регулировалось изменением скорости откачки. Полученная зависимость была подобна таким же зависимостям для ионов Ne^{4+} , Ar^{7+} , Zn^{10+} , измеренным на циклотроне У-300 ранее /5/.

Измерены также зависимости тока ионов Si от напряжения (рис. 1а) и тока (рис. 1б) разряда. Ток дуги или напряжение поддерживались постоянными путем регулировки подогрева катода.

Средний ток выведенного из циклотрона пучка 5-зарядных ионов кремния достигал 1,5 мка. Примерный режим работы: напряжение разряда - $U_{\text{д}} = 850 + 850$ в, ток разряда - $I_{\text{д}} = 16 + 9$ а, скважность импульсной работы - 3 + 4. Расход газа на циклотроне в оптимальном режиме был равен 0,3 см³/мин, вакуум в камере ускорителя - $5 \cdot 10^{-6}$ торр.

Авторы считают своим долгом выразить благодарность академику Г.Н. Флерову за постановку задачи и постоянное внимание к работе. Мы очень благодарны В.П. Бочину, В.С. Романову и С.А. Сельянову за консультации и помощь в приготовлении рабочих веществ, а также А.А. Еропкину за подготовку ионных источников к работе.

Литература

1. А.С. Пасюк, Ю.П. Третьяков, С.К. Горбачев. АЭ, 24, 21 (1988).
2. А.С. Пасюк, Е.Д. Воробьев, Р.И. Иванников, В.И. Кузнецов, В.Б. Кутнер, Ю.П. Третьяков. АЭ, 28, 75 (1970).

3. Ю.П. Третьяков, А.С. Пасюк, Л.П. Кулькина, В.И. Кузнецов, АЭ, 28, 423 (1970).
Ю.П. Третьяков, Л.П. Кулькина, В.И. Кузнецов, А.С. Пасюк. ПТЭ, №5, 40 (1970).
4. H.Gabriel, C.Alvarez-Tostodo; J.Amer.Chem.Soc. 74, 262 (1952). W.C.Schumb, W.J.Bernard; J.Amer.Chem.Soc. 77, 904 (1955).
5. А.С. Пасюк, Ю.П. Третьяков, Б.А. Загер. Препринт ОИЯИ, 7-6163, Дубна, 1971.

Рукопись поступила в издательский отдел
24 марта 1972 года.

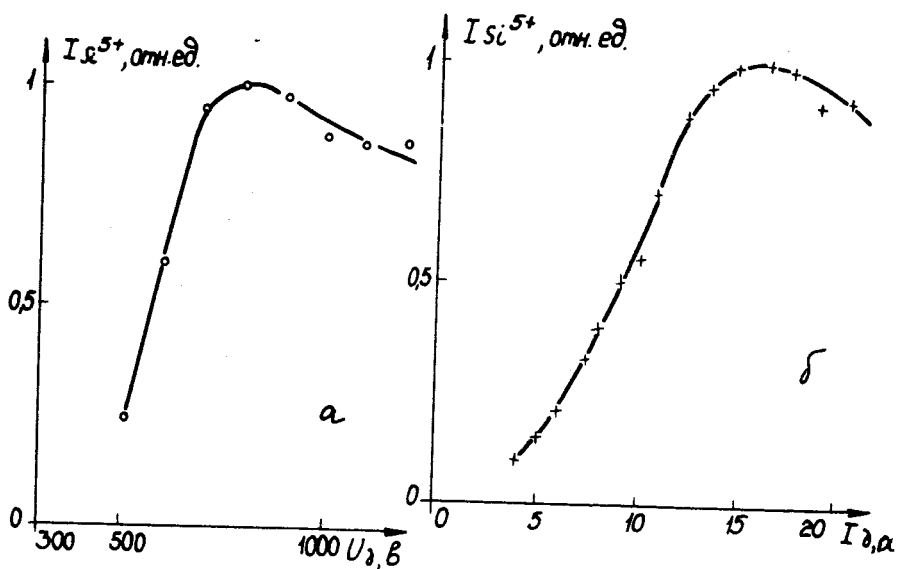


Рис. 1. Зависимость тока пятизарядных ионов кремния: а) от напряжения на разряд, б) от тока дуги.